



Ecole doctorale n° 432 : Sciences des Métiers de l'Ingénieur

THÈSE

pour obtenir le grade de

Docteur

de

l'École Nationale Supérieure d'Arts et Métiers

Spécialité "Energétique et Génie des procédés"

*présentée et soutenue publiquement
par*

Lyes DOUADJI

le 23 avril 2007

**TRAITEMENT THERMIQUE UNIFORME DES COMPOSITES
NON METALLIQUES AU MOYEN DE L'EFFET DIELECTRIQUE
DE L'INVERSION DE L'ATTENUATION DES ONDES
ELECTROMAGNETIQUES**

Directeur de thèse : **Michel DELMOTTE**

Jury :

M. Philippe HERVE , Professeur, Université de Paris X	Président
M. Lionel ESTEL , Professeur, INSA de Rouen	Rapporteur
M. Daniel BALAGEAS , Conseiller Emérite, ONERA	Rapporteur
M. Simon KARAM , Chef de Projet, HUTCHINSON	Examineur
M. David RYCKELYNCK , Maître de recherches, Ecole des mines de Paris	Examineur
M. Michel DELMOTTE , Directeur de Recherche, ENSAM, Paris	Examineur

Laboratoire d'Ingénierie des Matériaux
ENSAM, CER de Paris

A ma très chère mère et a mon très cher père

Sommaire

Introduction générale	1
Chapitre I: Matériaux composites & Micro-ondes	
Introduction	5
I.1. Les matériaux composites	5
I.1.1. Définitions	6
I.1.2. Matrices polymères.....	7
I.1.2.1. Résines thermoplastiques (TP) et solidification.....	7
I.1.2.2. Résines thermodurcissables (TD) et réticulation	8
I.1.2.3. Réticulation.....	9
I.1.3. Les renforts.....	10
I.1.3.1. Les différentes natures de renfort.....	10
I.1.3.2. Architectures de renforcement	11
I.1.4. Les micro-ondes et les systèmes thermodurcissables.....	12
I.1.5. L'élaboration des matériaux composites à matrice polymère.....	15
I.1.5.1. Procédés assistés par micro-ondes.....	15
I.1.5.2. Procédé RTM	17
I.1.5.3. La pultrusion	18
I.2. Les micro-ondes	18
I.2.1. Les phénomènes électromagnétiques.....	18
I.2.2. Propagation des ondes.....	19
I.2.2.1. Propagation dans les matériaux.....	19
I.2.2.2. Propagation dans un guide d'onde.....	21
I.2.2.3. Conditions aux limites.....	23
I.2.3. Les modes de propagation.....	23
I.2.4. Réflexions d'ondes.....	24
I.2.4.1. Coefficient de réflexion	24
I.2.4.2. Taux d'ondes stationnaires (TOS).....	25
I.2.5. Equipements micro-ondes.....	25
I.2.5.1. Générateur.....	25
I.2.5.2. Eléments d'adaptation et de mesure.....	26
I.2.5.2.1. Guide d'ondes rectangulaire.....	26

1.2.5.2.2. L'isolateur.....	27
1.2.5.2.3. Le coupleur directif.....	27
1.2.5.3. L'applicateur.....	28
Conclusion.....	29
Références bibliographiques I.....	30
Chapitre II: Modélisation électromagnétique	
Introduction.....	33
II.1. Le choix de l'outil de calcul.....	35
II.2. Modélisation du profil du champ électromagnétique.....	36
II.2.1. Les conditions aux limites	37
II.2.2. La procédure de la modélisation électromagnétique.....	38
II.3. Profil du champ électrique dans un guide d'onde.....	40
II.3.1. Dans un guide vide très long.....	40
II.3.2. Dans un guide avec un court-circuit.....	43
II.3.3. Guide rempli par une masse absorbante.....	46
II.4. Modélisation du champ électrique dans un guide d'onde rempli par trois diélectriques.....	47
II.4.1. Profil du champ dans le guide rempli par trois diélectriques.....	48
II.4.2. Le choix de l'adaptation.....	53
II.5. L'étude des quelques paramètres influençant la distribution des sources de chaleur d'origine électromagnétique.....	54
II.5.2. L'influence de la longueur de l'adaptation.....	55
II.5.3. L'influence de l'épaisseur du moule	57
II.5.4. L'influence de l'épaisseur de l'éprouvette.....	58
II.5.5 L'influence des caractéristiques diélectriques des matériaux.....	60
II.6. Modélisation de la compensation de l'atténuation des ondes électromagnétiques.....	61
II.6.1. Modélisation de la solution utilisant deux sources alternées.....	61
II.6.2. Modélisation de la solution utilisant un chargement diélectrique à géométrie spécifique.....	64
Conclusion.....	68

Références bibliographiques II	70
Chapitre III: Les expériences et les mesures thermiques	
Introduction	72
III.1. Description du procédé micro-ondes	73
III.1.1. Description de l'applicateur	74
III.1.2. Description du remplissage.....	75
III.1.3. Description du matériau à élaborer	76
III.2. Préparation des éprouvettes et des moules diélectriques	76
III.2.1. La préparation de l'éprouvette.....	77
III.2.2. La préparation du moule et le choix de son épaisseur.....	78
III.3. Thermométrie	78
III.3.1. les différents techniques de mesures thermiques sous un champ micro-ondes.....	78
III.3.2. Le thermomètre utilisé dans nos mesures.....	79
III.3.3. Etalonnage des sondes.....	79
III.3.4. L'installation des sondes.....	81
III.4. Mesures thermiques pour le suivi temporel de la température dans le composite	82
III.4.1. Paramètres des expériences.....	83
III.4.2. Les résultats des mesures thermiques.....	84
III.5. L'évolution temporelle de la température dans le composite sans atténuation	86
III.5.1. L'effet diélectrique d'inversion de l'atténuation (EDIA).....	86
III.5.2.1. La géométrie du moule.....	87
III.5.2.2. Les points des mesures.....	91
III.5.3. Les premiers mesures thermiques sans atténuation.....	91
III.5.4. Les secondes résultats thermiques sans atténuation.....	93
III.6. Mise en œuvre calorimétrique de l'atténuation	95
III.7. Mesures des puissances	99
III.7.1. Analyse des résultats des puissances.....	99
III.7.2. Puissances absorbées.....	100
III.7.2.1. Puissances absorbées croissantes.....	101

III.7.2.2. Puissances absorbées décroissantes.....	101
III.7.2.3. Puissance absorbée constante.....	102
Conclusion.....	102
Références bibliographiques III.....	104
Chapitre IV: Interprétations thermiques des résultats	
Introduction.....	106
IV.1. Les sources de chaleur mises en jeux lors de l'élaboration.....	107
IV.1.1. Description des sources de chaleur électromagnétique.....	108
IV.1.1.1. Le champ électrique.....	108
IV.1.1.2. Caractérisation diélectriques du matériau à élaborer.....	111
IV.1.1.2.1. Mesure par λ_g dans guide fermé par un court-circuit.....	112
IV.1.1.2.2. Mesure par la méthode inverse.....	113
IV.1.1.2.3. Méthode des petites perturbations d'une cavité résonnante....	114
IV.1.1.2.4. Les résultats de la mesure par λ_g dans guide fermé par un CC.....	115
IV.1.1.2.5. Les résultats de la mesure par la méthode inverse.....	116
IV.1.1.2.6. Résultats de la méthode des petites perturbations d'une cavité résonnante.....	117
IV.1.1.2.6.1. Evolution des caractéristiques diélectriques du composite verre-époxy en fonction de la température.....	117
IV.1.1.2.6.2. Transposition des caractéristiques de 2450 MHz à 915MHz.....	119
IV.1.2. Description des sources de chaleur d'origine chimique.....	121
IV.1.2.1. L'enthalpie de la réaction.....	122
IV.1.2.2. Forme générale des modèles cinétiques.....	122
IV.1.2.3. Exemples de modèles cinétique.....	123
IV.1.2.3.1. Modèle de KAMAL et SOUROUR.....	123
IV.1.2.3.2. Modèle de BAILLEUL.....	124
IV.1.1.2.4. Source de chaleur de la réaction par la résolution analytique de modèle de Kamal et Sourour	124
IV.1.1.2.5. Source de chaleur de la réaction par DSC.....	126
IV.2. L'équation de la chaleur.....	128
IV.2.1. Modélisation de La capacité calorifique et de la masse volumique du composite.....	129

IV.2.1.1. Capacité calorifique de la matrice.....	129
IV.2.1.2. Masse volumique de la matrice.....	130
IV.2.2. Modélisation de la conductivité thermique de la matrice.....	131
IV.3. Modélisation thermique du procédé micro-ondes.....	132
IV.3.1. Hypothèses et conditions aux limites.....	133
IV.3.2. Evolution de la température dans le composite avec une source de chaleur constante.....	135
IV.3.2. Evolution de la température dans le composite avec une source de chaleur électromagnétique.....	138
IV.3.3. Evolution de la température dans le composite avec une source de chaleur électromagnétique et une source chimique.....	141
Conclusion.....	143
Références bibliographiques IV.....	146
Conclusion générale.....	149
Annexe A.....	153
Annexe B.....	164

Nomenclature

Q_c : La charge d'électrique (C : Coulombs).

\vec{D} : L'induction électrique ($C.m^{-2}$).

\vec{J}_c : La densité de courant électrique ($A.m^{-2}$).

\vec{r} : Les variables d'espace.

\vec{H} : Les vecteurs champ et induction magnétiques ($A.m^{-1}$).

\vec{B} : L'induction magnétique ($Wb.m^{-2}$).

$\vec{j}(\vec{r}, t)$: La densité de courant en ($A.m^{-2}$).

ω : La pulsation de l'onde (rad/s).

\vec{E} : Le vecteur du champ électrique ($V.m^{-1}$).

C : La constante de rayonnement (en $W.m^{-2}.K^5$).

c : La vitesse de la lumière dans le vide ($m.s^{-1}$).

C_p : La chaleur spécifique ($J.kg^{-1}.K^{-1}$).

C_{p0} : La capacité calorifique de la matrice initiale ($J.kg^{-1}.K^{-1}$).

C_{p1} : La capacité calorifique de la matrice après réaction ($J.kg^{-1}.K^{-1}$).

E_i : L'énergie d'activation ($Kj.mol^{-1}$).

E_{ig} : La composante tangentielle du champ électrique.

f : La fréquence de propagation d'onde (Hz).

G_d : La grande dimension du guide (m).

h : Le coefficient de transfert thermique ($W.m^{-2}.K^{-1}$).

K_1 et K_2 : Les constantes de vitesse de réaction (s^{-1}).

k_c : La constante de coupure.

k_g : La constante de propagation en guide.

K_i : Les constantes d'Arrhenius (s^{-1}).

L : La longueur du guide d'onde (m)

l : longueur de l'éprouvette (m)

L_B : Longueur du biseau (m)

μ : La perméabilité des milieux.

ϵ_r : la permittivité du vide

ϵ : La permittivité milieux.

$\frac{d\alpha}{dt}$: La vitesse de réaction (s^{-1}).

α : Le degré d'avancement de la réaction.

$\vec{\lambda}$: Le tenseur de conductivité thermique ($W.m^{-1}.K^{-1}$).

m, n : Les couples de valeurs entières.

M, N : Les rapports entre les épaisseurs du moule diélectrique et l'épaisseur de l'éprouvette.

n : L'indice de réfraction du composite.

n_s : La norme à la surface

P_{dissi} : La puissance dissipée (W/m^3)

P_{inci} : La puissance incidente (W/m^3)

$P_{réflé}$: La puissance réfléchie (W/m^3)

P_{tran} : La puissance transmise (W/m^3)

Q : La source de chaleur (en $W.m^{-3}$).

Q_{chimie} : La source chimique (W/m^3).

Q_{micro} : La source micro-ondes ($w.m^{-3}$)

t : Le temps (s).

T_{ref} : La température de référence (K).

V_f : Le taux volumique de renfort (fibres).

λ_{Ci} : La conductivité du composite dans la direction $i = (x, y, z)$ pendant la réaction ($W.m^{-1}.K^{-1}$).

λ_{Ci0} : La conductivité du composite dans la direction i avant la réaction ($W.m^{-1}.K^{-1}$).

λ_{Ci1} : La conductivité du composite dans la direction i après la réaction ($W.m^{-1}.K^{-1}$).

α : L'atténuation (m^{-1}).

τ : La constante de temps de relaxation diélectrique (s).

$\bar{\delta}$: La profondeur de pénétration (m).

ϵ' : La permittivité du matériau.

ϵ'' : La caractéristique d'absorption du matériau.

ϵ_0 : La permittivité du vide ($F.m^{-1}$).

ϵ_s et ϵ_∞ : Les valeurs de la constante diélectrique du matériau ($F.m^{-1}$)

λ_0 : La longueur d'onde dans le vide (m).

μ_0 : La perméabilité du vide ($H.m^{-1}$).

λ_c : La longueur d'onde du coupure (m).

λ_g : La longueur d'onde dans le guide (m).

ρ : La masse volumique ($kg.m^{-3}$).

$\rho(\vec{r}, t)$: La densité de charges électriques en ($A.m^{-3}$).

α_{gel} : Le degré de conversion lors de la gélification.

ΔH_r : La valeur de la chaleur de réaction à une température de référence T_0 ($J.g^{-1}$)

ΔH_r : La valeur de l'enthalpie totale de la réaction du composite ($J.g^{-1}$).

Liste des tableaux

<i>Tableau II.1: Caractéristiques diélectriques des trois matériaux diélectriques.....</i>	<i>49</i>
<i>Tableau II.2 : Les paramètres à étudier.....</i>	<i>55</i>
<i>Tableau IV.1 : Les valeurs obtenues par la mesure de λ_g de la permittivité diélectrique à 2 f.....</i>	<i>116</i>
<i>Tableau IV.2 : Résultats de la mesure par la méthode inverse.....</i>	<i>116</i>
<i>Tableau IV.3: Coefficients des échanges thermiques utilisés dans les conditions aux limites.....</i>	<i>135</i>
<i>Tableau IV.4 : Les caractéristiques thermiques des matériaux utilisées</i>	<i>135</i>

Liste des Figures

Chapitre I

Figure I.1. Les résines époxydes.....	9
Figure I.2. La résine époxy après réticulation.....	10
Figure I.3. Les différentes architectures.....	12
Figure I.4. Procédé RTM.....	17
Figure I.5. Propagation dans un diélectrique et au voisinage d'une interface métallique.....	21
Figure I.6. Mode TE ₀₁ dans l'applicateur vide et ses dimensions.....	22

Chapitre II

Figure II.1. Applicateur rempli par trois diélectriques.....	35
Figure II.2. Organigramme de la procédure de calcul.....	39
Figure II.3. Profil en 2D de la norme du champ électrique dans un guide très long.....	41
Figure II.4. Profil en 3D de la norme du champ électrique dans un guide très long.....	41
Figure II.5. Le profil de la norme du champ électrique dans le plan médian du guide long.....	42
Figure II.6. La répartition transversale de la norme du champ électrique.....	43
Figure II.7. Profil en 2D de la norme du champ électrique dans un guide d'ondes avec C-C.....	44
Figure II.8. Profil en 3D de la norme du champ électrique dans un applicateur avec court-circuit.....	45
Figure II.9. Profil du champ à mi-hauteur d'un guide d'ondes avec court-circuit.....	45
Figure II.10. Localisation de la longueur d'onde guidée.....	46
Figure II.11. Profil de la norme du champ électrique dans un guide rempli d'une masse absorbante.....	46
Figure II.12. Profil de la norme du champ électrique à mi-hauteur de la masse absorbante.....	47
Figure II.13. Modèle expérimental d'un applicateur rempli par trois diélectriques.....	48
Figure II.14. Profil de la norme du champ électrique dans applicateur rempli de trois diélectriques.....	49
Figure II.15. Profil de la norme du champ E à mi-haut d'un applicateur rempli de 3 diélectriques.....	50
Figure II.16. La répartition transversale de la norme du champ électrique le long de l'éprouvette.....	50
Figure II.17. La répartition transversale de la norme du champ électrique dans trois plans différents de l'applicateur.....	51
Figure II.18. Profil de la norme du champ électrique à mi-haut d'un guide rempli par trois diélectriques, sans et avec adaptation.....	52
Figure II.19. Les trois formes du biseau.....	53
Figure II.20. Schéma expérimental d'une adaptation par SCCT.....	54
Figure II.21. L'évolution de la norme du champ électrique dans une éprouvette de 15 mm d'épaisseur en fonction de la longueur de 2 ^{ème} biseau, et pour 20cm de longueur du 1 ^{er}	56

Figure II.22. Profil du la norme du champ électrique le long de l'éprouvette d'épaisseur 5mm en fonction de l'épaisseur du moule.....	57
Figure II.23. Profil du la norme du champ électrique le long de l'éprouvette d'épaisseur 10mm en fonction de l'épaisseur du moule	57
Figure II.24. Profil de la norme du champ électrique le long de l'éprouvette d'épaisseur 15mm en fonction de l'épaisseur du moule.....	58
Figure II.25. La répartition longitudinale de la norme du champ électrique en fonction de l'épaisseur de l'éprouvette.....	59
Figure II.26. La répartition transversale de la norme du champ électrique en fonction de l'épaisseur de l'éprouvette pour la cote z correspondant au milieu du composite.....	59
Figure II.27. Profil de la distribution longitudinale en fonction de l'absorption du composite.....	60
Figure II.28. Schéma de la solution utilisant deux sources micro-ondes alternées.....	62
Figure II.29. La distribution de la source micro-ondes obtenue par deux générateurs en fonction de la caractéristique d'absorption du matériau.....	63
Figure II.30. Schéma de la solution utilisant un chargement diélectrique à géométrie spécifique.....	64
Figure II.31. Evolution du champ électrique en fonction des dimensions du moule, le long de l'éprouvette de 5 mm d'épaisseur et de 0.30 de caractéristique d'absorption.....	65
Figure II.32. Evolution du champ électrique en fonction des dimensions du moule, le long de l'éprouvette de 10 mm d'épaisseur et de 0.30 de caractéristique d'absorption.....	65
Figure II.33. Evolution du champ électrique en fonction des dimensions du moule, le long de l'éprouvette de 15 mm d'épaisseur et de 0.30 de caractéristique d'absorption.....	66
Figure II.34. Profil du champ électrique le long de l'éprouvette de 15mm d'épaisseur et avec un moule d'épaisseur variable.....	67
Figure II.35. Le profil longitudinal de la norme du champ E sur les côtes z du champ maximal.....	68

Chapitre III

Figure III.1. Modèle expérimental d'un applicateur rempli par trois diélectriques.....	73
Figure III.2. Matériels du procédé micro-ondes et rappel du mode TE01 associés par les dimensions de l'applicateur.....	74
Figure III.3. Le polyéthylène.....	75
Figure III.4. Silicone-verre.....	75
Figure III.5. Images du composite pendant la préparation.....	76
Figure III.6. La disposition des bandes.....	77
Figure III.7. L'éprouvette enrobée dans le revêtement en téflon-verre.....	77
Figure III.8. Schéma simplifié de l'enregistrement des données des étalonnages.....	80
Figure III.9. Dispositif permettant de positionner les sondes.....	81
Figure III.10. Schéma expérimental des mesures thermiques.....	82
Figure III.11. Les positions des sondes.....	83
Figure III.12. Le schéma expérimental d'un applicateur rempli par trois diélectriques.....	83

Figure III.13. Evolution des températures le long de l'éprouvette en fonction du temps.....	84
Figure III.14. Schéma représentatif du phénomène d'effet diélectrique d'inversion de l'atténuation ...	87
Figure III.15. La géométrie du moule modèle, pour une éprouvette de 15mm.....	87
Figure III.16. La géométrie et les dimensions de modèle du moule expérimental de la première expérience sans atténuation.....	88
Figure III.17. Le moule expérimental et la position de l'éprouvette.....	89
Figure III.18. La moitié du moule et la position de l'éprouvette.....	89
Figure III.19. Profil de la norme du champ électrique dans l'applicateur et le moule choisi, représenté dans la figure III.17.....	90
Figure III.20. Profil de la norme du champ électrique dans le plan médian de l'éprouvette.....	91
Figure III.21. Evolution des températures le long de l'éprouvette en fonction du temps, obtenue avec le premier moule sans atténuation (EDIA).....	92
Figure III.22. La géométrie et les dimensions du moule pour les deuxième mesures thermiques sans atténuation.....	93
Figure III.23. Evolution des températures le long de l'éprouvette en fonction du temps, obtenue avec le deuxième moule sans atténuation (EDIA).....	94
Figure III.24. Les éprouvettes réalisées.....	95
Figure III.25. L'atténuation entre le point $z_1= 0,02$ m et $z_4=0,74$ m dans le cas d'un moule d'épaisseur uniforme (résultat de la figure III.13).....	97
Figure III.26. l'atténuation entre le point $z_1= 0,02$ m et $z_4=0,74$ m dans le cas d'un moule avec compensation de l'atténuation (résultat de la figure III.21).....	98
Figure III.27. L'atténuation entre le point $z_1= 0,02$ m et $z_4=0,74$ m dans le cas d'un moule avec compensation de l'atténuation (résultat de la figure III.23).....	98
Figure III.28. Puissances réfléchies.....	100
Figure III.29. Puissances transmises.....	100
Figure III.30. Puissances absorbées.....	101

Chapitre IV

Figure IV.1 : La puissance transmise lors de la première expérience.....	113
Figure IV.2 : La puissance transmise lors de la deuxième expérience.....	114
Figure IV.3. Variation des caractéristiques diélectriques de verre-époxy en fonction du temps jusqu'à une température de 200 °C à 2450 MHz (Caractéristique d'absorption multipliée par 10).....	118
Figure IV.4 : Variation des caractéristiques diélectriques de verre-époxy en fonction du temps à 2450 MHz (Caractéristique d'absorption multipliée par 10).....	118
Figure IV.5 : Variation des caractéristiques diélectriques de verre-époxy en fonction de la température à 2450 MHz.....	119
Figure IV.6 : Diagramme dérivé de Cole et Cole.....	120

Figure IV.7: Variation des caractéristiques diélectriques du verre-époxy en fonction de la température à 915 MH.....	121
Figure IV.8 : La source de chaleur d'origine chimique obtenue par la résolution de l'équation de KAMAL et SOUROUR.....	125
Figure IV.9 : La température imposée et source chimique obtenue par DSC.....	127
Figure IV.10 : La source chimique et conversion obtenus par DSC.....	127
Figure IV.11 : L'évolution de la chaleur spécifique en fonction de la température de la matrice époxydique.....	130
Figure IV.12 : Parois du guide et coefficient d'échange équivalent.....	134
Figure IV.13 : Schéma du montage et les conditions aux limites appliquées.....	135
Figure IV.14 : Le champ de la température à 1800sec dans une éprouvette de 15mm et son environnement pour un chauffage uniforme.....	136
Figure IV. 15 : L'évolution de la température le long du composite en fonction du temps.....	137
Figure IV.16 : La température transversale du composite au point $z_4= 0.74$ m en fonction du temps, température en 0 et en 0,25 m.....	137
Figure IV.17 : La température suivant x du composite au point $z_4= 0.74$ m en fonction du temps.....	138
Figure IV.18 : La répartition du champ de température dans l'éprouvette et son environnement.....	139
Figure IV.19: Thermographie qui montre un profil de température résultant de l'effet électromagnétique et des conditions thermiques du point z_4	139
Figure IV.20 : La variation de $\lambda_g/2$ dans le sens de la propagation.....	140
Figure IV.21 : Evolution de la température le long du composite en fonction du temps.....	142
Figure IV.22 : Evolutions des sources de chaleur d'origines chimique et électromagnétique en fonction du temps.....	143

Introduction générale

Introduction générale

Les procédés fondés sur le chauffage par hystérésis diélectrique, c'est à dire par voie micro-ondes, présentés dans ce travail ont pour objectif final la fabrication de pièces en composite à matrice thermodurcissable dans un moule fermé contenant le composite préimprégné qui y a été préalablement disposé. La propriété remarquable de ces procédés pour les traitements thermiques est leur aptitude à générer un chauffage volumique résultant de la conversion thermique de l'énergie électromagnétique. Cet effet de chauffage volumique est une conséquence directe de leur longueur d'onde qui est à l'échelle des pièces industrielles et des objets courants.

Les micro-ondes fournissent en effet un facteur de remplissage optimal des objets de taille décimétriques, ce qui explique la possibilité d'atteindre des rendements énergétiques très élevés dans les processus d'échauffement des objets constitués de matériaux isolants électriques. Encore faut-il que ces derniers aient un facteur d'absorption ϵ'' (partie imaginaire de la permittivité diélectrique complexe ou pertes diélectriques) non négligeable à la fréquence correspondante.

La spécificité principale du chauffage micro-ondes comparé au chauffage par source chaude est sa dépendance de l'évolution thermique du coefficient d'absorption. L'énergie appliquée conduit au travers des propriétés diélectriques à une énergie absorbée. Cette dernière, dans tout matériau dissipatif, est proportionnelle à l'intégrale sur le volume de celui-ci, du produit du carré du module du champ électrique appliqué par les pertes diélectriques. L'énergie dissipée pourra donc évoluer considérablement au cours du chauffage selon la dépendance thermique du coefficient d'absorption.

Cependant, l'utilisation de l'énergie micro-ondes présente des difficultés de mise en œuvre liées à l'hétérogénéité spatiale des sources de chaleur au sein du produit, du fait de deux problèmes majeurs.

La première difficulté résulte du problème de l'existence des régimes d'ondes stationnaires identifiés par des zones chaudes et des zones froides. Ces ondes stationnaires sont dues aux multiples réflexions de l'onde incidente aux interfaces internes de l'objet ou de la pièce. Ces zones sont distantes d'une longueur constante égale à la moitié de la longueur d'onde guidée λ_g . Dans notre Laboratoire, le problème des ondes stationnaires a été considéré comme suffisamment résolu par l'utilisation d'adaptations convenables aux interfaces des objets à traiter.

D'autre part, il est bien connu que si on dispose un produit présentant un fort coefficient d'absorption sous un champ électrique micro-ondes, on constate rapidement l'établissement de forts gradients de température à l'intérieur du produit. Cela est dû à l'atténuation des sources de chaleur d'origine électromagnétique. Cette atténuation représente le second problème du procédé micro-ondes qu'il faut résoudre et qui montre une importance particulière dans le cas de pièces industrielles épaisses.

L'élaboration thermique de pièces épaisses à partir d'une matrice réactive nécessite la maîtrise constante de l'incrément de température, en tout point du matériau à transformer, et donc, la maîtrise des sources de chaleur dans le temps et dans l'espace. Dans le contexte du chauffage par hystérésis diélectrique, la connaissance de la distribution spatiale de la densité volumique de puissance électromagnétique absorbée, c'est-à-dire la connaissance de la distribution spatiale de l'amplitude du champ électrique, peut assurer cette maîtrise des sources de chaleur et tendre vers leur uniformité spatiale malgré le phénomène général de l'atténuation.

Ce travail, qui s'est déroulé au Laboratoire d'Ingénierie des Matériaux (LIM) à l'ENSAM de Paris, concerne le problème de l'atténuation des sources de chaleur d'origine électromagnétique lors du traitement thermique des composites à matrice thermodurcissable par chauffage micro-ondes, à la fréquence 915 MHz. La compensation de l'atténuation se fait, en réalisant une variation spatiale convenable des dimensions des éléments diélectriques du moule le long de la pièce à élaborer. L'étude et la compréhension des couplages entre l'ensemble des processus physiques nécessairement mis en jeu lors du traitement d'un matériau composite à matrice thermodurcissable seront des étapes incontournables.

L'originalité apportée par ce travail est l'utilisation de la modélisation électromagnétique pour résoudre le problème de l'atténuation dans le procédé. Une situation électromagnétique nouvelle est observée durant cette étude. Ce phénomène est caractérisé par la décroissance spatiale de l'amplitude du champ électrique dans le sens opposé à la direction de la propagation des ondes, lors de l'utilisation d'un moule de dimensions spécifiques et d'épaisseur non uniforme le long de l'éprouvette. Ce phénomène est appelé "**effet diélectrique d'inversion de l'atténuation (EDIA)**" des ondes électromagnétiques. Cette situation est valable pour toutes les fréquences micro-ondes. Elle restera la base des conditions de traitement uniforme par chauffage micro-ondes de pièces à fort coefficient d'absorption à la fréquence de 915 MHz.

Ce travail comporte en parallèle à la modélisation électromagnétique, des validations expérimentales de la solution utilisant l'effet diélectrique d'inversion de l'atténuation sur des éprouvettes en composite verre-époxy de 15 mm d'épaisseur. Il contient en plus une modélisation chimique et thermique de procédé basé sur l'hystérésis diélectrique pour l'interprétation des phénomènes observés pendant les expériences.

Cette thèse est organisée en quatre chapitres, et, pour chaque chapitre, nous avons associé les références bibliographiques correspondantes. Le premier chapitre vise à donner un aperçu global des composites, et un aperçu détaillé sur les composites à matrice thermodurcissable DGEBA/DDA associé à des fibres de verre unidirectionnelles. Dans un deuxième temps nous nous sommes intéressés aux procédés de mise en oeuvre de ces matériaux. Nous avons donc cité les procédés les plus connus et les plus employés dans l'industrie dite classique, avant de parler des avantages des procédés assistés par micro-ondes. Nous avons à la suite présenté les différentes études concernant les micro-ondes et les systèmes thermodurcissables.

Le facteur moteur de toute élaboration par micro-ondes est le champ électrique. Pour cette raison nous avons consacré tout le deuxième chapitre à la modélisation électromagnétique pour connaître la distribution spatiale du champ électrique. La connaissance de cette distribution dans un applicateur rempli de trois matériaux diélectriques, où l'un représente le matériau à traiter, constitue donc un facteur

prépondérant qui conditionne un traitement homogène et optimal. Cette distribution ne peut être correctement obtenue qu'en résolvant les équations de propagation intégrant les paramètres diélectriques du matériau à élaborer et leur évolution au cours du traitement mais aussi les propriétés diélectriques du moule.

Dans le troisième chapitre, nous donnons une description détaillée du procédé mettant en œuvre l'hystérésis diélectrique avant de présenter les matériels utilisés dans ce procédé (guide d'ondes, remplissage diélectrique), et les matériaux diélectriques nécessaires à ce procédé et avant de détailler les démarches à suivre pour la préparation des éprouvettes. En un deuxième temps, nous verrons les différentes techniques de mesures thermiques sous champ micro-ondes, y compris les précautions à prendre pour éviter la destruction des sondes utilisées puis nous présenterons les résultats des mesures thermiques réalisées sur des éprouvettes épaisses en verre-époxy. Nous allons voir ensuite comment nous avons pu appliquer les concepts de la modélisation électromagnétique avec aux moyens expérimentaux réels pour résoudre le problème de l'atténuation des sources de chaleur d'origine électromagnétique par l'effet diélectrique d'inversion de l'atténuation. A la fin de chapitre III, nous présenterons la mise en œuvre de la détermination calorimétrique de l'atténuation et les résultats des mesures des puissances réfléchies, transmises et absorbées réalisées lors de l'élaboration des éprouvettes.

Le quatrième chapitre est consacré à l'interprétation des résultats de la modélisation électromagnétique présentés dans le chapitre II et des résultats expérimentaux présentés dans le chapitre III.

Chacun des quatre chapitres comporte une introduction qui présente le contenu et une conclusion qui en fait la synthèse.

Chapitre I :
Matériaux composites & micro-ondes

Introduction

La maîtrise du procédé d'élaboration par micro-ondes d'un matériau composite à matrice polymère nécessite, en premier lieu, la connaissance de ce type de matériau, deuxièmement, la maîtrise de la propagation des ondes électromagnétiques et troisièmement, l'aspect de la cinétique chimique du procédé car le matériau utilisé dans notre cas est à matrice thermodurcissable, ce qui a une influence significative sur ce mode d'élaboration. Ce dernier point sera détaillé dans le dernier chapitre "interprétations thermiques des résultats".

De plus, une meilleure compréhension de la mise en forme des matériaux composites à matrice polymère thermodurcissable est importante pour l'optimisation du procédé.

Ce chapitre traite des matériaux composites et des micro-ondes. Dans la partie «composite», après quelques rappels sur les différentes définitions du mot «composite», nous parlerons des renforts en mettant l'accent sur les renforts du type fibre de verre et des matrices organiques (résines époxydes). Nous présenterons ensuite une étude sur la relation entre les systèmes thermodurcissables et les micro-ondes. Nous insisterons sur les types de procédés de fabrication des matériaux composites et leurs principales caractéristiques en relation avec l'utilisation du chauffage par micro-ondes.

Dans la deuxième partie, qui traite des micro-ondes, nous verrons les rappels les plus importants sur les phénomènes électromagnétiques et sur la propagation des ondes électromagnétiques dans un matériau et dans un guide d'onde. Nous terminons ce chapitre par une présentation des équipements micro-ondes.

I.1. Les matériaux composites

Les matériaux composites à matrice organique disposent d'atouts importants par rapport aux matériaux traditionnels. Ils apportent de nombreux avantages fonctionnels : légèreté, résistance mécanique et chimique, liberté de formes. Ils

permettent d'augmenter la durée de vie de certains équipements grâce à leurs propriétés mécaniques et chimiques. Ils contribuent au renforcement de la sécurité grâce à une meilleure tenue aux chocs et au feu. Ils offrent une meilleure isolation thermique ou phonique et, pour certains d'entre eux, une bonne isolation électrique. Ils enrichissent donc les possibilités de conception en permettant d'alléger les structures et de réaliser des formes complexes. Dans chacun des marchés d'application (automobile, bâtiment, électricité, équipements industriels,...), ces performances remarquables sont à l'origine de solutions technologiques innovantes.

I.1.1. Définitions

Il existe au moins quatre définitions des matériaux composites [I.1]

- **Définition étymologique** : Le mot composite a la même racine latine que le mot composition, ce qui impose l'association volontaire d'éléments préexistants.
- **Définition physique** : Un matériau possède des caractéristiques physiques, chimiques, mécaniques qui peuvent être mesurées sur un échantillon représentatif issu de la structure. Un matériau composite présente deux sous-échelles :
 - Un élément représentatif petit devant la structure,
 - Des renforts petits devant l'élément représentatif.
- **Définition restrictive** : c'est un matériau constitué de fibres de renforcement infiniment longues par rapport à leur diamètre, orientées suivant une ou plusieurs directions de l'espace et noyées dans une matrice. Cette définition est en effet restrictive dans la mesure où elle exclut d'autres types de composites : matériaux à renforts particuliers et matériaux chargés en poudres entre autres.
- **Définition pratique** : de façon courante et pratique, on appelle « matériaux composites » des arrangements de fibres d'un matériau résistant, appelé renfort, qui sont noyées dans une matrice dont la résistance mécanique est beaucoup

plus faible. La matrice conserve aux fibres leur disposition géométrique et leur transmet les sollicitations auxquelles est soumise la pièce.

En effet, un matériau est dit composite lorsqu'il est constitué de deux ou plusieurs éléments distincts et non miscibles dont les qualités se combinent avec coopération ou synergie pour réaliser des propriétés particulières en réponse à un besoin spécifié.

Les matériaux composites les plus répandus sont constitués de deux phases: un matériau résineux, **la matrice**, et un matériau fibreux, **les renforts**.

I.1.2. Matrices polymères

Le premier élément de base des matériaux composites est la matrice : elle est facilement déformable, capable de lier efficacement les fibres entre elles, de leur transmettre les sollicitations et de les protéger [I.2]. Pour lier les fibres entre elles, on utilise généralement des matrices qui se classent en deux grandes catégories: les résines thermodurcissables et les résines thermoplastiques [I.3].

I.1.2.1. Résines thermoplastiques (TP) et solidification

Les résines thermoplastiques présentent la propriété de passer de façon réversible de l'état solide à l'état pâteux ou liquide. Elles sont mises en forme par chauffage, et elles durcissent au cours du refroidissement. Les résines thermoplastiques ont deux graves défauts : une faible tenue en température et peu de résistance aux solvants.

Elles présentent par contre plusieurs avantages :

- La mise en œuvre rapide par thermosoudage.
- La possibilité de retransformation; il est possible de créer des semi-produits (tôle par exemple) qui seront transformables à chaud.
- Elles ont une meilleure ténacité que les résines thermodurcissables.
- Elles devraient donc permettre d'améliorer la tenue au choc des composites.

Les résines thermoplastiques utilisées dans les composites sont principalement :

- le polypropylène (PP)
- les polyamides (PA) 6, 6-6, 12.
- le polyéther-éther-cétone (PEEK)

I.1.2.2. Résines thermodurcissables (TD) et réticulation

Les matériaux composites à matrice thermodurcissable sont fabriqués pour la plupart à partir de résines thermodurcissables sous tous leurs états: liquides, pâtes, mastics, résines solides, souvent pulvérulentes, fusibles et solubles dans les solvants. L'état liquide a été souvent choisi car il favorise l'imprégnation des fibres à la température ambiante compatible avec cet état.

Les matières thermodurcissables sont des réactifs dont la transformation conduit, par une réaction chimique, à des composés macromoléculaires tridimensionnels qui sont des matières thermodurcies ou thermorigides. Elles sont mises en forme et se réticulent selon la forme souhaitée.

La mise en œuvre, sous l'action de la chaleur et/ou de catalyseurs, correspond à la création de nouvelles associations entre les molécules courtes. Cette transformation chimique est irréversible; les nouvelles liaisons sont covalentes et il faut, pour les détruire, des énergies très importantes. Au cours de la mise en œuvre, les produits de base qui étaient liquides deviennent solides, les résines solides qui étaient fusibles et solubles deviennent infusibles et insolubles.

Les principales résines thermodurcissables utilisées dans les composites sont [I.4]:

- **les résines polyester** : elles présentent un bon accrochage sur les fibres, un prix bas, mais ont un retrait important et une tenue réduite à la chaleur humide.
- **les résines phénoliques** : ayant de moins bonnes propriétés mécaniques que les résines époxydes, elles ne sont utilisées que lorsqu'il y a des exigences vis-à-vis de la tenue au feu (toxicité).
- **les résines polyimides** : d'un emploi relativement difficile, chères, elles ont l'avantage de garder de bonnes caractéristiques sur une large plage de température (de - 100 à + 260 °C).

- **les résines époxydes** : ce sont les plus utilisées dans l'industrie aéronautique. Elles présentent un bon accrochage sur les fibres, et de bonnes propriétés mécaniques. Elles gardent d'excellentes caractéristiques jusqu'à une température de 170 °C.

Le matériau de notre étude est un matériau composite à matrice thermodurcissable époxyde. Le terme exact est polyépoxyde mais il est admis de parler d'époxyde et, par abus de langage, d'époxy. Les principales familles de polyépoxydes sont :

- Le diglycidyléther du bisphénol A (DGEBA), la résine la plus ancienne et la plus utilisée. A la base des systèmes dits "120 °C", elle est souvent mélangée à des résines plus performantes pour améliorer la souplesse ou la mise en œuvre ;
- Les diglycidyléthers du bisphénol A et du tétrabromobisphénol A dont le comportement au feu des mélanges est amélioré.
- Les Novolaques (EPN) présentant une meilleure tenue en température et une résistance chimique accrue.
- Les glycidyléthers de méthylènedianiline (TGMDA), à la base des systèmes dits "180 °C"
- Les époxydes cycloaliphatiques qui ont des propriétés mécaniques, électriques, et de résistance au vieillissement supérieures.

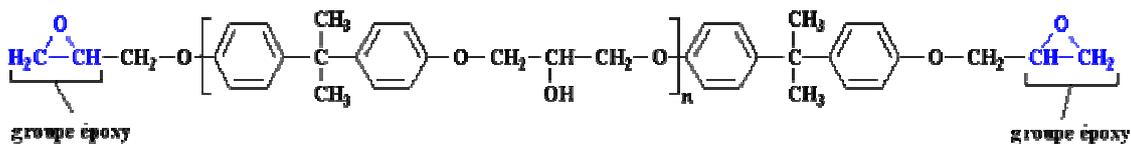


Figure I.1 : Les résines époxydes

1.1.2.3. Réticulation

La réticulation correspond à la formation d'un réseau macro-moléculaire tridimensionnel. Lors de la réticulation, le polymère passe d'un état pâteux ou d'un solide viscoélastique à l'état d'un solide rigide, élastique et infusible.

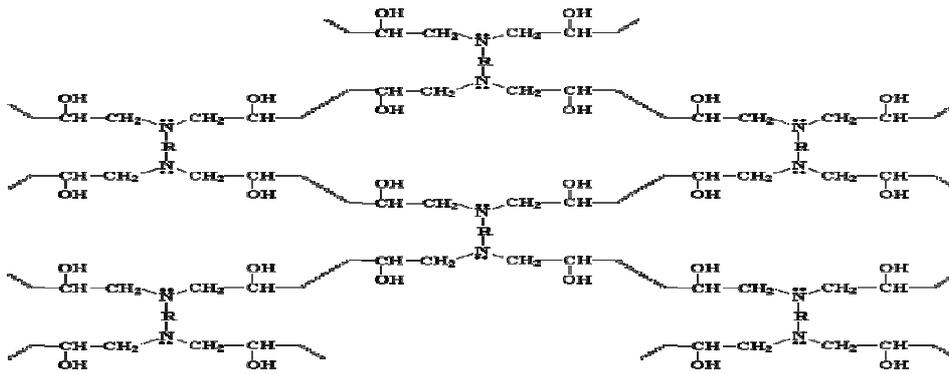


Figure I.2 : La résine époxy après réticulation

I.1.3. Les renforts

Les renforts contribuent à améliorer la résistance mécanique et la rigidité des matériaux composites et se présentent sous forme filamentaire, allant de la particule de forme allongée à la fibre continue qui donne au matériau un effet directif. Ils sont caractérisés par la nature de la fibre, minérale ou organique, et par l'architecture du renfort :

I.1.3.1. Les différentes natures de renfort

Les renforts sont de natures organiques ou minérales, mais nous nous limiterons à l'étude des fibres de verre [I.5]. Elles sont fabriquées par étirage rapide de baguettes de verre de quelques dixièmes de millimètre de diamètre, sortant d'une filière chauffée par effet Joule. L'étirage peut être produit suivant les deux méthodes suivantes :

Le **procédé mécanique**, dénommé *Silionne*, dans lequel l'étirage est réalisé par la traction due à l'enroulement du fil sur une broche tournant à grande vitesse ; on obtient des fils continus ;

Le **procédé pneumatique**, dénommé Verranne, dans lequel l'étirage est produit par entraînement des fibres sous l'action d'un jet d'air sous pression ; on obtient des fibres de faible longueur.

Seul le premier procédé permet d'obtenir des matériaux présentant des caractéristiques mécaniques élevées. Il existe, dans chaque procédé, suivant les compositions chimiques, plusieurs types de verre dont les propriétés caractéristiques sont les suivantes :

- **le verre E** : usage général, bonnes propriétés électriques,
- **le verre D** : hautes propriétés diélectriques,
- **le verre C** : bonne résistance chimique,
- **les verres R ou S** : haute résistance mécanique.

La fibre de verre R ou S a une résistance mécanique élevée et une rigidité moyenne. Sa densité relativement élevée par rapport aux autres fibres explique sa position médiane lorsqu'on la compare du point de vue des propriétés spécifiques aux autres fibres.

I.1.3.2. Architectures de renforcement

Pour améliorer les caractéristiques mécaniques des structures en composites, il faut travailler la texture des renforts (leur architecture) pour créer une charpente résistante adaptée aux contraintes mécaniques. En fonction des propriétés recherchées par l'ensemble mécanique, on rencontre plusieurs architectures de renforcement [I.6]:

- **unidirectionnelle** : les fibres parallèles peuvent être reliées (nappes) ou non (roving) ;
- **multidirectionnelle aléatoire** : les fibres sont soit coupées et broyées, sans arrangement particulier ou soit agglomérées par un liant et former un **mat** à fibres courtes ou continues ;
- **orientée** : le tissu comporte des fils de chaîne ou de trame (fibres bidirectionnelles) ;
- **multidimensionnelle** : pour les applications particulières d'armatures en volume.

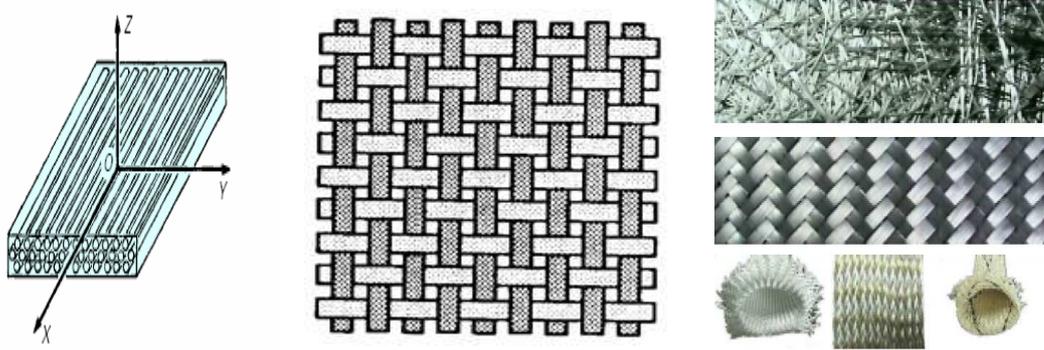


Figure 1.3 : Les différentes architectures

1.1.4. Le chauffage par micro-ondes et les thermodurcissables

L'objectif des études présentées dans ce paragraphe est le chauffage par hystérésis diélectrique (micro-ondes) de matériaux composites à matrice organique thermodurcissable renforcée en fibres de verre.

Plusieurs études ont été menées sur la polymérisation d'un système thermodurcissable par chauffage micro-ondes. Au début des années 60, a été déposé le premier brevet concernant l'utilisation de micro-ondes pour la fabrication de sièges de voitures en polyuréthane. Dans les années 70, les travaux [1.7, 1.8] ont montré la possibilité de réaliser des matériaux composites, à partir de résines polyesters insaturées chargées de billes de verre. En suite, de multiples brevets ont été déposés sur la synthèse ou la réticulation de résines de polycondensation telles que les polyamides, polyimides, résines polyesters, phénoliques ou époxydiques.

Les résultats de WILSON et SALERNO [1.9] sont parmi les premiers travaux portant sur l'étude du comportement sous champ micro-ondes de la réaction d'une résine époxydique, avec un durcisseur aminé. Ils ont réalisé une enquête sur les mécanismes responsables du chauffage de matériaux composites par micro-ondes. Ils viennent en suite les travaux de LOOS et SPRINGER [1.10], puis LEE et SPRINGER [1.11] sur la réticulation par micro-ondes des matériaux composites

verre-époxy et carbone-époxy. Ils ont expérimentés la réticulation de ces matériaux sous pression dans une cavité multimode.

A. GOURDENNE, M. TEFFAL et L. PINQUIE [I.12- I.15] ont étudié la réticulation des échantillons de résines polyesters, polyuréthane, époxydiques et plusieurs variétés des matériaux composites. Par l'utilisation de la technologie micro-ondes en guide d'onde, ils ont réussi à enregistrer et analyser en fonction du temps, la transformation en chaleur de la puissance appliquée. GOURDENNE a observé une augmentation de la puissance absorbée, d'après ses travaux sur les systèmes époxydiques (DGEBA/DDM), qu'il a attribuée à une diminution de la viscosité du système.

Les travaux [I.16-I.17] sur la réticulation de matériaux composites à matrice époxydique ou de poly-styryl-pyridine et à des fibres de verre, de carbone, ou de Kevlar, ont montré que l'utilisation de l'énergie micro-ondes, peut conduire à des gains de temps jusqu'à un rapport 5, et des gains d'énergie jusqu'à un rapport de 10 par rapport à l'énergie conventionnelle, et une amélioration des performances mécaniques.

ShuLin BAI [I.18] dans son travail de thèse qui a été consacré à la caractérisation de la résine époxyde pure (DGEBA-3DCM) réticulée sous micro-ondes, a montré que cette dernière (résine) montre une légère amélioration des propriétés mécaniques par rapport à la résine réticulée thermiquement. Cela se manifeste par une contrainte à la rupture plus grande et un module d'Young plus élevé. Il a expliqué cela par l'homogénéité de la cuisson de chauffage. Il a remarqué également qu'une résine, réticulée sous micro-ondes, vieillie dans l'eau garde son avantage sur une résine réticulée thermiquement.

OLLIVON [I.19] a développé une méthode à l'aide d'une cavité résonnante qui permet d'obtenir directement les paramètres diélectriques du matériau, en fonction de la température de dernier. DELMOTTE et JULLIEN [I.20-I.21] ont étudié également de cette manière la permittivité et les pertes diélectriques de la résine DGEBA à 2,45 GHz en fonction de la température. Ils ont trouvé un maximum de pertes diélectriques au delà de 50 °C, simultanément à un accroissement de la permittivité, ils en ont déduit que le DGEBA présentait une relaxation diélectrique à la

fréquence 2,45 GHz et dans ce domaine de température. Cela les a permis d'expliquer l'accroissement de la puissance absorbée puis, la diminution de cette dernière qui, dans le cas de la réaction d'un système époxy-amine à base de DGEBA, peut être également liée à une consommation des entités relaxantes et/ou à une modification de l'environnement électromagnétique de celles-ci lors de la réaction. Cette relaxation a été attribuée aux deux groupements oxiranes présents dans la molécule de DGEBA : ces groupements fortement polaires, présentent en effet une certaine mobilité due à la liaison éther les raccordant au squelette carboné de la molécule.

De son tour DELMOTTE [I.22] a aussi étudié la permittivité complexe des systèmes DGEBA/ DDM et DGEBA/DDS à différentes concentrations en durcisseur et a proposé une hypothèse de composition linéaire des contributions diélectriques des constituants en présence, pondérée par leurs fractions volumiques respectives. Ses travaux ont mis en évidence une contribution diélectrique d'excès qui est maximum dans les deux systèmes à la composition stoechiométrique. En notant que le DDS, selon un certain protocole, peut être solubilisé dans le DGEBA sans qu'il y ait réaction du cycle d'ouverture du cycle oxirane, il a donné l'hypothèse que cette augmentation des pertes diélectriques est due à un composé ou un complexe transitoire à forte polarité, dans le développement de la cinétique de réticulation parce que le DDS seul, solubilisé dans un environnement constitué de molécules ne présentant pas de moment dipolaire, n'a pas montré de relaxation d'amplitude similaire.

Cependant, les travaux de THUILLIER [I.23] montrent que le DDS présente de très importantes pertes diélectriques après sa fusion.

Les auteurs des travaux [I.24-I.25] ont étudié la polymérisation par micro-ondes en régime pulsé de films de polyuréthanes sur supports de quartz. Ils ont obtenus des durées réduites de traitement à des températures inférieures aux procédés conventionnels. BELDJOURI [I.26] a trouvé que certaines périodes impulsionnelles accélèrent le chauffage et la réticulation de système DGEBA-DDM. En comparant les modules élastiques des produits obtenus, il n'a pas observé de différences. Il a

conclu que l'utilisation de micro-ondes en mode pulsé n'influence pas la structure physico-chimique du réseau obtenu.

En faisant varier la période impulsionnelle, le rapport cyclique et la puissance crête (valeur instantanée maximale de la puissance pendant un certain intervalle de temps), THUILLIER et JULLIEN [I.27- I.29] ont étudié le système DGEBA-DDS. Ils ont trouvé dans leurs études de la température crête du matériau, des périodes impulsionnelles où la puissance crête du signal n'avait pas d'influence sur la réponse du matériau. Ils en ont attribué la cause à des relaxations de segments de chaîne. Ils ont démontré aussi qu'à puissance égale, la période impulsionnelle et le rapport cyclique, pouvaient favoriser la réaction de polymérisation. Ils ont montré que la fréquence impulsionnelle pouvait influencer sensiblement le taux de conversion, lors de l'utilisation de micro-ondes en mode pulsé.

I.1.5. L'élaboration des matériaux composites à matrice polymère

Le problème qui concerne notre étude est globalement la mise en œuvre de la pièce en verre-époxy par chauffage par hystérésis diélectrique. Dans le paragraphe suivant nous allons citer plusieurs exemples de procédés conventionnels qui seront proposés comme pouvant être associés valablement au procédé micro-ondes.

I.1.5.1. Procédés assistés par micro-ondes

Pour mieux connaître ces procédés nous allons tout d'abord citer les avantages qui pourraient favoriser l'application des micro-ondes dans l'industrie. Il est donc normal de faire une comparaison entre les traitements par micro-ondes et les traitements par les méthodes basées sur un apport de chaleur à partir de la paroi chaude des moules.

L'utilisation des composites à matrice polymère pour des pièces industrielles de moyenne et de grande série est souvent difficile et limitée par la durée des opérations d'élaboration due au rôle important joué par la température. Ainsi l'élaboration d'un objet en matériau composite à renfort verre et matrice organique

nécessite une étape de chauffage pour la transformation physico-chimique des constituants de la matrice, c'est-à-dire un apport de chaleur au sein des pièces à élaborer contenues dans des moules fermés.

Un apport de chaleur à partir de la paroi chaude des moules ne facilite pas le transfert jusqu'au cœur des pièces, à cause de la faible conductivité thermique des matériaux polymères. Ce défaut de transfert de chaleur est difficilement compensé par une élévation des températures de surface à cause de la thermodégradation des mêmes matériaux, ce qui rend très difficile la réduction des durées des opérations de traitement. En effet pour augmenter la vitesse de transformation des matériaux polymères il faut élever leur température sachant qu'un polymère est caractérisé par sa faible conductivité thermique et sa forte thermodégradabilité qui limitent l'élévation de la température souhaitée.

*Par contre, l'utilisation du chauffage par **hystérésis diélectrique** apporte la solution à cette limitation. Par son action directe sur le composite, le procédé micro-ondes permet d'agir rapidement au cœur des matériaux mauvais conducteurs de la chaleur sur quelques centimètres d'épaisseur, ou quelques décimètres suivant la fréquence utilisée, en une durée de quelques minutes sans risque de surchauffer la surface du matériau, contrairement au procédé conventionnel.*

L'utilisation de ce type de chauffage (chauffage par hystérésis diélectrique) devrait permettre d'atteindre une uniformité de la distribution des sources de chaleur et de l'élévation de la température, et offre une alternative nouvelle en permettant d'envisager une réponse particulière à notre problème. Dans ce mode de chauffage la distribution spatiale de l'élévation de la température résulte:

- *des densités volumiques de puissance électromagnétique absorbée,*
- *des transferts de chaleur dus à la non-uniformité spatiale éventuelle des densités volumiques des puissances électromagnétiques absorbées,*
- *des échanges de chaleur avec l'extérieur,*
- *de la puissance calorifique due au phénomène d'exothermie des réactions chimiques de réticulation.*

Trois procédés d'élaboration des objets constitués de matériaux composites sont susceptibles, par leurs caractéristiques primaires (application d'une pression hydrostatique, immobilisation de l'objet,...) d'être facilement associés au chauffage par hystérésis diélectrique. Il s'agit des diverses formes du procédé par moulage à paroi chaude, du procédé RTM et de la pultrusion.

I.1.5.2. Procédé RTM

Ce procédé, couramment appelé procédé RTM (Resin Transfer Molding), est aussi appelé procédé d'injection sur renfort [I.31]. Il s'agit d'un moulage par injection basse pression de résine liquide. La pièce est réalisée par infiltration d'une résine thermodurcissable dans une ébauche fibreuse sèche, placée dans un moule fermé ;

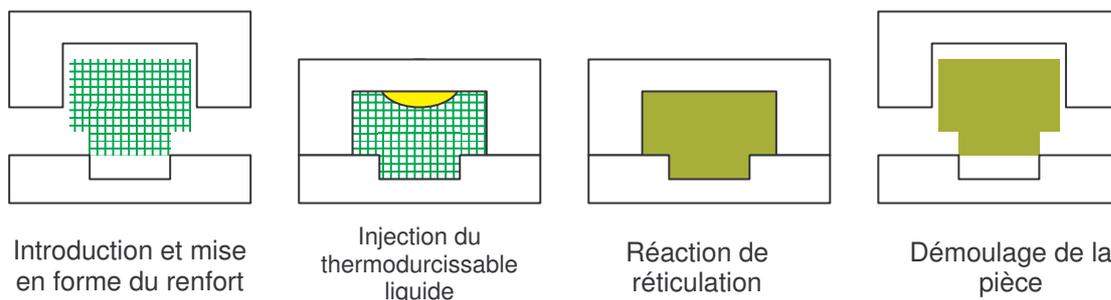


Figure I.4 : Procédé RTM

En effet pour augmenter la vitesse de transformation des matériaux polymères il faut élever leur température sachant qu'un polymère est caractérisé par sa faible conductivité thermique et sa forte thermodégradabilité qui limitent l'élévation de la température souhaitée. Si l'on souhaite augmenter la cadence de production de ce procédé, ne produire que l'échauffement de l'objet sans chauffer le moule réduit effectivement la durée de cycle en réduisant la phase de refroidissement du moule.

I.1.5.3. La pultrusion

Ce dernier procédé a pour objectif de produire des éléments longilignes, constitués de fibres unidirectionnelles de longueur "infinie". Les fibres sont imprégnées d'une matrice thermodurcissable et sont mises en œuvre par la traversée d'un moule-filière chaud permettant la réalisation des réactions de réticulation. Ici encore, ne chauffer que la matrice réactive, sans chauffer le moule-filière permet une meilleure distribution spatiale de la transformation chimique de la matrice.

I.2. Les micro-ondes

Les micro-ondes, sont des ondes électromagnétiques dont le domaine de fréquence est compris entre 300 MHz et 300 GHz. Elles sont également appelées ondes centimétriques car les longueurs d'onde associées vont du millimètre au mètre. Elles sont à l'échelle humaine et, dans le cas du chauffage par micro-ondes, généralement du même ordre de grandeur que les objets constitués des matériaux à traiter. Elles peuvent être parfois appelées hyperfréquences ou ondes centimétriques. Selon la nomenclature officielle, les fréquences utilisées pour le chauffage diélectrique sont situées dans le domaine des radiofréquences, principalement dans la bande HF (high frequency **3 MHz –30 MHz**), VHF (very high frequency, **30 MHz-300 MHz**) ou dans la bande UHF (ultra high frequency, **300MHz-3 GHz**). Quelques domaines peu usités alloués pour le chauffage électromagnétique se situent plus haut en fréquence dans la bande SHF. Les hyperfréquences sont donc situées dans le spectre électromagnétique entre les hautes fréquences et les ondes millimétriques utilisées en radioastronomie qui n'ont pas d'autres applications courantes que celles du radar.

I.2.1. Les phénomènes électromagnétiques

On décrit les phénomènes électromagnétiques par les vecteurs champ et induction électriques \vec{E} et \vec{D} , et par les vecteurs champ et induction magnétiques \vec{H} et \vec{B} qui sont reliés par les relations suivantes [I.32]

$$\vec{D} = \epsilon \cdot \vec{E} \quad \text{et} \quad \vec{B} = \mu \cdot \vec{H} \quad (I.1)$$

où ε et μ représentent respectivement la permittivité et la perméabilité des milieux, et qui sont généralement normalisés par rapport à la permittivité et la perméabilité du vide égales respectivement à $\varepsilon_0 = (36\pi)^{-1} \cdot 10^{-9} \text{ F/m}$ et $\mu_0 = 4\pi \cdot 10^{-7} \text{ H/m}$.

Les équations de Maxwell sont données par les relations suivantes qui sont les lois fondamentales de l'électromagnétisme, gouvernant le comportement des champs électromagnétiques en espace libre ou dans un milieu condensé [I.33]

$$\text{rot } \vec{E}(\vec{r}, t) + \frac{\partial \vec{B}(\vec{r}, t)}{\partial t} = 0 \quad (1.2)$$

$$\text{rot } \vec{H}(\vec{r}, t) = \vec{j}(\vec{r}, t) + \frac{\partial \vec{D}(\vec{r}, t)}{\partial t} \quad (1.3)$$

$$\text{div } \vec{B}(\vec{r}, t) = 0 \quad (1.4)$$

$$\text{div } \vec{D}(\vec{r}, t) = \rho(\vec{r}, t) \quad (1.5)$$

avec :

\vec{r} et t les variables d'espace et de temps,

$\vec{E}(\vec{r}, t)$ le champ électrique en (V/m),

$\vec{B}(\vec{r}, t)$ l'induction magnétique en (Wb/m²),

$\vec{H}(\vec{r}, t)$ le champ magnétique en (A/m),

$\vec{j}(\vec{r}, t)$ la densité de courant en (A/m²),

$\vec{D}(\vec{r}, t)$ l'induction ou le déplacement électrique en (C/m²),

$\rho(\vec{r}, t)$ la densité de charges électriques en (A/m³).

I.2.2. Propagation des ondes

Dans cette partie nous allons voir la propagation d'une onde "en espace libre" dans un matériau, ou dans un guide d'onde.

I.2.2.1. Propagation dans les matériaux

Lorsqu'une onde traverse un dioptré, réalisé par l'interface entre deux milieux dont l'un est constitué d'un objet, une partie de cette onde va être transmise et une autre réfléchi par l'interface. De plus, dans le cas d'un matériau diélectrique avec des

pertes diélectriques, l'onde s'atténue selon une décroissance exponentielle à l'intérieur de l'objet. Si on désigne par [I.34] :

P_{inci} : La puissance incidente,

P_{tran} : La puissance transmise,

$P_{réflé}$: La puissance réfléchie,

P_{dissi} : La puissance dissipée,

dans les matériaux diélectriques avec pertes diélectriques le bilan de puissance s'écrit alors:

$$P_{inci} = P_{réflé} + P_{dissi} + P_{tran} \quad (1.6).$$

La puissance transmise dans un diélectrique est proportionnelle à la puissance incidente, et dépend de ses propriétés diélectriques. Nous observons alors un chauffage diélectrique où l'élévation de la température ΔT est proportionnelle à la puissance dissipée dans le matériau et dépend également de ses propriétés diélectriques.

$$P_{tran} = P_{inci} \exp(-2 \alpha z) \quad (1.7)$$

si α est le coefficient d'atténuation dans le matériau et δ la profondeur de pénétration. On a :

$$\delta = 1/\alpha \quad (1.8)$$

et

$$\alpha = \frac{\omega}{2.c} \cdot \frac{\varepsilon''}{\sqrt{\varepsilon'}} \quad (1.9)$$

avec ε' la permittivité du matériau, ε'' la caractéristique d'absorption du matériau et ω la pulsation de l'onde.

Le coefficient d'atténuation α et la longueur d'onde dans un matériau sont fonctions naturellement du milieu diélectrique, mais également du milieu extérieur. La puissance transmise est donc fonction de la nature libre ou guidée de l'onde incidente. L'onde transmise dans un diélectrique dépend de son environnement

(onde en propagation libre ou onde véhiculée dans un guide entièrement ou partiellement rempli, par exemple).

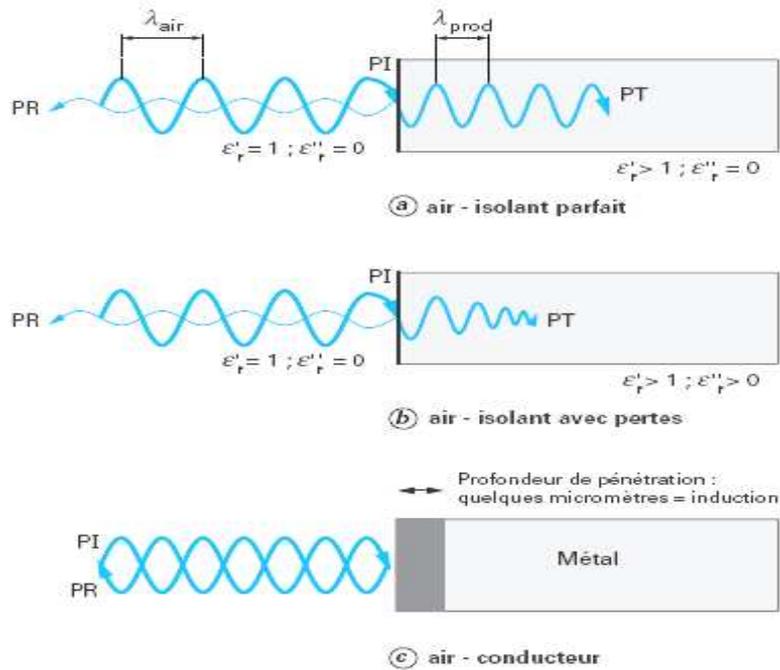


Figure 1.5 : Propagation dans un diélectrique et au voisinage d'une interface métallique

1.2.2.2. Propagation dans un guide d'onde

Le guide d'onde est une structure ou une enveloppe métallique entourant un diélectrique qui permet de propager les ondes électromagnétiques dans un secteur confiné dans le but d'orienter la propagation et d'accroître le bilan énergétique entre la source et l'objet, récepteur d'onde.

Pour les fréquences élevées (domaine des micro-ondes), le transport d'énergie s'effectue à partir d'un guide d'onde qui présente une perte en ligne plus faible que celle d'une ligne coaxiale. Un guide d'onde se présente sous forme d'un tube métallique dans lequel l'onde et l'énergie se propagent dans le diélectrique intérieur. La section peut être circulaire, rectangulaire, elliptique. Dans la majeure partie des applications industrielles, la section est rectangulaire.

Le mode de propagation de l'énergie dans un guide d'onde est caractérisé par la distribution des champs électrique et magnétique à laquelle est associée la distribution des courants circulant dans les parois internes du guide d'onde.

Dans les guides d'onde rectangulaires, pour assurer le meilleur transfert d'énergie, les dimensions sont habituellement choisies pour que la propagation de l'onde s'effectue selon un seul mode, le mode TE₀₁. Dans cette configuration, comme le montre la figure I.6, le champ électrique est perpendiculaire aux deux grands côtés du guide d'onde, maximum au centre, et nul au niveau des petits côtés. La distribution des courants associés autorise la réalisation de fentes dans l'axe de propagation du guide, dans un plan médian et orthogonal aux deux grands côtés de la structure ou sur les petits côtés suivant la hauteur de ce dernier. Toute ouverture de forme différente se traduit par des fuites (système utilisé pour certaines antennes ou applicateurs). Les dimensions du guide d'onde sont normalisées suivant la fréquence d'utilisation.

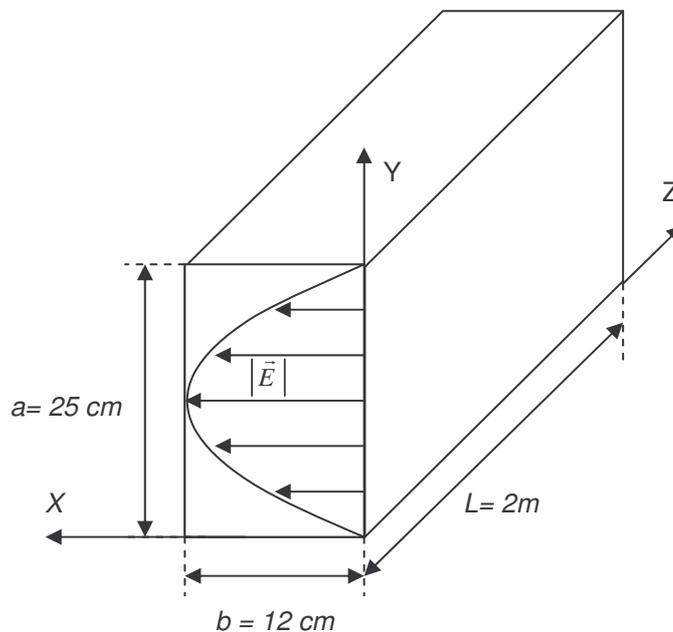


Figure I.6 : Mode TE₀₁ dans l'applicateur vide et ses dimensions

La dimension a conditionne la propagation. Pour une cote inférieure à la longueur d'onde dite de coupure, l'onde devient évanescente, elle ne peut plus se propager. Le phénomène résultant du transfert d'énergie par "ricochet" ou "réflexion sur les parois", la longueur d'onde de coupure conditionne la longueur d'onde dans le guide, appelée longueur d'onde guidée. Dans un guide rectangulaire, la relation liant la longueur d'onde en espace libre et la longueur d'onde guidée est la suivante (pour le mode de propagation fondamental):

$$\frac{1}{\lambda_g^2} = \frac{1}{\lambda_0^2} - \frac{1}{\lambda_c^2} \quad (I.10)$$

λ_g est la longueur d'onde dans le guide (m).

λ_0 est la longueur d'onde dans le vide, donnée par la relation : $\lambda_0 = C/f$.

f est la fréquence de propagation d'onde égale à 915 MHz dans notre cas.

C est la vitesse de la lumière dans le vide $3 \cdot 10^8$ m/s.

λ_c est la longueur d'onde du coupure égale à $2 G_d = 0.5$ m dans le cas de notre guide,

avec :

G_d : la grande dimension du guide,

λ_c : la longueur d'onde de coupure.

I.2.2.3. Conditions aux limites

Les conditions aux limites à la surface du guide d'onde plongé dans un diélectrique homogène et isotrope sont [I.36] :

- La présence d'un champ électrique normal à la surface du guide, qui est une paroi métallique (condition aux limites des conducteurs),
- La présence d'un champ magnétique tangentiel à la surface du guide.

La propagation dans un guide sera possible si la section droite du guide a des dimensions suffisamment grandes devant la longueur d'onde en espace libre λ_0 .

La condition à respecter est donc :

$$\lambda_c = 2 \cdot G_d > \lambda_0 \quad (I.11)$$

I.2.3. Les modes de propagation

Les distributions particulières de propagation des champs électromagnétiques résultant des multiples réflexions sur les parois internes du guide lors de la propagation au sein de ce dernier, s'appellent les modes de propagation. Ils résultent de la nécessité de toujours satisfaire les conditions aux limites sur les parois du

guide; la propagation d'onde dans ce dernier (le guide) peut correspondre à trois cas suivants:

- Soit le champ électrique est seul transverse (modes TE, transverse électrique défini par $E_z = 0$),
- Soit le champ magnétique est seul transverse (mode TM, transverse magnétique, défini par $H_z = 0$),
- Soit ni le champ électrique, ni le champ magnétique, ne sont transverses (modes HEM, modes hybrides).

On parlera alors selon le cas des modes TE_{m,n}, TM_{m,n} ou HEM_{m,n} décrivant les distributions des champs électromagnétiques par une fréquence de coupure $(f_c)_{m,n}$, où m, n sont des couples de valeurs entières qui caractérisent la suite discrète de solutions des équations de propagation.

$$\Delta E_z + (k^2 - k_g^2) E_z = 0 \quad (I.12)$$

ou

$$\Delta H_z + (k^2 - k_g^2) H_z = 0 \quad (I.13)$$

avec k_g la constante de propagation en guide

et

$$k^2 = k_c^2 + k_g^2 \quad (I.14)$$

avec : k_c la constante de coupure.

I.2.4. Réflexions d'ondes

Dans un milieu homogène et isotrope, l'onde électromagnétique se propage en ligne droite. Lors d'un changement de milieu de propagation, une partie de l'onde électromagnétique est renvoyée vers le milieu d'origine.

I.2.4.1. Coefficient de réflexion

Le coefficient de réflexion est le rapport entre la puissance de l'onde réfléchie et la puissance de l'onde incidente. On obtient ainsi le pourcentage de l'onde réfléchie.

Dans une propagation où le régime résulte de la réflexion aux diverses interfaces et n'est pas parfaitement progressif, le champ électrique total est la somme des champs électriques incident E^+ et réfléchi E^- . Le champ électrique s'écrit en un point de la ligne d'abscisse z :

$$E(z) = E^+(z) + E^-(z) \quad (I.15)$$

I.2.4.2. Taux d'ondes stationnaires (TOS)

Le rapport du module du champ électrique du signal maximum et de celui du signal minimum s'appelle le taux d'ondes stationnaires T.O.S. Il s'exprime par la relation suivante :

$$TOS = E_{max}/E_{min} \quad (I.16)$$

où E_{max} et E_{min} sont les modules des champs électriques.

Lorsque le TOS est égal à un, le régime de propagation est totalement progressif sans ondes stationnaires. Si le TOS est supérieur à un, cela signifie qu'il existe des réflexions aux interfaces. Le TOS peut tendre vers l'infini pour un régime réalisé par une réflexion totale sur un court-circuit métallique.

I.2.5. Equipements micro-ondes

Les trois éléments principaux qui constituent le dispositif micro-ondes sont :

- Le générateur équipé d'un tube magnétron qui transforme l'énergie électrique en énergie micro-ondes,
- Les éléments d'adaptation et de mesure,
- L'applicateur, où le matériau à traiter est disposé.

I.2.5.1. Générateur

Le constituant principal du générateur micro-ondes est le magnétron. Le rôle du magnétron est de produire une tension électrique alternative à la fréquence de

915MHz servant à alimenter une antenne. Le magnétron, en général de structure cylindrique, est un tube constitué comme une diode classique. Il comporte une cathode centrale, qui émet des électrons, et une anode concentrique externe percée de cavités résonnantes.

Un champ électrique de direction radiale est appliqué entre l'anode et la cathode. Un champ magnétique uniforme de direction parallèle à l'axe du tube est créé par des aimants ou bobines. La cathode émet des électrons qui sont accélérés par le champ électrique suivant des trajectoires radiales vers l'anode. L'association des deux champs électrique et magnétique confère aux électrons un mouvement de giration. Ce mouvement provoque la résonance électrique des cavités, et comme les cavités de l'anode sont couplées, cette résonance est transmise à une antenne placée dans l'une des cavités et reliée au milieu extérieur, ce qui permet d'émettre la puissance électromagnétique.

La fréquence et la puissance émises par l'antenne du magnétron dépendent de paramètres dimensionnels, de paramètres électriques et de paramètres magnétiques. Ainsi un générateur micro-ondes est caractérisé par la puissance émise par l'antenne du magnétron et la fréquence de l'onde émise ainsi que la puissance qu'elle transporte suivant le régime de propagation dans le volume entourant l'antenne.

1.2.5.2. Eléments d'adaptation et de mesure

Les trois éléments principaux constituent les éléments d'adaptation et de mesure du dispositif micro-ondes sont :

- le guide d'ondes rectangulaire,
- l'isolateur,
- le coupleur directif.

1.2.5.2.1. Guide d'ondes rectangulaire

Le rôle du guide d'ondes est d'assurer le transport des ondes. Le guide utilisé est un guide E en aluminium, dont les dimensions de la section transversale sont les

suivantes : 120 mm pour le petit côté noté b , et 250 mm pour le grand côté noté a , section telle que seul le mode fondamental TE_{01} se propage à la fréquence de 915MHz. Pour un tel guide on a une longueur d'onde λ_g de 433 mm.

I.2.5.2.2. L'isolateur

L'isolateur est un ensemble formé par les deux éléments suivants : un circulateur et une charge à eau.

Le circulateur est placé entre la source micro-ondes et le circuit d'utilisation, et sert à protéger le magnétron des réflexions d'ondes, tout en ne perturbant pas l'onde incidente émise par le magnétron en direction de l'applicateur contenant le matériau à traiter. Il est constitué d'un noyau de ferrite à aimantation permanente. Le circulateur, dont la structure est en forme d'un té, sert de sens giratoire pour l'onde, c'est-à-dire que l'onde incidente située dans une des trois voies ne se retrouve que dans une seule des deux autres voies restantes.

La charge à eau est utilisée dans le but d'assurer un régime d'ondes progressives au sein de l'applicateur micro-ondes. Son rôle est d'empêcher une réflexion de l'onde, et donc d'assurer l'établissement d'un régime d'onde progressive, par une absorption totale d'une éventuelle énergie résiduelle en extrémité d'applicateur. C'est pourquoi souvent les applicateurs se terminent par une charge à eau. Généralement, l'association du circulateur à une seconde charge absorbante, telle qu'une charge à eau, est utilisée dans le cas où le matériau présente une trop forte réflexion. De cette façon, l'onde réfléchie vers le générateur est déviée par la ferrite puis absorbée totalement par la charge à eau.

I.2.5.2.3. Le coupleur directif

Le coupleur directif permet la mesure précise de la puissance véhiculée par l'onde dans un circuit micro-ondes. La méthode consiste à dévier une faible partie de la puissance électromagnétique par prélèvement de celle-ci par une antenne reliée à un bolomètre, lui-même relié à un wattmètre. Par exemple pour mesurer la puissance véhiculée par l'onde arrivant en 1 et sortant en 2, dans le cas d'un

isolateur, une très faible partie de cette puissance un millionième précisément ($1/1000000$) sera prélevée par l'antenne puis mesurée à l'aide du wattmètre.

1.2.5.3. L'applicateur

L'applicateur est l'élément essentiel du dispositif car il permet le transfert de l'énergie électromagnétique provenant du générateur au sein de l'objet constitué du matériau à traiter. Sa conception dépend non seulement de la nature, de la forme, et des dimensions des produits à traiter mais aussi de la fréquence de travail ainsi que de la puissance mise en œuvre. On peut les classer en deux types d'applicateurs : les applicateurs monomodes et les applicateurs multimodes. Un applicateur monomode est défini par un seul mode de propagation transportant la puissance. Un applicateur multimode, comme son nom l'indique, est caractérisé par un nombre de modes de propagation important. L'apparition de plusieurs modes de propagation provient de l'augmentation des dimensions de l'applicateur. De ce fait, la propagation des ondes devient complexe et variée. Généralement, les enceintes multimodes sont employées pour les grands volumes, dans le but d'obtenir une certaine distribution des points à champ fort. La propagation des ondes peut s'y faire suivant différents régimes :

- *Régime d'ondes stationnaires* : ce régime est défini par une succession alternative de nœuds (points à champ nul) et de ventres (zones à champ fort) d'énergie séparés d'une longueur constante et égale à $\lambda_g/4$. Le matériau à élaborer est placé dans un ventre d'énergie où le champ électrique est maximal. Ce mode de traitement est tout à fait adapté aux objets de faible volume, c'est-à-dire de très faible dimension devant la longueur d'onde de propagation.
- *Régime d'ondes progressives*: ce régime est caractérisé par une charge terminant le circuit micro-ondes empêchant toute réflexion d'ondes. Dans ce cas, la puissance véhiculée par l'onde le long de l'applicateur contenant le produit à traiter décroît exponentiellement du fait de l'absorption de l'énergie par le produit, dans le cas général.

Conclusion

Ce chapitre traite des procédés d'élaboration de matériaux composites, ainsi le procédé assisté par le chauffage par hystérésis diélectrique.

Dans la première partie, nous avons défini le matériau composite. Dans notre cas il s'agit d'un composite à matrice thermodurcissable (DGEBA/DDA) associée à des fibres de verre unidirectionnelles, c'est pourquoi une étude de ces deux constituants de base, résine et renfort, a été menée.

Dans un premier temps, nous nous sommes donc intéressés aux matériaux composites et aux différents renforts et matrice, ainsi qu'aux différentes architectures de renforcement. Nous avons présenté, par la suite, les différentes études concernant les micro-ondes et les systèmes thermodurcissables.

Dans un deuxième temps nous nous sommes intéressés aux procédés de mise en oeuvre de ces matériaux. Nous avons donc cité le procédé micro-ondes basé sur le chauffage par hystérésis diélectrique, notamment dans son association avec le procédé RTM et la pultrusion.

Dans la deuxième partie nous avons décrits les phénomènes électromagnétiques et nous nous sommes intéressés à la propagation des ondes dans les matériaux et dans les guides d'ondes. Nous avons ensuite présenté les conditions aux limites et la condition de propagation, puis les modes de propagation. Nous avons terminé ce chapitre par une étude sur les équipements micro-ondes.

Références bibliographiques I

- [I.1] C. PILOT, *Les principaux matériaux composites : Applications- Techniques de mise œuvre*, GFP, Vol.7, 385
- [I.2] D. GAY, *Matériaux composites*, Hermès, Paris (1989)
- [I.3] NODAL CONSULTANTS, *L'industrie française des matériaux composites*, DIGITIP, Rev. 2, 13 mai 2002.
- [I.4] J.J. BARRAU et D. GUEDRA DEGEORGES, *Structures en matériaux composites*, *Techniques de l'Ingénieur BM 5 080-1*
- [I.5] D. GUILLON, *Référence: Fibres de verre de renforcement*, *Techniques de l'Ingénieur, traité Plastiques et Composites A 2 110 - 1*
- [I.6] G. NEMOZ, *Textures textiles tridimensionnelles*, *Techniques de l'Ingénieur, traité Plastiques et Composites AM 5 122*
- [I.7] K. KAWASA, K. HAYAKAWA, brevet japonais, n°74. 42522, 15.11.1974
- [I.8] K. ONO, M. KITAMURA, T. SHIGETA, T. NISHNURA, H. SHIKUMA brevet japonais, n°75. 20 984, 18.07.1975
- [I.9] L. K. WILSON, J. P. SALERNO, *Microwave curing of epoxy resins*, rapport univ. Vanderbilt, ref A.D. -A067732. dept. Electr. Eng., Nashville (TN), USA, 1978.
- [I.10] A. C. LOOS, G. S. SPRINGER, *Curing of graphite/ epoxy composites*, rapport univ. Michigan, ref AFWAL-TR-83-4040. Dept. Electr. Eng., and applied mechanics, ann Arbor(MI), USA, 1983.
- [I.11] W. I. LEE et G. S. SPRINGER, *J. COMPOS. Mater.*, 18(4), 357
- [I.12] A. GOURDENNE, A. M. MAASARINI, P. MONCHAUX, S. AUSSUDRE, L. THOUREL, *Polymer Prepr.*, 1979, 20(2), 471.
- [I.13] A. GOURDENNE, *polymer Preprints*. 1981, 22(2), 125.
- [I.14] M. TEFFAL et A. GOURDENNE, *Activation of radical polymerization by microwaves. Polymerization of 2-Hydroxythyl methacrylate*. *Eur. Polymer J.*, 1983, 19, 543.
- [I.15] L. PINQUIE, *Réticulation sous micro-ondes des mélanges prépolymères résines époxyde/Diamino-diphenyl-Sulfone*, Thèse, Toulouse, 1988.
- [I.16] H. JULLIEN, M. DELMOTTE, F. M. THUILLIER, H. VALOT, D. BOULONNAIS, J. SAILLEAU, A. PRIOU, et S. AUSSUDRE, *Rapport final contrat DRET, N85002*. Doc. ONERA, N°3/1324 MO, 1986.

- [I.17] S. AUSSUDRE, A. PRIOU, H. H. JULLIEN, M. DELMOTTE, F. M. THUILLIER, D. BOULONNAIS et J. SAILLEAU, *la recherche aérospatiale*, 1988, N°5,1.
- [I.18] ShuLin BAI, *Caractérisation mécanique d'un composite unidirectionnel fibres de verre-E/ matrice époxyde élaboré sous micro-ondes*. Ecole centrale de Paris 1993.
- [I.19] M. OLLIVON, S. QUINQUENET, M. SERAS, M. DELMOTTE et C. Moré, "Microwave dielectric measurements during thermal analysis", *Thermochimica Acta*, 1988, 125, pp.141-153.
- [I.20] M. DELMOTTE, H. JULLIEN, *Makromol. Chem., Macromol. Symp.*, 1987, 9, 185.
- [I.21] M. DELMOTTE, H. JULLIEN, *Journées d'études «Les applications énergétiques des micro-ondes» SEE/CFE edit., Paris, 1987, 23.*
- [I.22] M. DELMOTTE, H. JULLIEN and M. OLLIVON, *Variations of the dielectric properties of epoxy resins during microwave*, *Eur. Polymer J.*, 1991, 27, 371.
- [I.23] F. M. THUILLIER, *Réticulation de résines époxy sous micro-ondes, en régime pulsé et continu. Influence des paramètres définissant le champ électrique sur la réponse thermique et les propriétés structurales du matériau*. Thèse, Univ. P. et M. curie, Paris, 1987.
- [I.24] H. JULLIEN et H. VALOT, *Behaviour of film-forming polymers in a microwave electric field*, *Polymer*, 1983, 24, 810.
- [I.25] H. JULLIEN et H. VALOT, *Polyurethane curing by a pulsed microwave field*, *Polymer*, 1985, 26, 506.
- [I.26] N. BELDJOUDI, A. BOUAZIZI, D. DOUIBI and A. GOURDENNE, *Microwave curing of epoxy resins with diaminodiphenylmethane II. Crosslinking under continuous or pulsed waves*, *Eur. Polymer J.*, Volume 24, Issue, 1988, pp,49-52.
- [I.27] F. M. THUILLIER, *Réticulation de résines époxy sous micro-ondes, en régime pulsé et continu. Influence des paramètres définissant le champ électrique sur la réponse thermique et les propriétés structurales du matériau*. Thèse, Univ. P. et M. curie, Paris, 1987.
- [I.28] F. M. THUILLIER H. JULLIEN, M. GRENIER-LOUSTALOT, *Polymer Communic.* 1986, 27, 206.
- [I.29] F. M. THUILLIER H. JULLIEN, *Microwave crosslinking of epoxy/aromatic diamine systems : process and characterization of the networks*, *Makromol. Chem., Macromol. Symp.*, 1989, 25, 63.
- [I.30] D. CARRONIER et D. GUY *approche intégré du RTM*. Paris hermès 1996 P. 100

[I.31] G. FOURNET, *Electromagnétique à partir des équations locales*. Masson, 1980. p. 505.

[I.32] J. P. PEREZ, R. CARLES and R. FLECKINGER, *Electromagnétisme- Fondements et applications*, 3eme édition, MASSON

[I.33] J. F. SACADURA, *Initiation aux transferts thermiques- Technique et Documentation*, Lavoisier, Paris, 1982, P. 446.

[I.34] N. PINTO-GATEAU "Des équations de Maxwell aux conditions de résonance", *Mémoire annexe de la thèse de doctorat intitulée "Chauffage micro-ondes et résonance dimensionnelle. Des concepts aux applications en géométrie cylindrique"*, Université de Bourgogne, Dijon, 1995.

Chapitre II :
Modélisation électromagnétique

Introduction

Contrairement aux apports de chaleur conventionnels, tels que l'apport de chaleur par paroi chaude, l'élaboration sous micro-ondes de matériaux composites à matrice thermodurcissable est un procédé avantageux du point de vue énergétique, parce qu'il permet un gain de temps appréciable pour les grandes séries, comptes tenus des propriétés diélectriques et thermiques de ces matériaux [II.1]. Les avantages offerts par le procédé micro-ondes, tels que la rapidité du chauffage en volume, a permis le développement de cette technologie pour les traitements des matériaux diélectriques, souvent mauvais conducteurs de la chaleur mais très bons capteurs de l'énergie électromagnétique. Les sources de chaleur micro-ondes sont directement engendrées au cœur du matériau.

Toutefois, les micro-ondes présentent des difficultés de mise en œuvre liées à la structure spatiale des sources de chaleur d'origine électromagnétique au sein du produit, à cause de deux problèmes majeurs, et ceci quel que soit le type d'applicateur utilisé. Le premier problème est le régime d'ondes stationnaires identifié par des zones chaudes et des zones froides. Ces zones chaudes sont séparées d'une longueur constante, dans les cas les plus simples, égale à la moitié de la longueur d'onde guidée λ_g . Ces ondes stationnaires sont dues aux multiples réflexions de l'onde incidente aux interfaces internes du matériau. Ce premier problème est résolu en utilisant une adaptation convenable. D'autre part, il est bien connu que si on dispose un produit présentant un fort coefficient d'absorption ϵ'' sous un champ micro-ondes, on constate rapidement l'établissement de forts gradients de température à l'intérieur du produit. Cela est dû à l'atténuation de la source de chaleur d'origine électromagnétique qui représente le second problème majeur de ce procédé, qu'il faut résoudre.

De plus, l'élaboration thermique de pièces épaisses à partir d'un matrice réactive nécessite la maîtrise constante de l'incrément de température, en tout point du matériau à transformer, et donc, la maîtrise des sources de chaleur dans le temps et dans l'espace. Dans le contexte du chauffage par hystérésis diélectrique, la connaissance de la distribution spatiale de la densité volumique de puissance

électromagnétique absorbée, c'est-à-dire la connaissance de la distribution spatiale de l'amplitude du champ électrique, peut assurer cette maîtrise des sources de chaleur et tendre vers leur uniformité spatiale, comme voudrait le suggérer la formule de la puissance dissipée.

Plusieurs études ont été faites avant la nôtre [II.2] où les auteurs ont essayé de résoudre les équations de Maxwell analytiquement pour obtenir la distribution spatiale complète du champ électrique et la puissance électromagnétique à l'intérieur d'un applicateur, avec un chargement symétrique comprenant deux matériaux diélectriques. Le premier matériau diélectrique, celui qu'il faut traiter, est positionné au centre de l'applicateur entre deux couches symétriques du second matériau diélectrique.

D'après JAO-JULES [II.3] , qui a résolu les équations de Maxwell dans le but d'obtenir la distribution transverse du champ électrique, l'avantage de la résolution analytique par rapport à un modèle numérique, est que ce dernier ne prend pas en compte les caractéristiques du mode de propagation.

L'objectif de notre étude n'est pas la résolution analytique des équations de Maxwell, mais strictement une résolution numérique de ces équations par une méthode utilisant les éléments finis, pour l'obtention de la distribution spatiale du champ électrique d'une onde se propageant dans un applicateur rempli symétriquement et complètement par trois diélectriques différents. Le premier diélectrique est placé au centre de l'applicateur et représente dans ce cas l'éprouvette à élaborer, entourée par le deuxième diélectrique qui représente ici le moule. La hauteur de l'applicateur est complétée par le troisième diélectrique qui interagit peu avec les ondes (offrant peu de réflexion aux ondes ni d'absorption excessive d'énergie électromagnétique).

Le présent chapitre, concernant la modélisation électromagnétique, est une étape fondamentale pour une bonne maîtrise thermique du procédé de chauffage basé sur l'hystérésis diélectrique. Nous la jugeons très importante pour la suite de notre travail.

Après la présentation de l'outil informatique, nous présenterons les conditions aux limites et la procédure utilisée dans cette étude.

Nous présenterons par la suite les résultats de la modélisation électromagnétique dans un guide d'onde vide et rempli par un seul matériau puis par plusieurs matériaux diélectriques. Cette étude est complétée par un calcul du taux d'ondes stationnaires dans le guide d'onde.

Nous réalisons dans un deuxième temps une étude de l'influence de quelques paramètres (dimensionnels et diélectriques) sur le profil du champ électrique longitudinal et transversal dans le composite à élaborer.

Avant de conclure ce chapitre, nous présenterons une étude sur la résolution du problème de l'atténuation des ondes micro-ondes dans la direction de propagation des ondes.

II.1. Le choix de l'outil de calcul

La modélisation des champs électromagnétiques dans un guide rectangulaire rempli de plusieurs diélectriques comme le montre la figure II.1, fait appel à des outils informatiques développés comme FEMLAB qui est très utilisé dans la recherche et l'éducation.

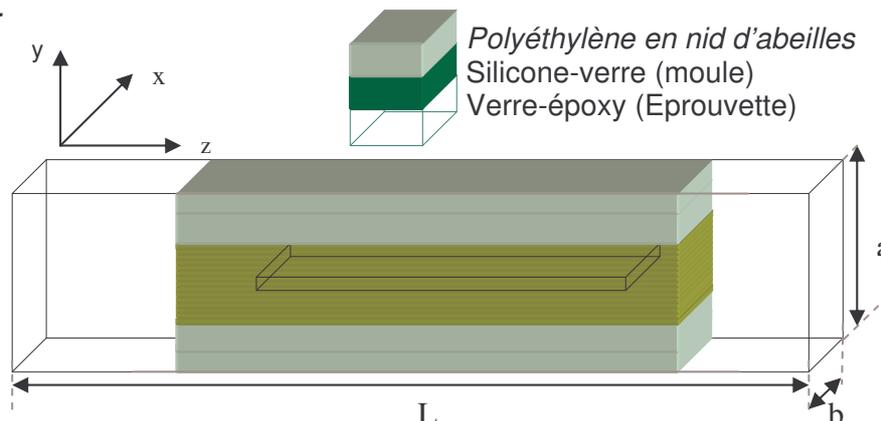


Figure II.1 : Applicateur rempli par trois diélectriques

FEMLAB est un environnement interne à MATLAB, dédié à la modélisation et la simulation de tout phénomène physique descriptible sous la forme d'Equations aux Dérivées Partielles (EDP); il est doté d'une interface graphique; il utilise une

approximation par la méthode des éléments finis, avec un maillage automatique de la géométrie en triangles ou en tétraèdres. FEMLAB propose des solveurs performants qui peuvent résoudre des problèmes de très grande taille en apportant des résultats rapides et précis. Grâce à ces modèles prédéfinis ou à ses modes d'applications optimisées, FEMLAB nous permet de modéliser simplement la plupart des phénomènes physiques. Pour les applications plus pointues, nous avons en outre la possibilité de travailler directement sur les équations et de les modifier selon nos besoins spécifiques.

II.2. Modélisation du profil du champ électromagnétique

Le choix du mode fondamental TE_{01} , obtenu pour un applicateur parallélépipédique donne les volumes à distribution spatiale du champ électrique les plus uniformes. Si nous distinguons les trois directions de l'espace, dans une première direction correspondant à l'indice 0 du mode, le champ électrique est constant, et le vecteur champ électrique est porté par cette même direction. Dans l'autre direction qui est perpendiculaire à la première direction et à la direction de propagation, l'amplitude du champ électrique suit une loi sinusoïdale à un seul maximum ou une loi approchée présentant un maximum plus élargi dépendant de la constitution de la charge diélectrique de l'applicateur. Dans la troisième direction, l'amplitude du champ suit une atténuation exponentielle due à l'absorption d'énergie dans la direction de la propagation.

L'uniformité du champ électrique suivant la première direction permet également l'approximation ou la limitation d'une modélisation électromagnétique en deux dimensions (2D) d'un guide d'onde rectangulaire rempli avec trois diélectriques et la réduction du temps de calcul.

La recherche de la distribution du champ électromagnétique dans un applicateur rempli de trois diélectriques est passé d'un problème simple : guide d'onde vide à un problème complexe : applicateur rempli par trois diélectriques avec absorption par le noyau central (épreuve). La variation de l'absorption a pour conséquence la

variation du profil du champ dans l'éprouvette ainsi que dans tout l'applicateur. Ceci a son importance lorsque l'on sait que le coefficient d'absorption varie avec la température pendant l'élaboration [II.4]. Nous rappelons qu'une étude sur la caractérisation diélectrique est détaillée dans le chapitre IV.

II.2.1. Les conditions aux limites

Dans ce qui suit de cette étude, les conditions aux limites sont les suivantes :

Aux parois : Les parois de l'applicateur sont en aluminium, elles peuvent être traitées comme un conducteur électrique parfait. Dans ce cas, le matériau conducteur peut être assimilé à un milieu de permittivité infinie. La quasi-totalité de l'onde incidente est réfléchiée. La quasi-totalité de l'onde transmise au sein du matériau conducteur est dissipée sur une très faible épaisseur correspondant à l'effet de peau [II.5] et reste très faible. On gardera toujours l'hypothèse de la composante tangentielle du champ électrique, nulle ($E_{tg}=0$)

A l'entrée du guide : En pratique, à l'entrée de l'applicateur, il y a le générateur, qui est composé d'un magnétron et d'un dispositif qu'on appelle le circulateur.

Le rôle de ce dernier est d'empêcher toute réflexion de l'onde en retour vers la source micro-ondes. Le magnétron est le premier constituant du générateur micro-onde. Sa fonction est de produire une tension électrique alternative de très haute fréquence.

La source micro-onde située à l'entrée du guide produite par le générateur à $z = 0$ est représentée par E_x donné par la relation suivante:

$$E_x = E_{\max} \sin(\pi * \frac{y}{a}) \quad (II.1)$$

avec $E_{\max} = 9120 \text{ V.m}^{-1}$, correspondant à une puissance de 1250W à l'entrée de l'applicateur donnée par la relation suivante [II.6] .:

$$P = \frac{\lambda_0}{\lambda_g} \cdot \frac{\epsilon_0 \cdot E_{\max}^2}{4} \cdot C \cdot \epsilon_r^{1/2} \cdot a \cdot b \quad (II.2)$$

avec λ_0 la longueur d'onde dans un espace libre et λ_g la longueur d'onde guidée calculée par la relation (II.7) et a et b , les dimensions de la section transversale du guide. ϵ_r la permittivité de l'air.

A la sortie de l'applicateur: En pratique, les applicateurs sont souvent terminés par une charge à eau. Cette dernière, qui se trouve à la sortie du guide, a pour rôle d'empêcher le retour des ondes par absorption des ondes transmises pour avoir un régime progressif dans le système. Cette charge joue le rôle d'une masse absorbante; elle est représentée par une constante de propagation k_g [II.6] donnée par la relation II.3. Cette constante définit une propagation vers l'infini, sans réflexion et sans atténuation.

$$k_g = \sqrt{(\omega^2 \epsilon_0 \mu_0) - (\pi/a)^2} \quad (II.3)$$

où $\mu_0 = 4\pi \cdot 10^{-7} \text{H.m}^{-1}$ et $\epsilon_0 = (36\pi)^{-1} \cdot 10^{-9} \text{F.m}^{-1}$ sont respectivement la perméabilité et la permittivité du vide. a est la hauteur du guide égale à 0.25 m.

II.2.2. La procédure de la modélisation électromagnétique

La modélisation électromagnétique consiste à résoudre l'équation de propagation d'onde (II.4) déduite des équations de Maxwell, dans un guide d'onde vide ou rempli par plusieurs matériaux diélectriques.

$$\frac{\partial^2 E_x}{\partial y^2} + \frac{\partial^2 E_x}{\partial z^2} = -\epsilon\mu\omega^2 E_x \quad (II.4).$$

Ainsi la procédure se déroulera comme suit:

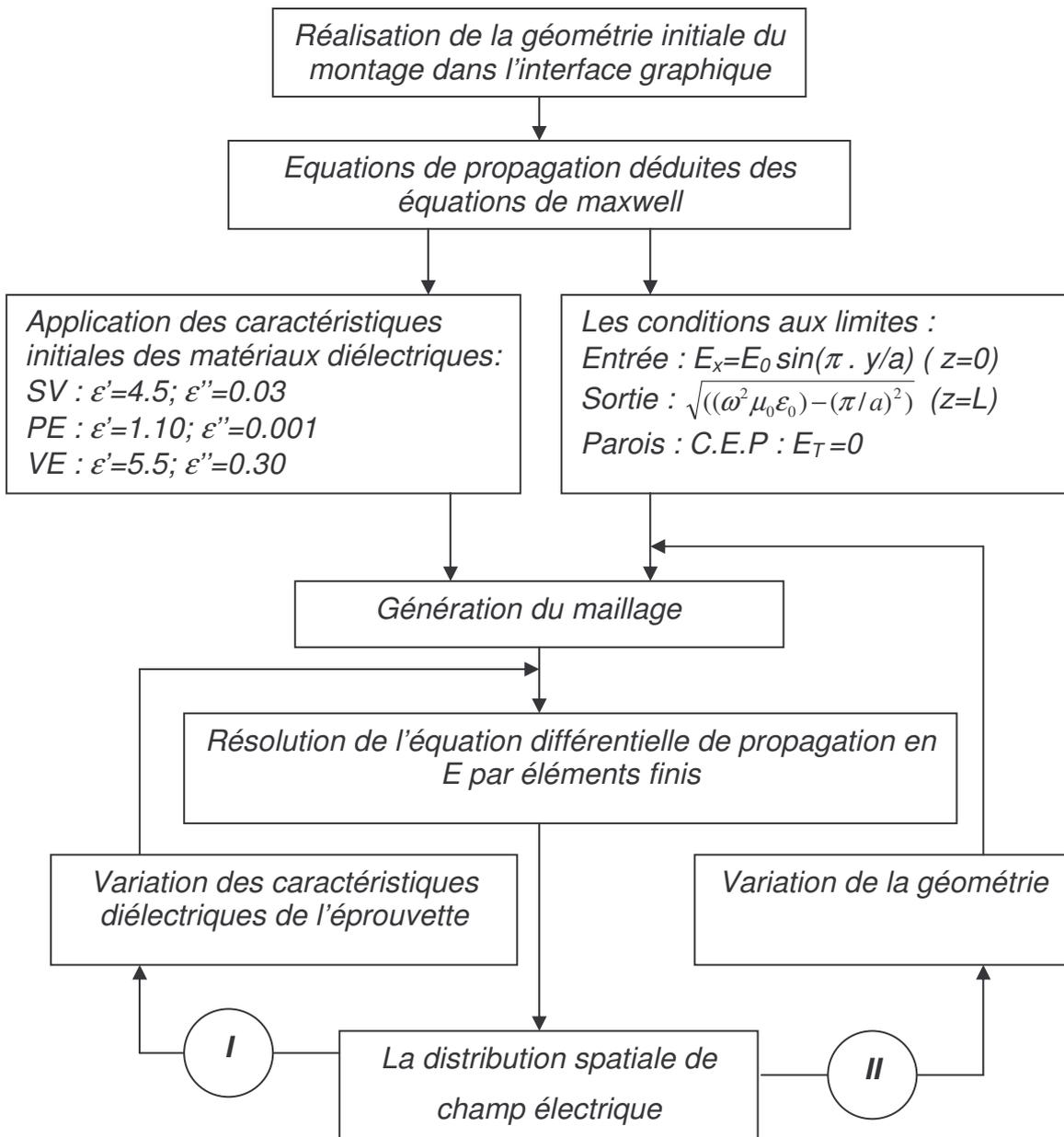


Figure II.2. Organigramme de la procédure de calcul

- La réalisation de la géométrie initiale du montage sur l'interface graphique.
- Le choix du mode d'application.
- L'application des caractéristiques de chaque matériau (le silicone-verre (SV), le verre-époxy (VE) et le polyéthylène en nid d'abeilles (PE)).
- L'application des conditions aux limites détaillées plus haut.
- Le choix du type et la taille du maillage.

- *Le choix du solveur.*
- *L'exécution du programme, pour résoudre l'équation de propagation d'ondes dans un applicateur rempli de trois diélectriques.*
- *L'obtention de la distribution spatiale de champ électrique dans tout l'applicateur.*

En faisant une variation des caractéristiques diélectriques de l'éprouvette, cela nous permet d'étudier l'influence des caractéristiques diélectriques de l'éprouvette sur la distribution du champ électrique dans le montage (le chemin I sur la figure II.2).

En faisant une variation de la géométrie initiale, cela nous permet d'étudier l'influence des paramètres géométriques du montage, par exemple la longueur des biseaux d'adaptation d'interface, l'épaisseur de l'éprouvette et l'épaisseur du moule (le chemin II sur la figure II.2).

II.3. Profil du champ électrique dans un guide d'onde

Dans cette partie d'étude nous voulons déterminer le profil du champ électrique dans un guide vide et dans un guide rempli par plusieurs diélectriques.

II.3.1. Dans un guide vide très long

Rappelons que le guide utilisé est un guide parallélépipédique, dont les dimensions de la section transversale sont les suivantes : 120 mm pour le petit côté noté b , et 250 mm pour le grand côté noté a , section qui permet la propagation des ondes à la fréquence de 915 MHz.

Les figures II.3 et II.4 et la figure II.5 représentent respectivement le profil du champ électrique en deux et trois dimensions dans un guide d'onde vide et très long, et le profil du champ électrique à mi-hauteur du guide vide et très long

Les résultats de cette modélisation avec les conditions aux limites précédentes, ont permis de confirmer que pour une onde se propageant à une fréquence de 915 MHz

dans un tel applicateur, c'est le régime d'ondes progressives qui s'établit dans ce cas. Ce régime est identifié par un champ constant le long de guide comme le montrent les figures II.3, II.4 et II.5, car cette structure empêche toute réflexion d'ondes.

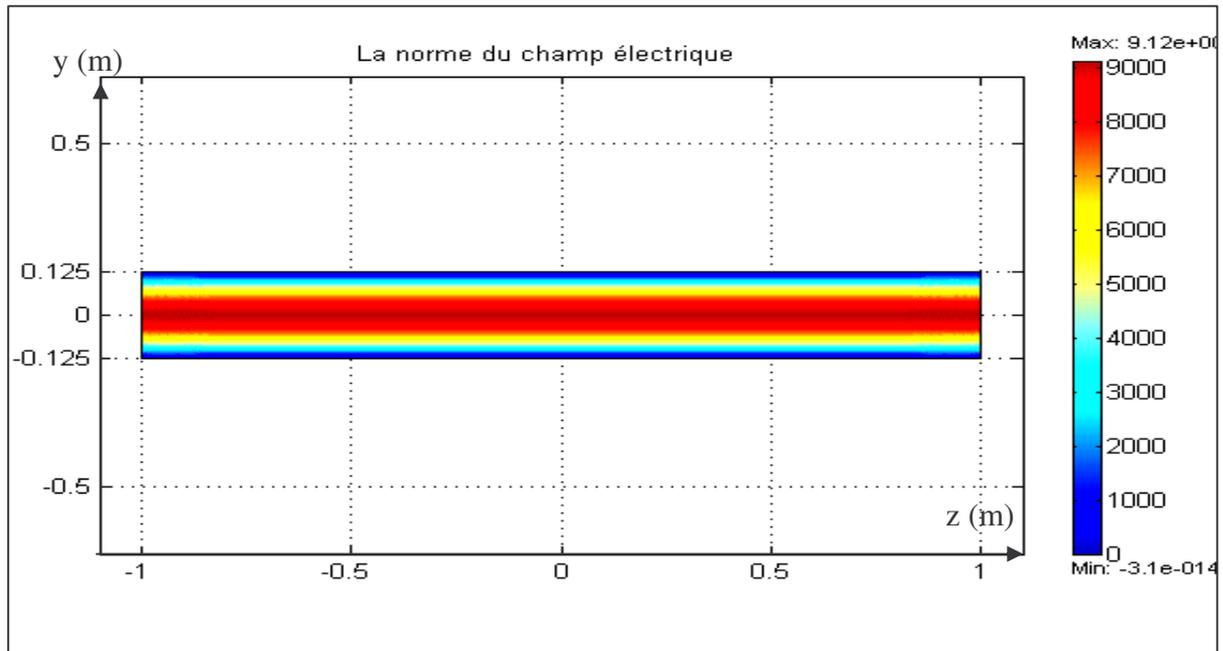


Figure II.3: Profil en 2D de la norme du champ électrique dans un guide très long

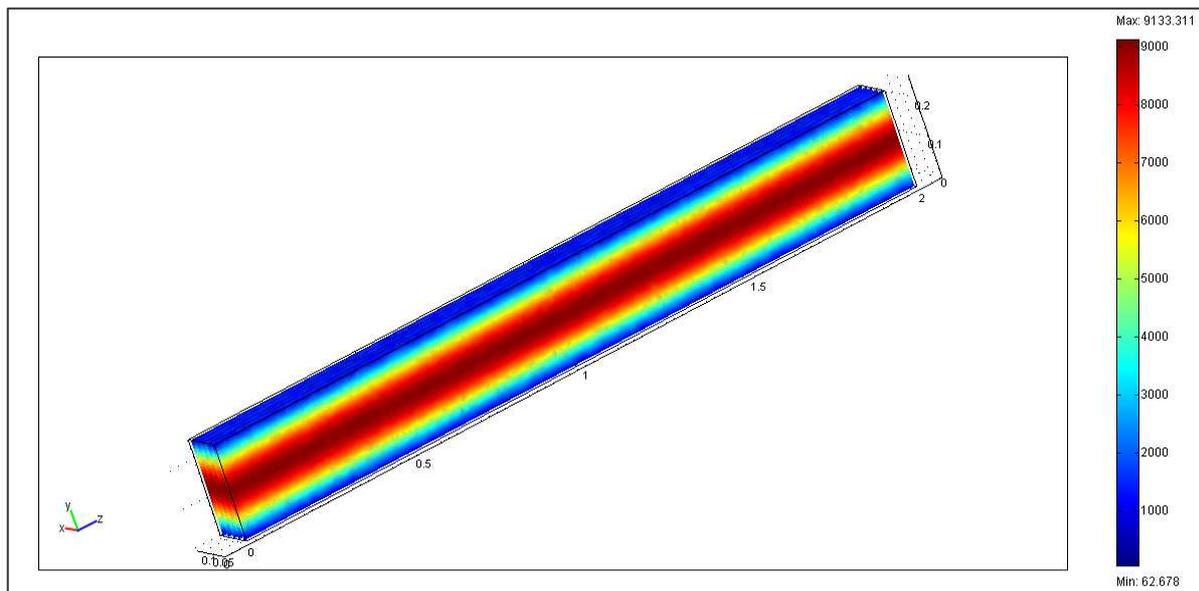


Figure II.4 : Profil en 3D de la norme du champ électrique dans un guide très long

Le taux d'ondes stationnaires calculé dans ce cas varie "numériquement" de 0.999 à 1 le long du guide. Une telle valeur de taux d'ondes stationnaires est un facteur

significatif d'un régime d'ondes progressives. Cela veut dire qu'il n'y a pas de réflexion des ondes aux deux extrémités du guide, et le champ électrique est constant le long de tout l'applicateur. Rappelons que le taux d'ondes stationnaires (TOS) est le rapport entre le champ électrique maximum et le champ électrique minimum, donné par la relation suivante [II.6]:

$$TOS = \frac{E_{max}}{E_{min}} \quad (II.5)$$

La répartition transversale de la norme du champ électrique, représenté par la figure II.6, montre que ce champ est sinusoïdal à un seul maximum. Cette situation est la preuve d'existence du mode fondamental TE₀₁.

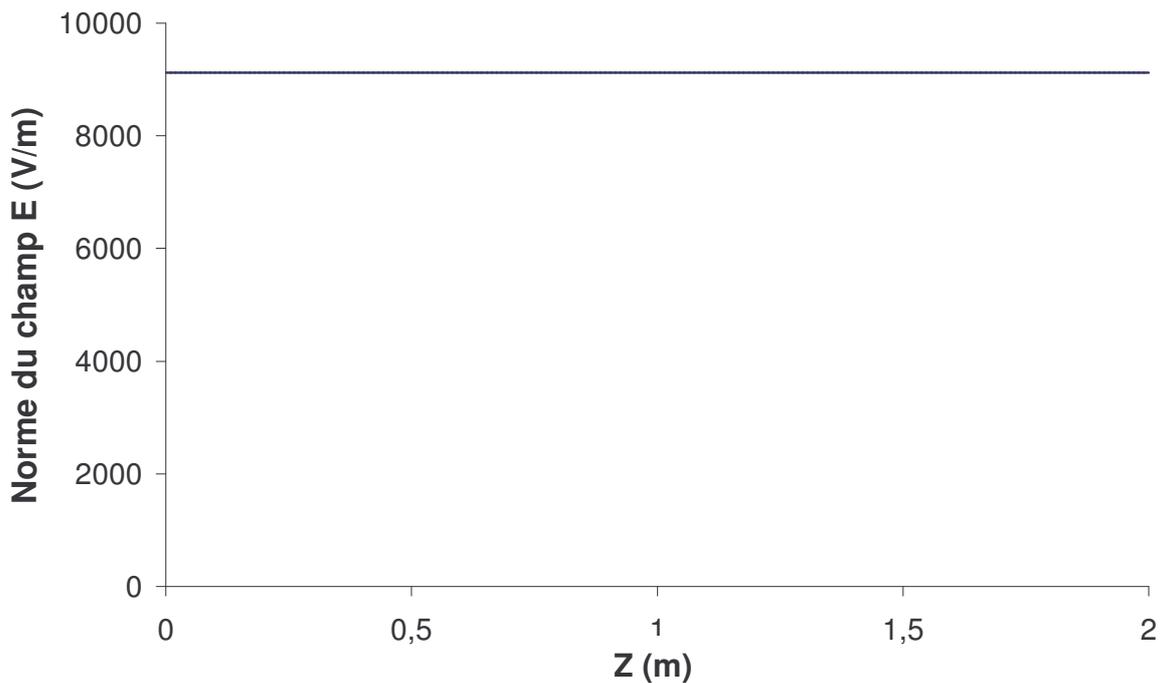


Figure II.5: Le profil de la norme du champ électrique dans le plan (xz) médian du guide

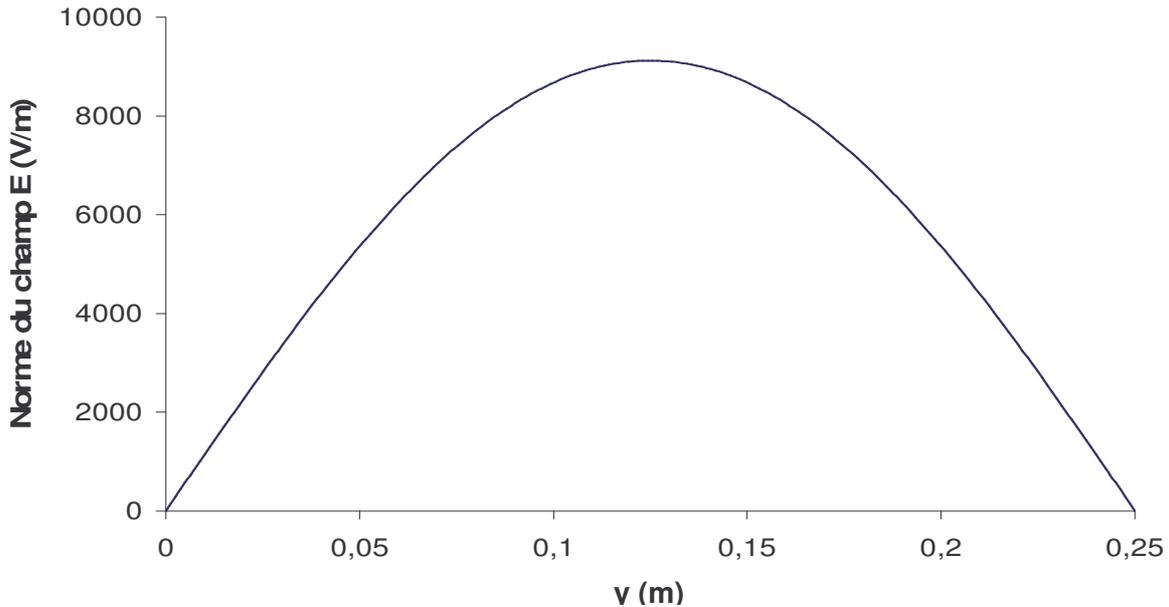


Figure II.6 : La répartition transversale de la norme du champ électrique

II.3.2. Dans un guide avec un court-circuit

La modélisation est effectuée cette fois sur un guide d'onde de mêmes dimensions que le précédent, mais fermé par un court-circuit. Ce dernier est une paroi métallique en aluminium. On a donc une réflexion totale des ondes électromagnétiques, et il peut être traité comme un conducteur électrique parfait. Dans ce cas, le matériau conducteur peut être assimilé à un milieu de permittivité infinie.

$$n_s \cdot (E_2 - E_1) = 0 \quad (II.6)$$

n_s est le vecteur représentant l'unité de surface élémentaire.

Cette modélisation en 2D et 3D représentée par les figures II.7 et II.8, montre que c'est le régime d'ondes stationnaires qui s'établit. Cela est dû à la réflexion totale de l'onde par le court-circuit (interface à réflexion totale). Contrairement au régime d'ondes progressives, ce régime est identifié par des nœuds qui représentent le champ électrique nul et par des ventres qui représentent le champ électrique fort. Ces ventres et ces nœuds sont séparément distants d'une longueur constante égale à $\lambda_g/2$, comme le montrent les figures II.7 à II.9, telle que λ_g est la longueur d'onde dans le guide.

Dans le modèle numérique, l'extraction des valeurs du champ électrique le long du guide d'onde, ainsi que les coordonnées des ventres et les nœuds, permet de

calculer λ_g . Le résultat de ce calcul numérique donne une longueur d'onde guidée λ_g égal à 440mm. Ce résultat montre une légère différence avec le calcul théorique qui donne une valeur égale à 433 mm en utilisant la relation suivante [II.7] :

$$\frac{1}{\lambda_0^2} = \frac{1}{\lambda_g^2} + \frac{1}{\lambda_c^2} \quad (\text{II.7})$$

tel que : $\lambda_c = 2.a = 0.50 \text{ m}$ et $\lambda_0 = C/f = 0.327 \text{ m}$,

avec C , la vitesse de la lumière égale à 3.10^8 m/s , et f , la fréquence de l'onde égale à 915 MHz.

Cela est confirmé sur la courbe de la norme du champ électrique (figure II.9). Sur les points qui représentent les nœuds (champ nul), le champ électrique n'est pas "numériquement" nul, et cela explique la différence entre le calcul théorique et numérique de λ_g .

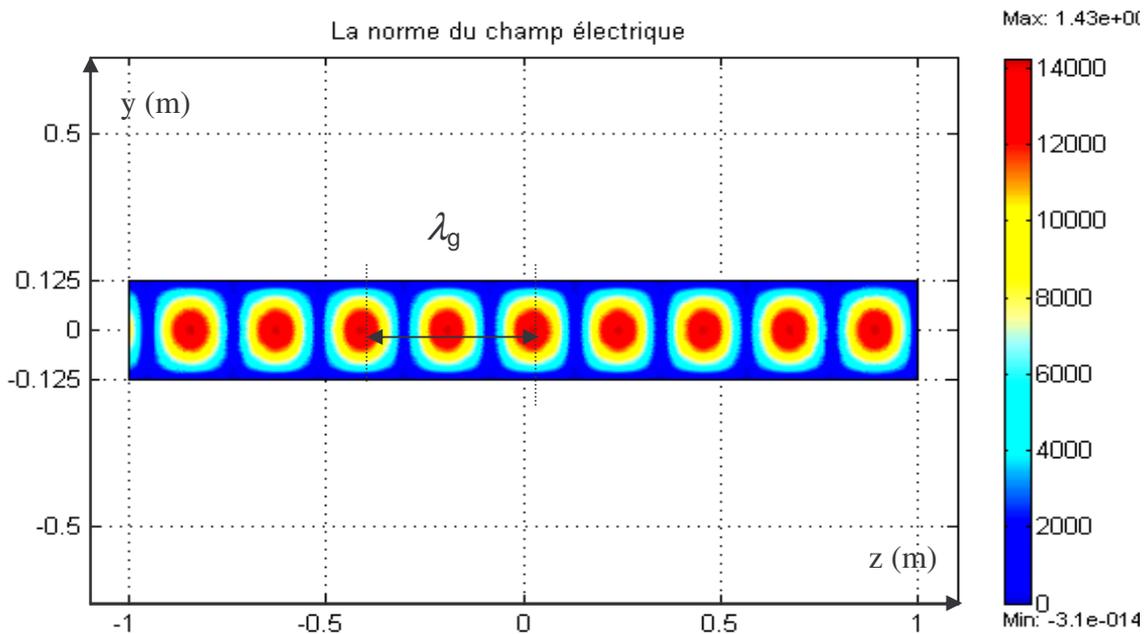


Figure II.7 : Profil en 2D de la norme du champ électrique dans un guide d'ondes avec court-circuit

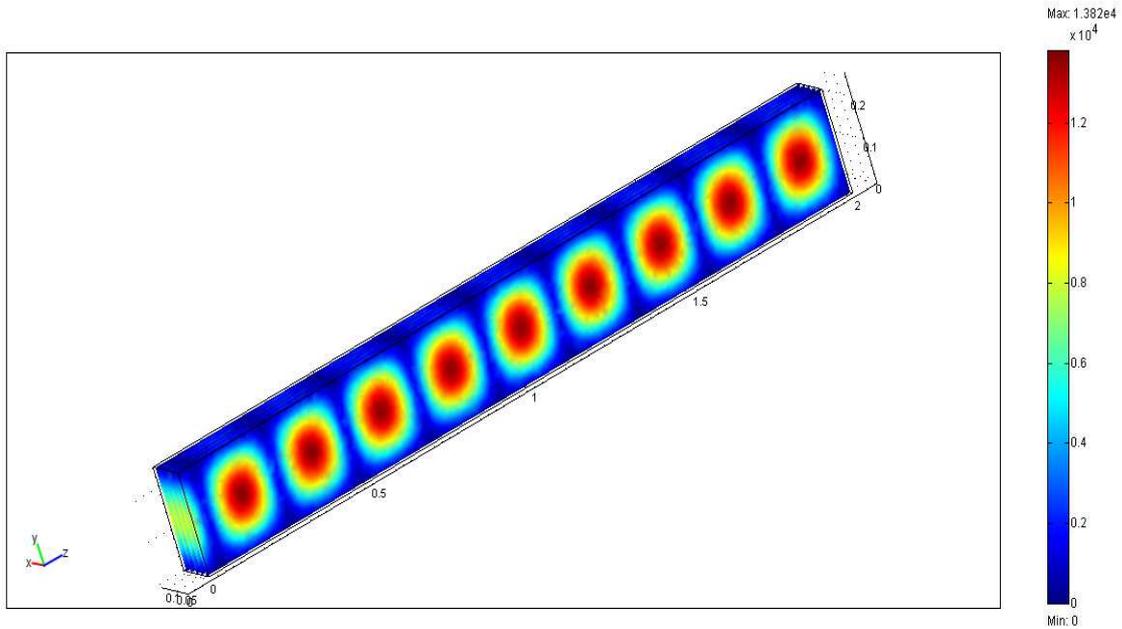


Figure II.8 : Profil en 3D de la norme du champ électrique dans un applicateur avec court-circuit

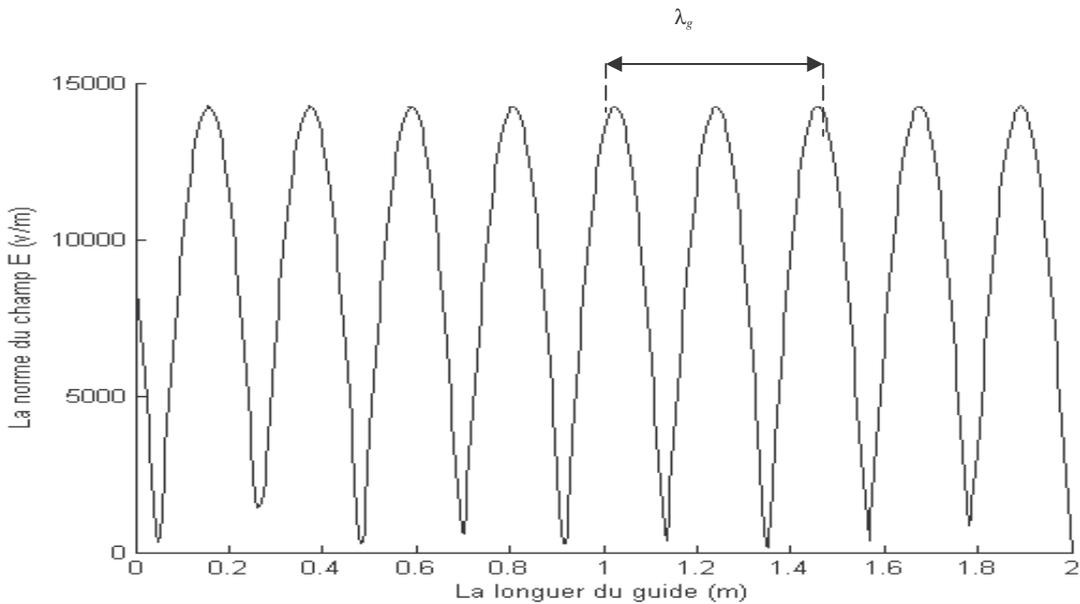


Figure II.9 : Profil du champ à mi-hauteur d'un guide d'ondes avec court-circuit

Expérimentalement, le placement à mi-hauteur de l'applicateur d'un papier thermosensible de même largeur que le guide a permis de visualiser et localiser les ventres et les nœuds et ainsi de mesurer la longueur d'onde guidée (figure II.10).

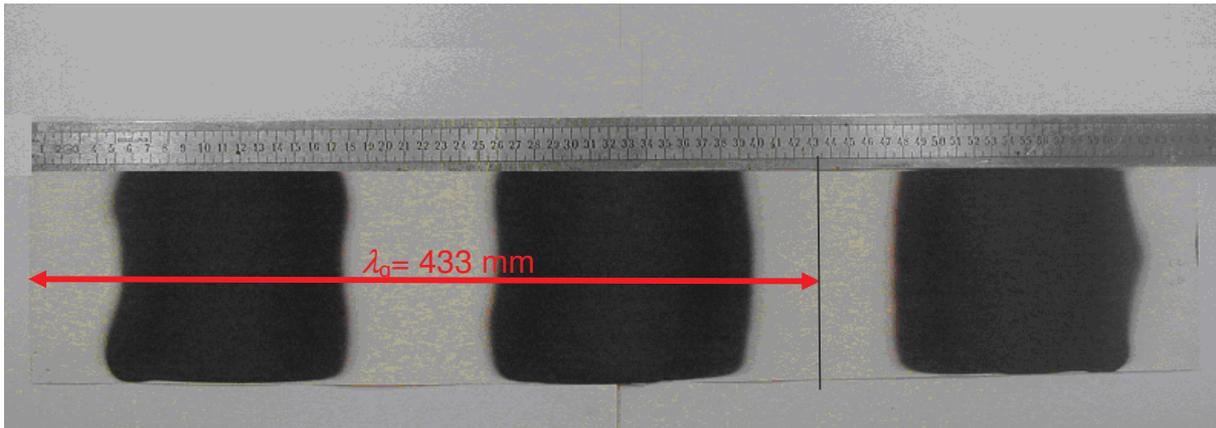


Figure II.10 : Localisation de la longueur d'onde guidée

II.3.3. Guide rempli par une masse absorbante et sans court-circuit

Avec les mêmes conditions aux limites détaillées dans le paragraphe II.2.1, le guide d'ondes est rempli cette fois par un matériau diélectrique d'un coefficient d'absorption ϵ'' significatif de l'ordre de 0.5.

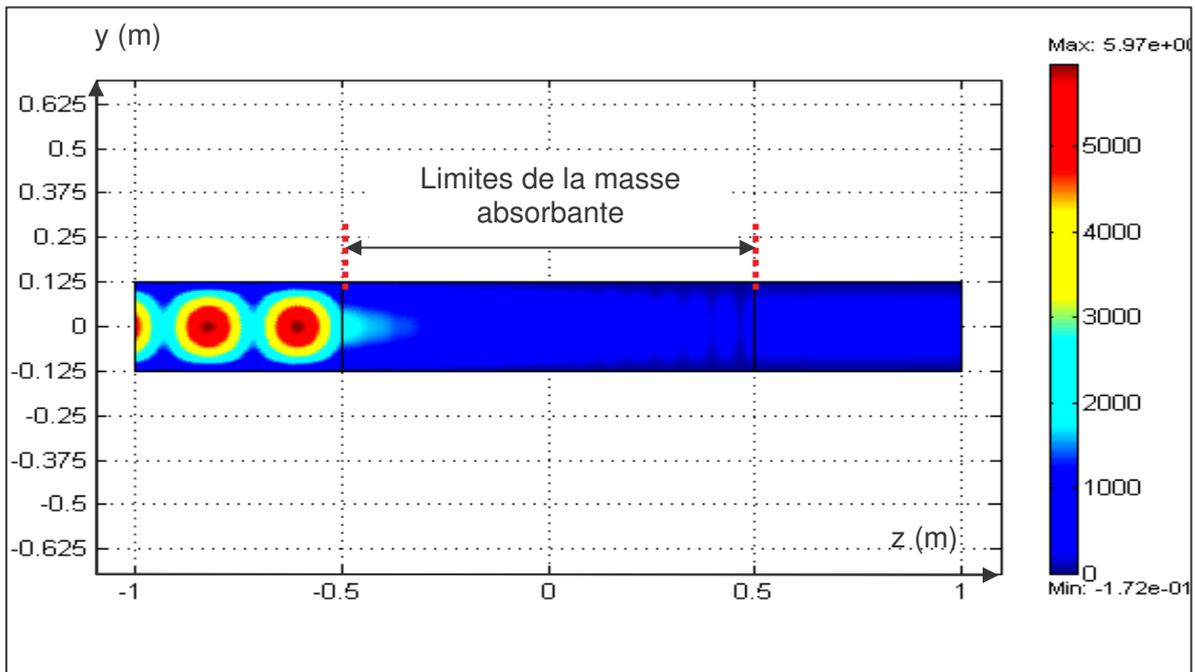


Figure II.11 : Profil de la norme du champ électrique dans un guide rempli d'une masse absorbante

Les figures II.11 et II.12 montrent bien l'atténuation du champ électrique dans la direction de propagation des ondes électromagnétiques. Cette atténuation est due à l'absorption des ondes par la masse absorbante.

La moyenne de la norme de champ électrique sur la figure II.12, montre bien que dans la zone de la masse absorbante, le profil du champ électrique suit une atténuation exponentielle.

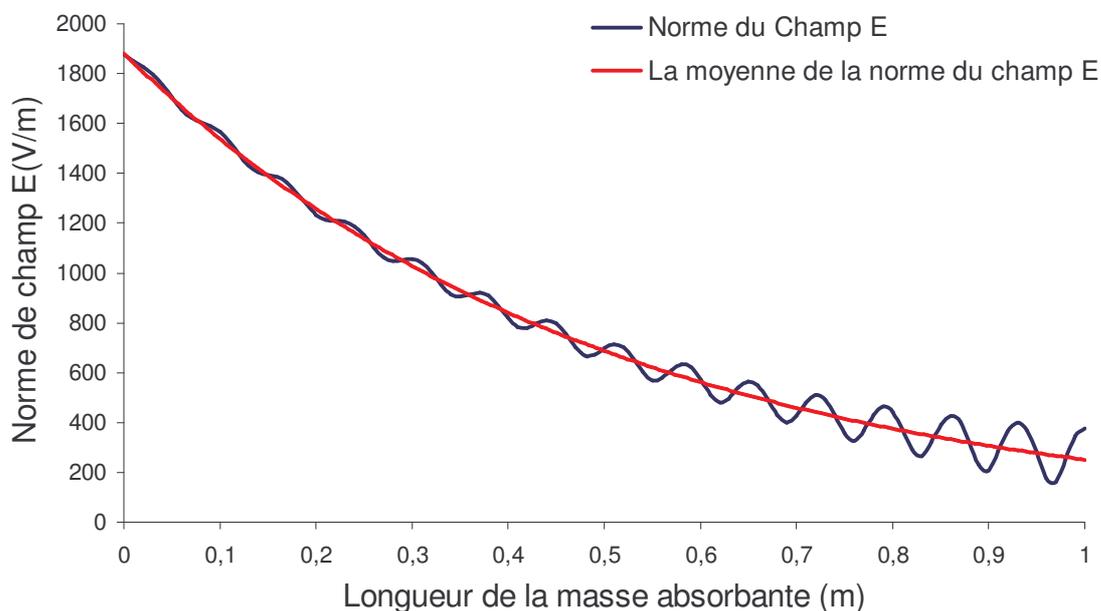


Figure II.12 : Profil de la norme du champ électrique à mi-hauteur et entre les deux limites de la masse absorbante (-0,5 et +0,5) de la figure II.11.

II.4. Modélisation du champ électrique dans un applicateur rempli par trois diélectriques

Dans cette quatrième partie, la notion de guide d'ondes devient insuffisante et doit être remplacée par celle d'applicateur. Dans le cas présent, l'applicateur présente une structure métallique voisine de celle du guide d'ondes mais il est rempli par trois

diélectriques différents comme le montre la figure II.13. Le but de sa modélisation électromagnétique est:

- d'étudier l'influence des paramètres sur les distributions transversale et longitudinale du champ électrique lors de l'utilisation de procédé basé sur le chauffage micro-ondes,
- de mettre en place progressivement la modélisation du procédé micro-ondes dans son principe et aussi la modélisation électromagnétique des expériences proprement dites d'élaboration du composite verre-époxy réalisées au laboratoire. Ces expériences sont détaillées dans le chapitre III.

II.4.1. Profil du champ dans le guide rempli par trois diélectriques

Avec les conditions aux limites citées plus haut dans le paragraphe II.2.1., nous réalisons une modélisation électromagnétique pour déterminer la répartition du champ électrique dans un applicateur rempli de trois diélectriques (figure II.13). Le noyau central représente une éprouvette en verre-époxy, entouré par un deuxième matériau en silicone-verre qui représente le moule. La hauteur est complétée par un autre matériau, le polyéthylène en structure nid d'abeilles. Les caractéristiques diélectriques des trois matériaux à la température 25 °C sont représentées dans le tableau II.1. La caractérisation de ces matériaux est détaillée dans le paragraphe IV.1.1.2 du chapitre IV.

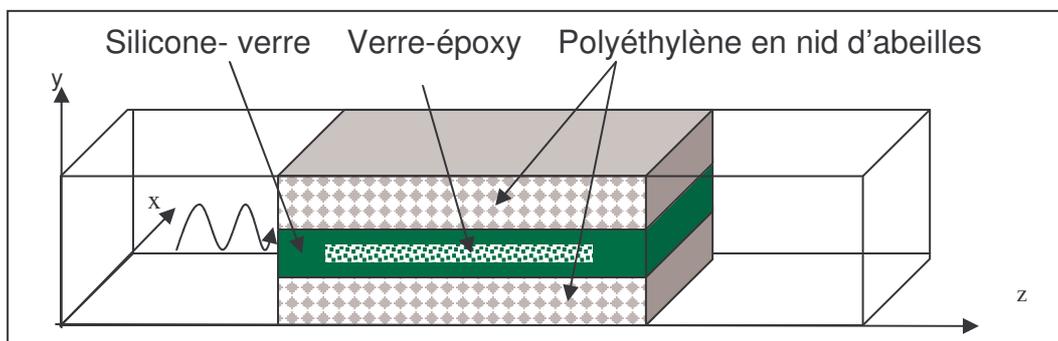


Figure II.13 : Modèle expérimental d'un applicateur rempli par trois diélectriques

De fait, les caractéristiques des trois diélectriques sont variables avec la température [II.9], mais dans cette étude on retient les valeurs qui correspondent à la température

de 25 °C. Dans le chapitre "Interprétations thermiques des résultats", on prendra en considération les variations des caractéristiques diélectriques en fonction du temps.

Matériaux diélectriques	Polyéthylène en nid d'abeille (PE)	Verre-époxy (VE)	Silicone-verre (SV)
Absorption (ϵ'')	0.001	0.3	0.03
Permittivité (ϵ')	1.1	5.5	4.5

Tableau II.1: Caractéristiques diélectriques des trois matériaux diélectriques

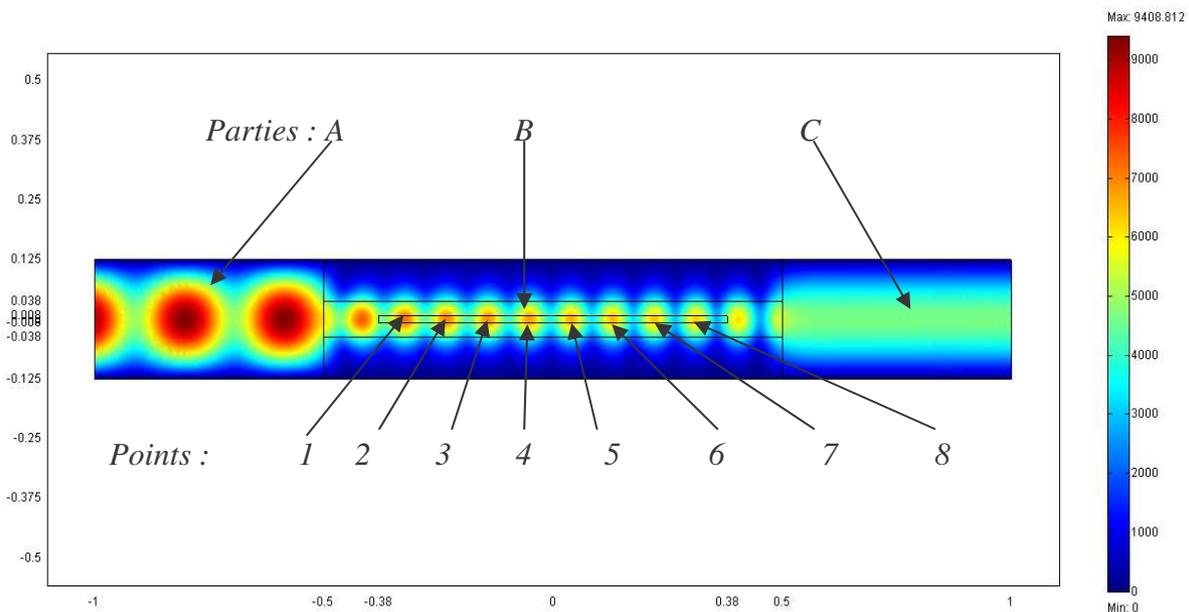


Figure II.14: Profil de la norme du champ électrique dans applicateur rempli de trois diélectriques

Les figures II.14 et II.15 représentent respectivement la distribution de la norme du champ électrique dans un applicateur rempli par trois diélectriques et le profil du champ électrique dans le plan médian de l'applicateur (plan horizontal à mi-hauteur de l'applicateur).

Les figures II.16 et II.17 représentent la distribution transversale de la norme du champ électrique pour des valeurs différentes de la cote z du guide. Les courbes de la figure II.16 sont obtenues aux huit points où le champ présente un maximum. Les courbes de la figure II.17 sont obtenues pour trois valeurs de la cote z correspondant aux trois parties différentes du guide (parties A, B, C).

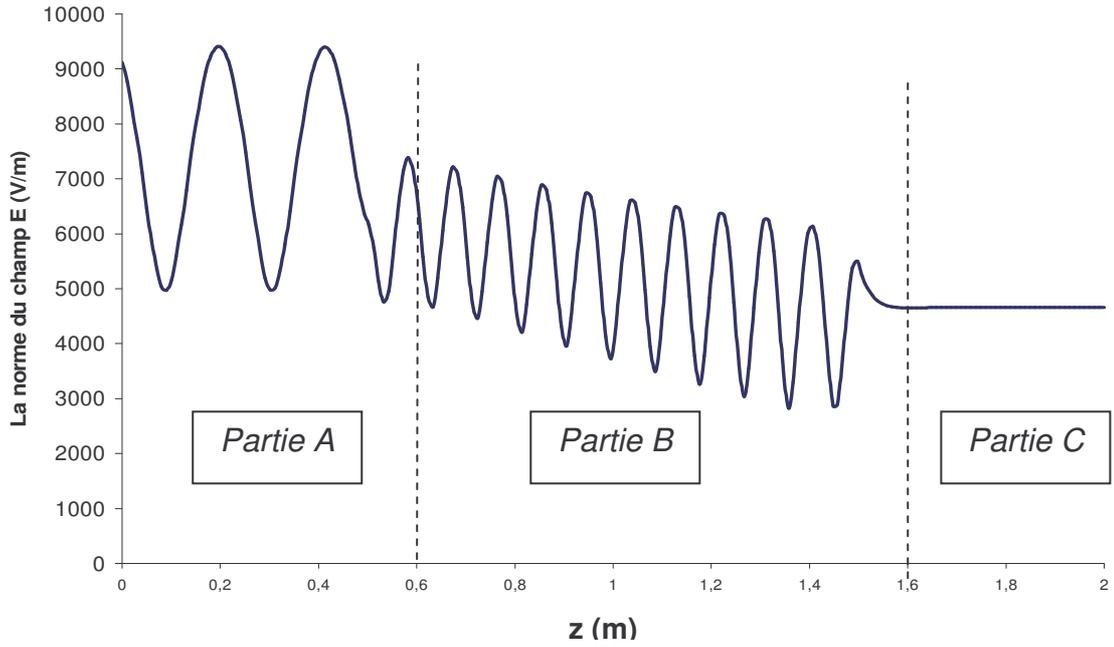


Figure II.15 : Profil de la norme du champ électrique à mi-hauteur d'un applicateur rempli de trois diélectriques

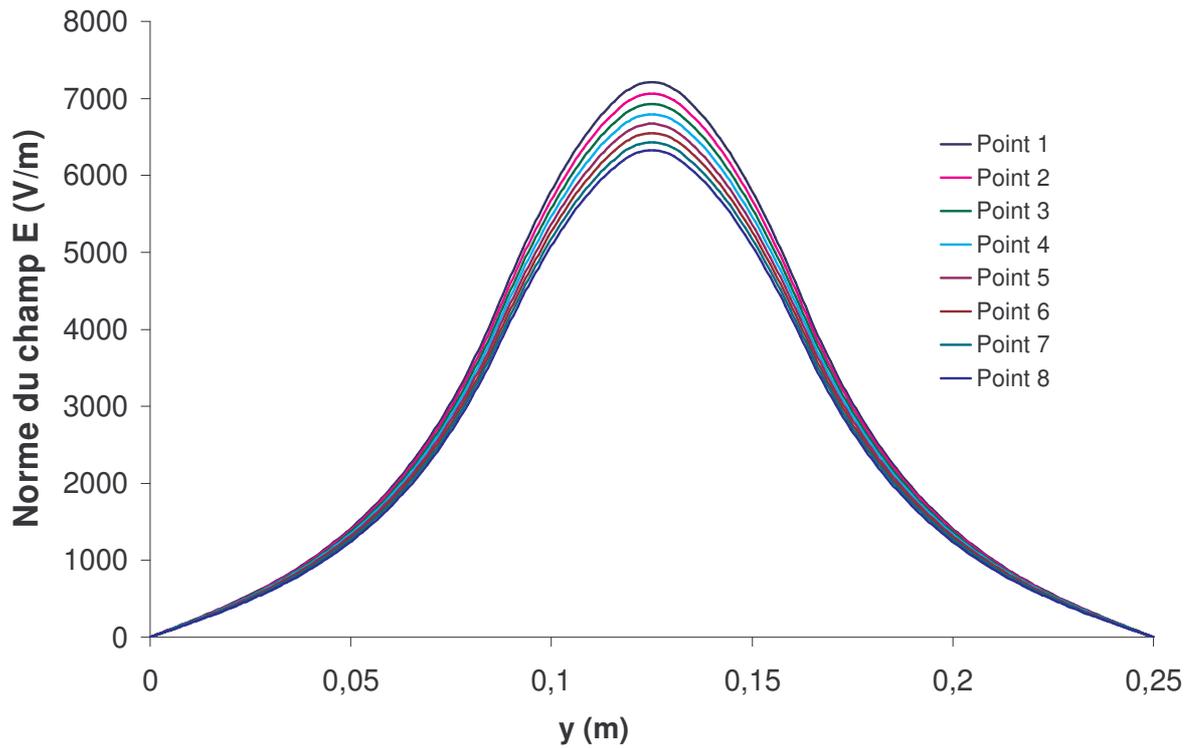


Figure II.16 : La répartition transversale de la norme du champ électrique le long de l'éprouvette

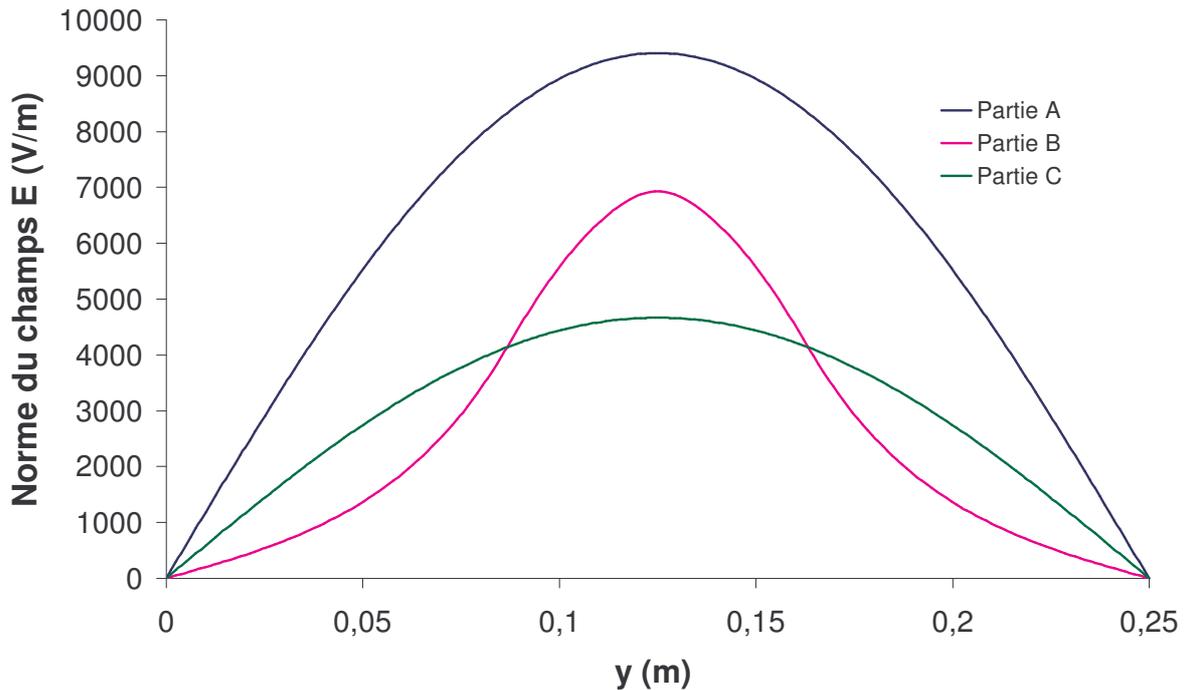


Figure II.17 : La répartition transversale de la norme du champ électrique dans trois plans différents de l'applicateur

Les résultats de la modélisation électromagnétique représentée par les figures de II.14 à II.17, conduisent aux remarques suivantes:

- Des ondes stationnaires s'établissent dans tout l'applicateur. Ces ondes stationnaires sont dues aux multiples réflexions des ondes électromagnétiques aux interfaces d'entrée et de sortie, sauf dans la partie C de l'applicateur où s'établit un régime progressif, dû à la condition aux limites imposée à la sortie de l'applicateur par la masse absorbante.
- Dans la partie B, où se trouve le verre-époxy entouré par le silicone-verre, on constate une atténuation des ondes électromagnétiques. Plus nous nous déplaçons vers l'interface de sortie du matériau central (l'éprouvette) plus l'intensité du champ diminue. Cela est dû à l'absorption des ondes électromagnétiques par le matériau central. Cette atténuation est très remarquable sur les courbes des figures II.15 et II.6.

- Les répartitions transversales (figure II.17) de la norme du champ électrique dans les trois parties A, B et C de l'applicateur montrent des profils différents dans ces parties. Dans les parties A et C, les profils des normes des champs électriques sont des profils sinusoïdaux. Dans la partie B, on remarque une distribution de type hyperbolique avec concentration du champ électrique dans la partie centrale (zone médiane du guide). Cette distribution est due à la présence des matériaux à permittivité la plus élevée, qui influent sur le gradient transversal du champ électrique [II.9], et en raison de la répartition symétrique de ces matériaux.
- On remarque qu'il y a une importante réflexion du champ électrique à la première interface à la gauche du moule, qui engendre une perte de 60% de la puissance produite par le générateur et véhiculée par les ondes. Ces résultats montrent qu'une adaptation par un biseau (voir le paragraphe II.4.2) au premier interface (entrée de l'éprouvette) joue un rôle très important. Cette adaptation minimise les réflexions à l'interface d'entrée, et augmente le rendement du système comme le montre la figure II.18. et comme le montreront les paragraphes qui suivent.

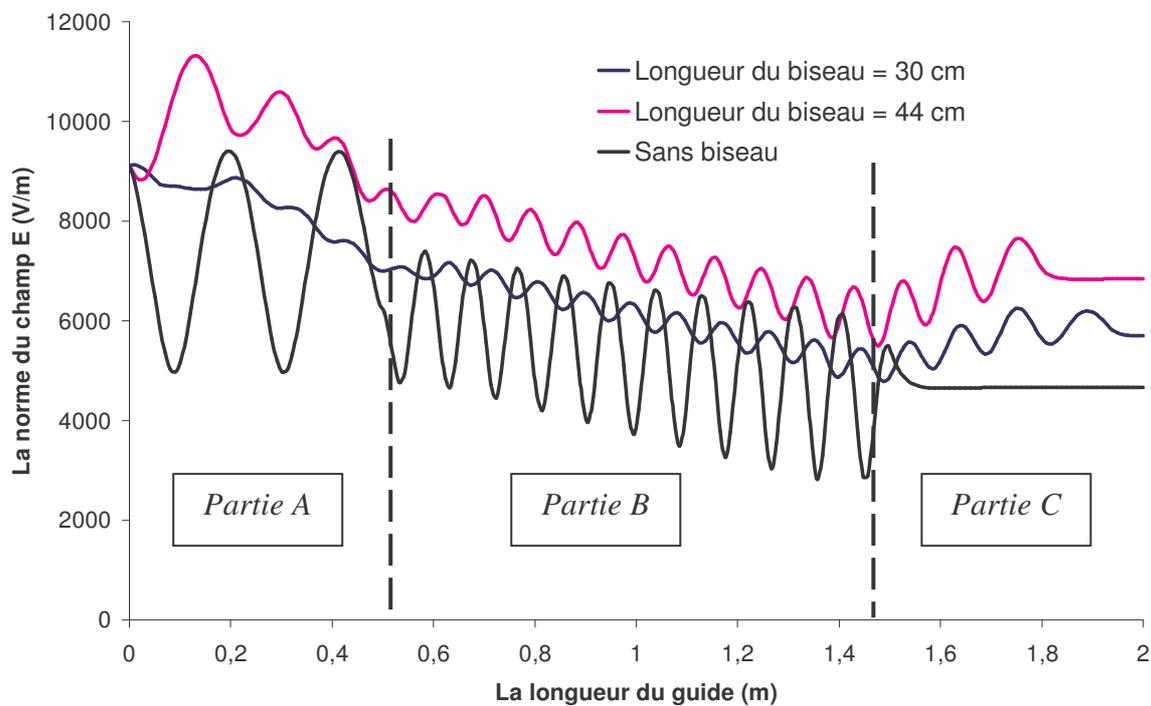


Figure II.18: Profil de la norme du champ électrique à mi-hauteur d'un guide rempli par trois diélectriques, sans et avec adaptation

II.4.2. Le choix de l'adaptation

Les premières études sur l'adaptation des zones interfaciales diélectriques remontent à la seconde guerre mondiale, sous la pression des besoins militaires dans le domaine des radars.

E. HORD [II.10], dans le but de minimiser les réflexions aux interfaces, a étudié la transmission des ondes à la fréquence de 8,2 GHz, d'un milieu à un autre d'une permittivité plus élevée que le premier. L'étude de l'adaptation de la transmission a été effectuée sur trois formes de biseau (figure II.19), En calculant le coefficient de réflexion ρ par l'expression suivante [II.11] :

$$\rho = \frac{-j}{8\pi} \left(\frac{d\lambda_g}{dz} \right)_{z=0} - \left(\frac{d\lambda_g}{dz} \right)_{z=L_B} \exp(-4\pi j \int_0^{L_B} \frac{dz}{\lambda_g}) \quad (9)$$

avec L_B est la longueur de l'adaptation (biseau)

Il a remarqué d'après ces études que c'est le biseau SSCT qui conduit au minimum de réflexion et au maximum de transmission.

SCCT: (Unsymmetrical Continuously Tapered) double biseau sortant.

UCT: (Symmetrical Center Continuously Tapered) biseau linéaire continu.

SSCT: (Symmetrical Side Continuously Tapered) double biseau rentrant.

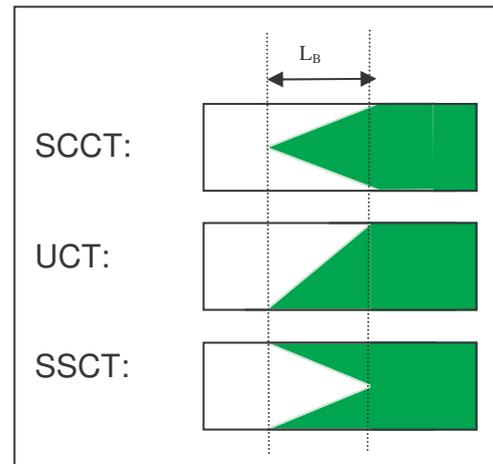


Figure II.19 : Les trois formes du biseau

OUTIFA [II.9] a expérimenté à son tour les trois biseaux à une fréquence différente de MORENO [II.11] (2,45GHz). Il a remarqué que si le biseau rentrant (SSCT) semble donner de bons résultats théoriques, expérimentalement, il préfère le biseau sortant (SCCT) aussi bien pour l'interface d'entrée que pour l'interface de sortie, car:

- Sur l'interface d'entrée, le biseau sortant (SCCT) facilite la concentration du champ électrique au milieu de l'applicateur, ou se trouve l'éprouvette.

- A l'interface de sortie, c'est l'inverse qui se passe, l'onde électromagnétique passe d'un applicateur chargé vers un applicateur vide. Il en résulte que les avantages dont bénéficie le biseau rentrant (SSCT) à l'interface d'entrée sont à porter au profit du biseau sortant (SCCT) à l'interface de sortie.

Les auteurs [E. HORD, OUTIFA], ont étudié la transmission d'une onde à des fréquences 8,2GHz et 2,45 GHz, qui sont différentes de la fréquence utilisée dans notre étude. Ils ne se sont pas intéressés à la distribution du champ dans l'applicateur, ou dans une éprouvette comme dans notre cas.

Notre choix du biseau SCCT est justifié. Il reste donc à déterminer les longueurs optimales des deux biseaux qui seront adaptés aux interfaces d'entrée et de sortie.

II.5. L'étude des quelques paramètres influençant la distribution des sources de chaleur d'origine électromagnétique

En pratique, lors de l'élaboration d'un matériau composite, par le procédé micro-ondes, le montage est équipé de deux adaptations aux interfaces d'entrée et sortie. Le rôle de ces adaptations est de minimiser les réflexions aux interfaces d'entrée et de sortie du matériau à traiter.

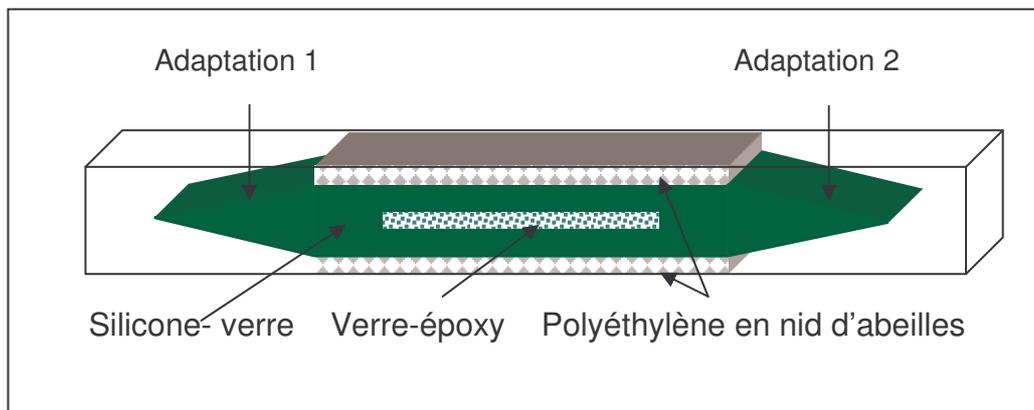


Figure II.20 : Schéma expérimental d'une adaptation par SSCT

Nous voulons étudier quelques paramètres qui influencent la distribution du champ électrique dans le composite. La connaissance de cette distribution est importante, car la source micro-ondes est une fonction du carré de la norme du champ électrique. Ces paramètres sont donnés par le tableau II.2. Nous allons étudier

l'influence de la variation de chacun de ces paramètres sur le comportement du système. Les valeurs des autres paramètres étant maintenues constantes et égales à leurs valeurs moyennes. La longueur de l'éprouvette est fixée à 76 cm et elle ne varie pas durant toute cette étude.

Epaisseur de l'éprouvette (verre-époxy)	5 mm
	10 mm (épaisseur moyenne de l'éprouvette)
	15 mm
Epaisseur du moule (silicone-verre)	3 fois l'épaisseur de l'éprouvette
	7 fois l'épaisseur de l'éprouvette (épaisseur moyenne du moule)
	11 fois l'épaisseur de l'éprouvette
Caractéristiques de l'éprouvette (absorption)	abs =0.1
	abs =0.30 (absorption moyenne de l'éprouvette)
	abs =0.5
Adaptations (les deux biseaux)	Longueur de deux biseaux à l'entrée et la sortie du montage

Tableau II.2 : Les paramètres à étudier

II.5.1. L'influence de la longueur de l'adaptation

Pour obtenir un transfert de puissance important dans le matériau à traiter, le champ électrique doit être aussi élevé que possible. Cela se fait par un choix convenable de la géométrie de l'adaptation. D'après les résultats précédents (figure II.18), le rôle de l'adaptation est d'augmenter le rendement du procédé et de réduire le Taux d'Ondes Stationnaires.

Nous allons étudier l'influence de la longueur des deux biseaux sur la distribution spatiale de l'amplitude du champ électrique pour la valeur moyenne de chacun des autres paramètres précédemment cités dans le tableau II.2.

Notre choix du biseau SSCT est justifié dans le paragraphe II.4.2. Avec ce type d'adaptation, nous avons réalisé une modélisation, en faisant une variation de la longueur des deux biseaux, dans un guide rempli par trois diélectriques avec les caractéristiques diélectriques représentées dans le tableau II.1. Le but de cette

modélisation est de déterminer et de sélectionner la longueur optimale du biseau qui assure la transmission du maximum d'énergie pour l'éprouvette, qui augmente le rendement du système, en donnant le moins de réflexion possible au premier interface, et qui donne le moins d'ondes stationnaires possibles, afin d'obtenir un régime d'ondes progressives, lors du chauffage.

Nous avons fixé l'épaisseur du moule à 70mm, et celui de l'éprouvette à 15 mm, avec une absorption de cette dernière égale à l'absorption moyenne de 0.30, puis nous avons fait une variation de la longueur des deux biseaux de 20 cm à 50 cm par pas de 10 cm. Je rappelle que la longueur de l'éprouvette est fixe et a une longueur de 0,76 m.

La figure II.21 représente l'évolution de la norme du champ électrique le long du composite de 15 mm d'épaisseur en fonction de la longueur de deuxième biseau et pour une longueur de 20 cm du premier biseau. On remarque d'après cette figure que plus la longueur de deuxième biseau augmente plus on constate un TOS faible le long de la l'éprouvette, cela se vérifié quelle que soit la longueur du premier biseau et l'épaisseur de l'éprouvette (voir l'annexe A).

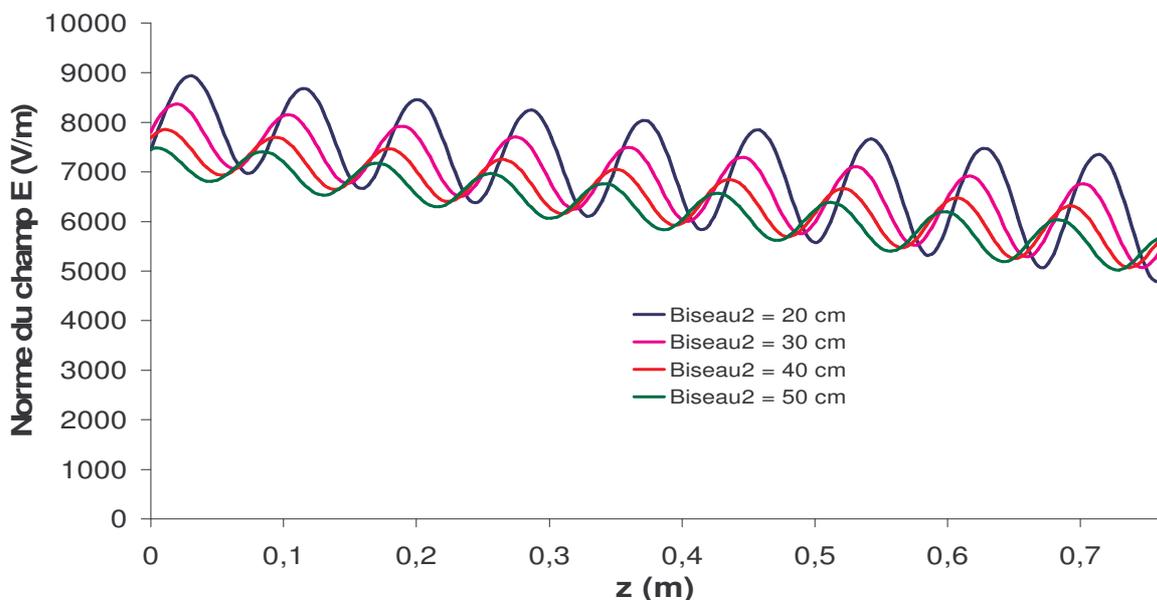


Figure II.21: L'évolution de la norme du champ électrique dans une éprouvette de 0,76 m et de 15 mm d'épaisseur en fonction de la longueur de deuxième biseau, et pour 20cm de longueur du premier

II.5.2. L'influence de l'épaisseur du moule

Nous avons fixé les longueurs des deux biseaux à 50 cm et l'épaisseur de noyau central qui représente le matériau à élaborer à 10 mm, et nous avons fait varier l'épaisseur du moule. Cette étude nous permet de vérifier l'influence de l'épaisseur du moule sur le profil du champ électrique dans le composite. La caractéristique d'absorption du composite est égale à 0.30.

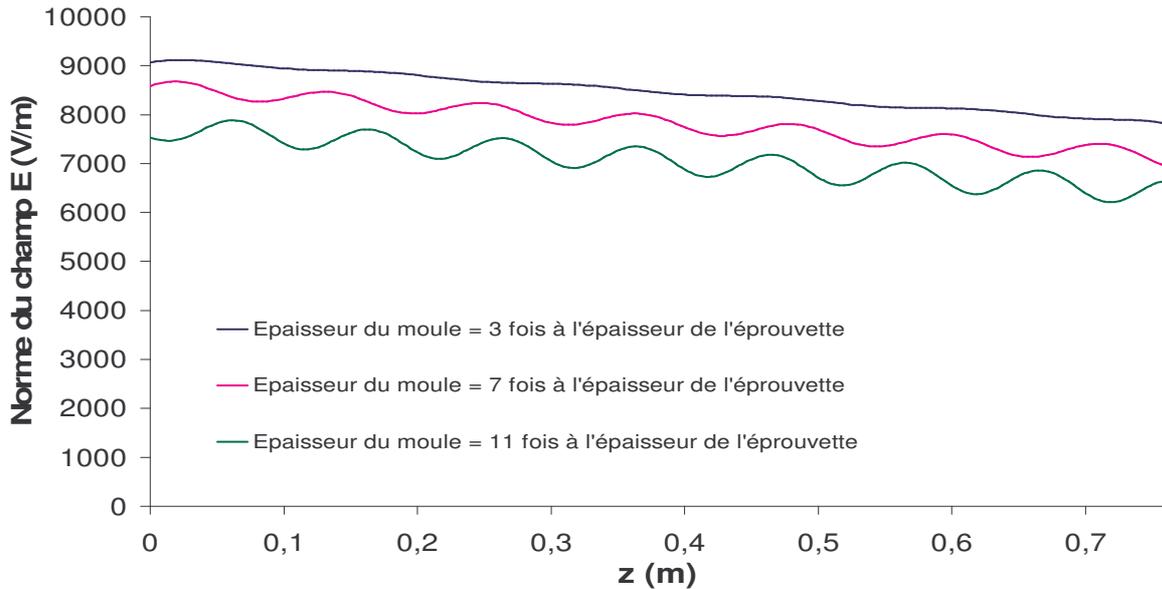


Figure III.22: Profil de la norme du champ électrique le long de l'éprouvette d'épaisseur 5mm en fonction de l'épaisseur du moule

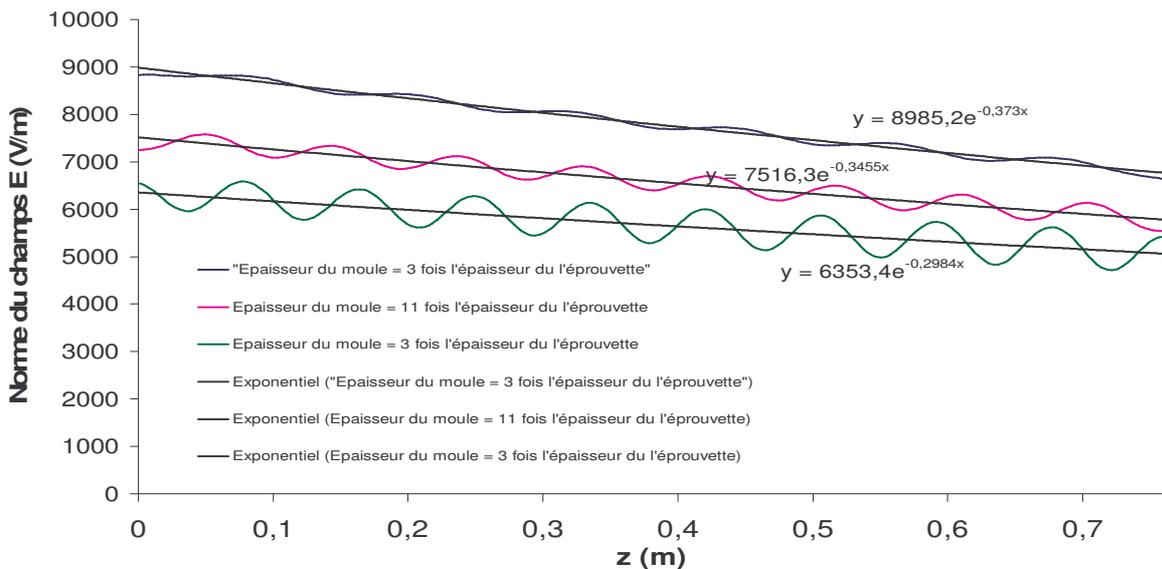


Figure II.23 : Profil de la norme du champ électrique le long de l'éprouvette d'épaisseur 10mm en fonction de l'épaisseur du moule

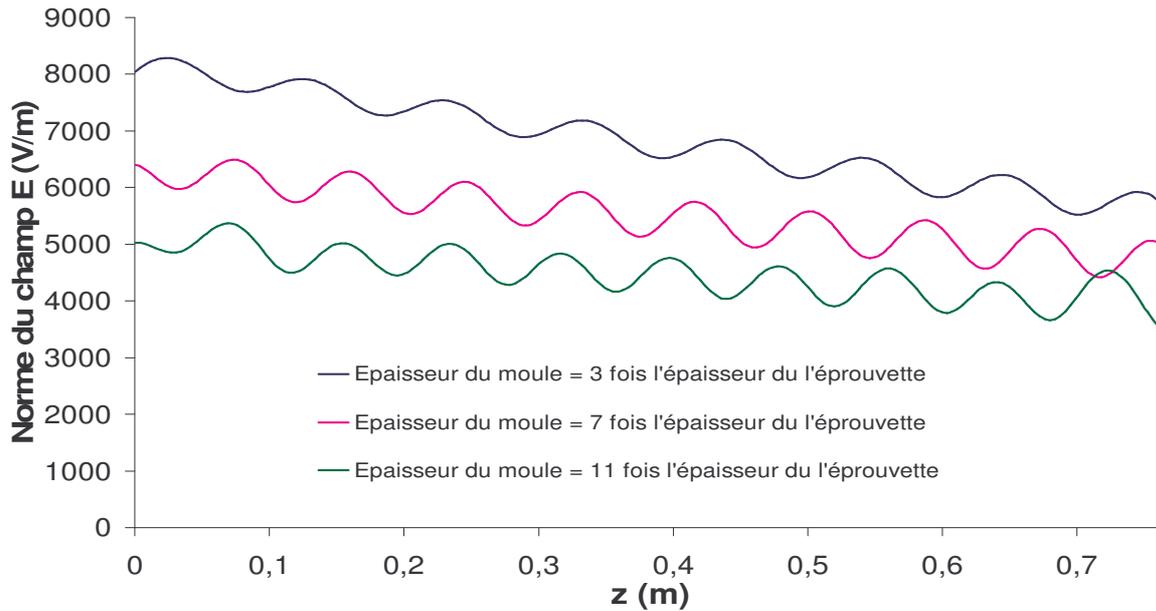


Figure II.24 : Profil de la norme du champ électrique le long de l'éprouvette d'épaisseur 15mm en fonction de l'épaisseur du moule

On remarque d'après la modélisation du champ électrique le long de l'éprouvette que le profil du champ électrique dépend fortement de l'épaisseur du moule, ainsi que des géométries des adaptations d'entrée et sortie de l'applicateur. Car si nous changeons l'épaisseur du moule, nous changeons aussi la géométrie des adaptations.

Nous remarquons d'après les figures II.22, II.23 et II.24, et cela quelle que soit l'épaisseur du composite:

- Une atténuation du champ électrique due à l'absorption par le composite des ondes électromagnétiques, et plus l'épaisseur du moule augmente plus cette atténuation devient faible,
- L'augmentation de l'intensité du champ électrique dans le composite varie inversement à l'augmentation de l'épaisseur du moule.

II.5.3. L'influence de l'épaisseur de l'éprouvette.

Dans cette partie nous avons fixé l'épaisseur du moule à une épaisseur moyenne pour faire varier l'épaisseur de l'éprouvette à l'intérieur du moule. L'épaisseur de moule est fixée à 7 fois l'épaisseur moyenne de l'éprouvette (10mm), soit 70 mm.

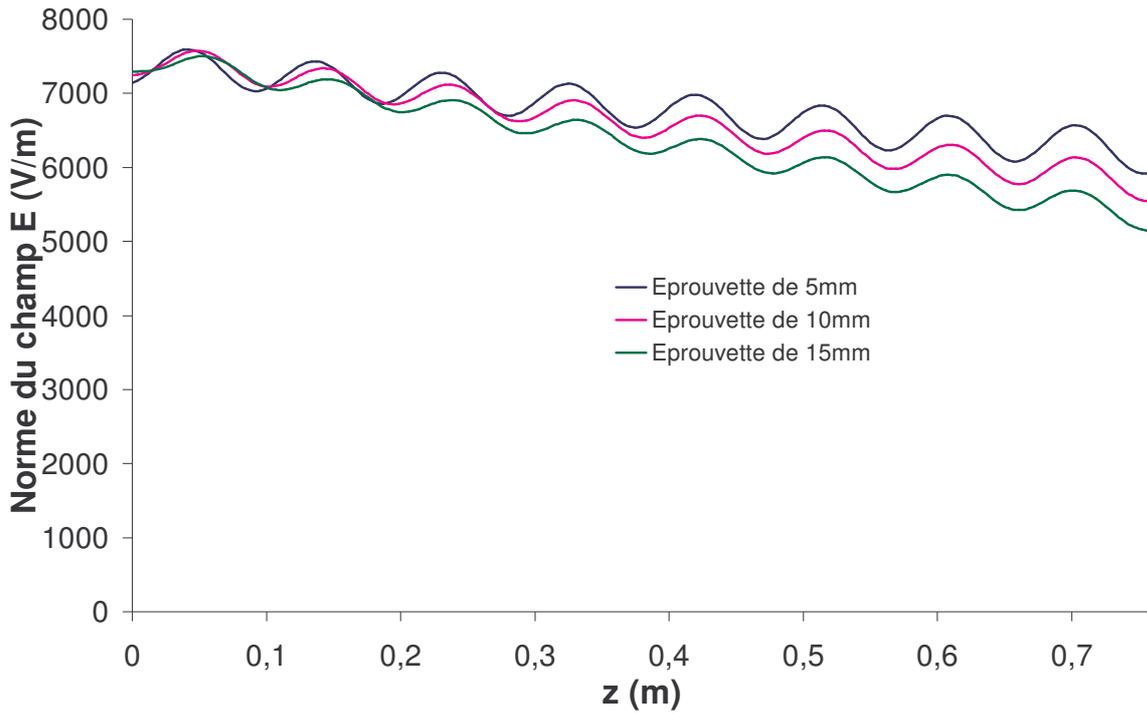


Figure II.25 : La répartition longitudinale de la norme du champ électrique en fonction de l'épaisseur de l'éprouvette

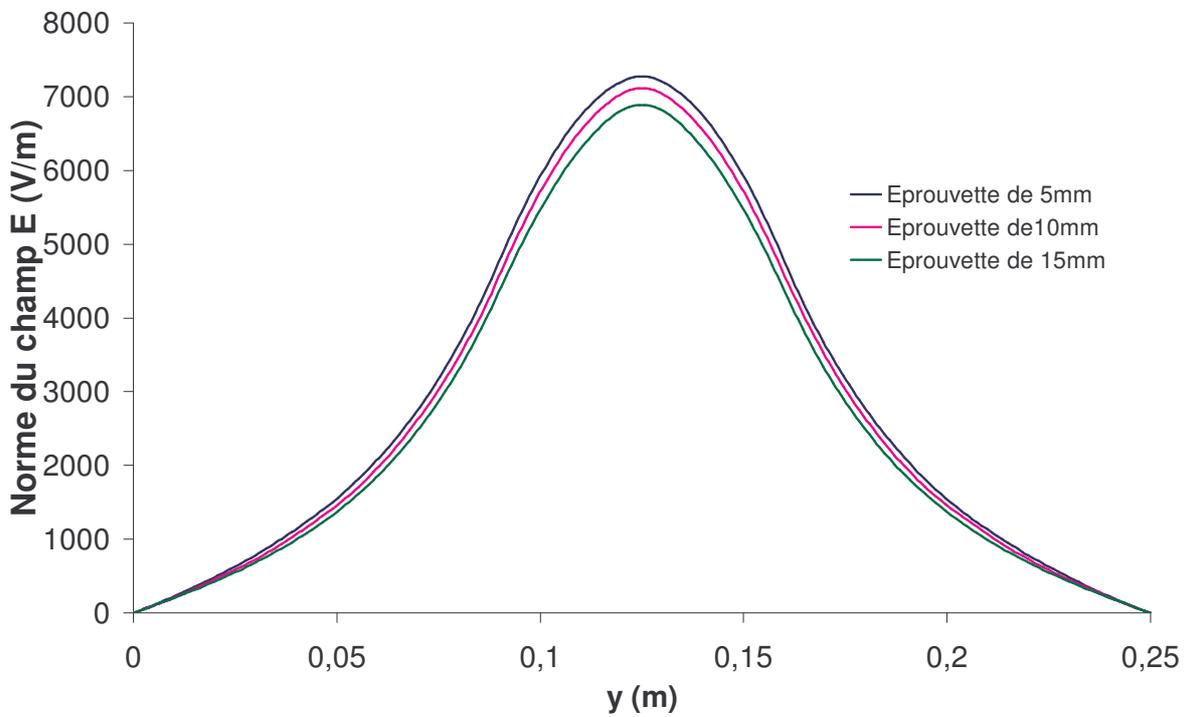


Figure II.26: La répartition transversale de la norme du champ électrique en fonction de l'épaisseur de l'éprouvette pour la cote z correspondant au milieu du composite

Les figures II.25 et II.26 représentent respectivement la répartition longitudinale et transversale de la norme du champ électrique en fonction de l'épaisseur de l'éprouvette, dans un moule de 70mm d'épaisseur.

On constate d'après les courbes de ces figures et quelle que soit l'épaisseur du moule, une atténuation des ondes électromagnétiques le long de l'éprouvette. Cela est dû, comme cela a été expliqué précédemment, à l'absorption par le composite des micro-ondes. On remarque aussi que plus l'épaisseur du noyau central (l'éprouvette) augmente, plus on constate une atténuation forte. Cette atténuation forte est due au fait que l'absorption totale du noyau central augmente avec son épaisseur.

II.5.4 L'influence des caractéristiques diélectriques des matériaux

Dans cette partie d'étude, nous avons fait varier la caractéristique d'absorption du composite à élaborer dans un intervalle de 0,1 à 0,5, sachant que c'est dans cet intervalle que le facteur d'absorption varie en fonction de la température à la fréquence 915 MHz.

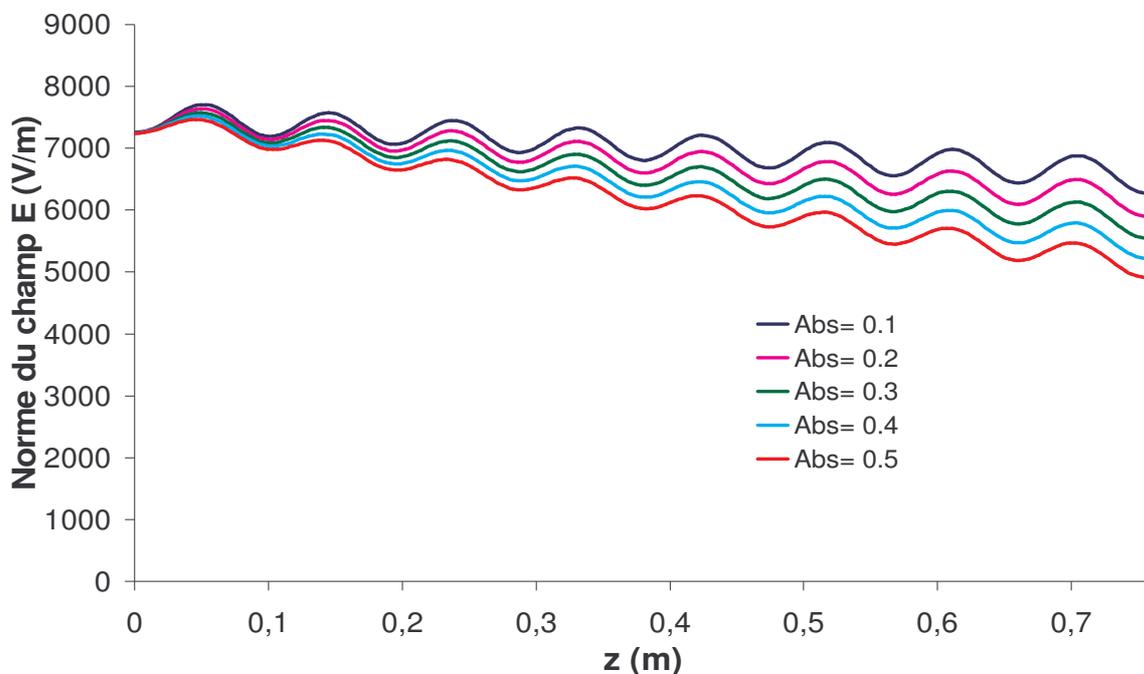


Figure II.27: Profil de la distribution longitudinale en fonction de l'absorption du composite.

La figure II.27 représente le profil de la distribution longitudinale en fonction de l'absorption du composite. Cela confirme une fois de plus que les caractéristiques diélectriques influent sur le profil du module du champ électrique. Plus la caractéristique d'absorption du composite augmente, plus nous constatons une atténuation forte le long de l'éprouvette. Par contre ce paramètre n'a pas d'influence notable sur le taux d'ondes stationnaires.

L'atténuation des ondes électromagnétiques est due à l'absorption de l'éprouvette et à la dégradation de l'énergie électromagnétique en chaleur. C'est pour cette raison qu'on constate rapidement l'établissement de forts gradients de température à l'intérieur du produit. Elle dépend de la caractéristique diélectrique d'absorption, de l'épaisseur de l'éprouvette à réaliser et des caractéristiques des autres éléments diélectriques de remplissage de l'applicateur [II.12], c'est-à-dire de leurs propres caractéristiques d'absorption et de leurs épaisseurs. Cette atténuation représente, comme cela a déjà été précisé, un problème majeur qui nous occupe et qu'il faut résoudre.

II.6. Modélisation de la compensation de l'atténuation des ondes électromagnétiques

Si on se rapporte à la formule de la puissance dissipée, et à ce que l'on vient de voir dans les parties précédentes de la modélisation électromagnétique, le procédé de traitement des composites par micro-ondes conduit à des hétérogénéités le long du composite. Pour obtenir une uniformité spatiale des sources de chaleur dans la direction de propagation, il existe deux solutions :

- L'utilisation de sources micro-ondes alternées,
- L'utilisation d'un chargement diélectrique à géométrie spécifique.

II.6.1. Modélisation de la solution utilisant deux sources micro-ondes alternées

Pour respecter les conditions de symétrie, cette solution utilise deux sources micro-ondes de même puissance placées aux deux extrémités de l'applicateur (figure II.28). Les propagations des ondes émises par ces deux sources hyperfréquences

sont de même axe mais de directions opposées. Les deux sources micro-ondes sont alternées soit par un commutateur électrique soit par mise à profit des alternances de l'alimentation électrique industrielle. Cela a pour effet la sommation des effets thermiques des deux contributions d'énergie, mais cela a pour effet d'éviter un mode d'ondes stationnaires résultant de la superposition éventuelle des deux trains d'ondes.

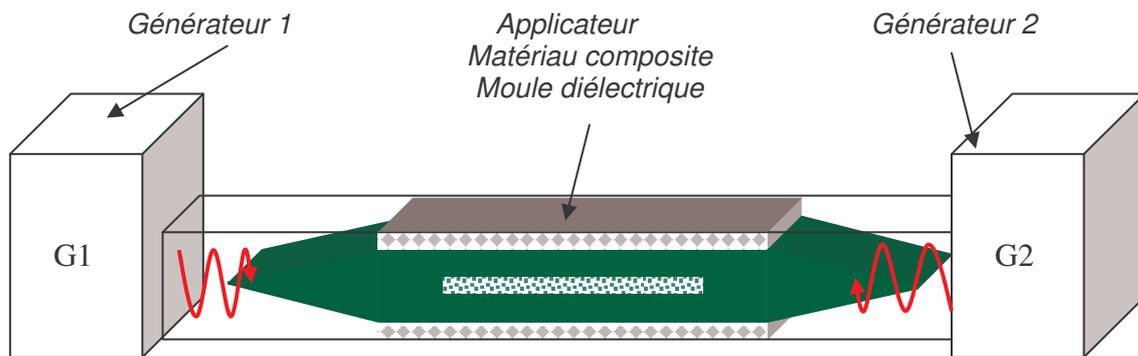


Figure II.28 : Schéma de la solution utilisant deux sources micro-ondes alternées

En conséquence, l'utilisation des deux sources micro-ondes permet de mettre en œuvre une puissance électromagnétique moyenne double, de créer une source de chaleur d'intensité double et donc d'atteindre des températures plus élevées. Dans le cas d'une absorption faible du matériau à traiter (figure III.29 pour $\epsilon''=0.1$), la distribution spatiale de la source de chaleur résultant d'un seul générateur est une fonction linéaire de l'espace. La sommation de ces deux distributions linéaires est une constante en fonction de l'espace dans le cas de la symétrie des sources électromagnétiques. Cette constance en fonction de l'espace conduit à une uniformité de l'élévation de la température résultant de la sommation des deux sources de chaleur évoluant linéairement en fonction de l'espace. Le gradient longitudinal de température résultant d'une alimentation par deux sources micro-ondes alternées permet bien une compensation de l'effet d'atténuation des ondes conduisant à une distribution uniforme des sources de chaleur et, en conséquence, de la température. Par contre, si le matériau à élaborer est très absorbant (figure II.29 pour $\epsilon''=1.6$), on observe un gradient de la source de chaleur le long de la pièce, entre son milieu et ces deux extrémités.

De plus, cette solution présente les inconvénients techniques suivants:

- L'investissement d'un deuxième générateur rend le projet coûteux par rapport à la deuxième solution que nous proposons dans le paragraphe III.5.2 du chapitre suivant.
- L'utilisation d'un seul générateur est rendu possible par la mise en œuvre d'un commutateur électromagnétique disposé en aval du générateur et qui fonctionne sur le principe du circulateur à ferrite présenté dans le paragraphe I.2.5.2.2. Ce commutateur permet d'assurer l'alternance du sens de propagation des ondes dans l'applicateur. Toutefois, dans le cas de la fréquence 915 MHz, l'utilisation d'un commutateur électromagnétique n'est plus possible, pour des raisons de constante de temps des matériaux magnétiques utilisées dans le commutateur à ferrite. La compensation de l'atténuation par des sources micro-ondes alternées n'est plus envisageable.

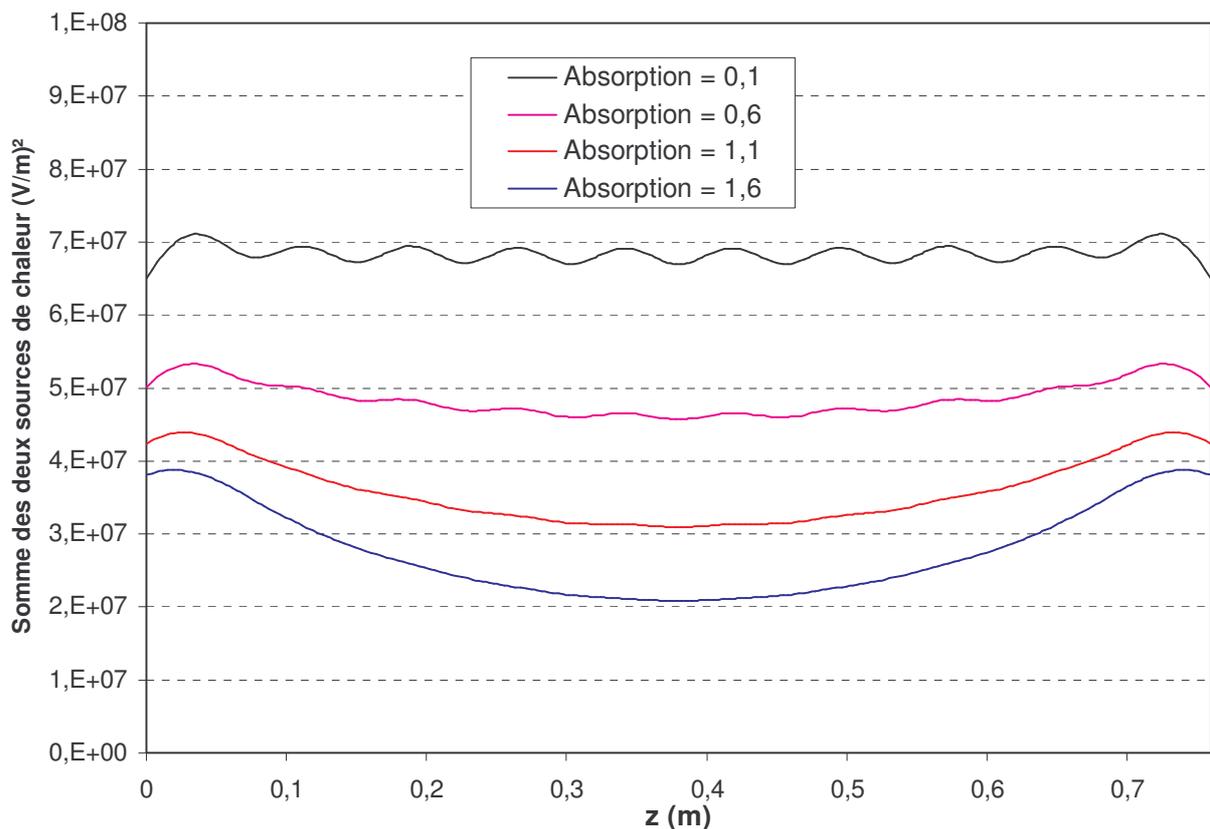


Figure II.29 : La distribution de la source micro-ondes obtenue par deux générateurs en fonction de la caractéristique d'absorption du matériau, avec 105 mm l'épaisseur du moule (l'épaisseur du moule = 7fois l'épaisseur de l'éprouvette)

II.6.2. Modélisation de la solution utilisant un chargement diélectrique à géométrie spécifique

Cette seconde solution utilise, pour compenser l'effet d'atténuation des ondes, les caractéristiques de propagation électromagnétiques du système moule et objet à traiter et plus précisément les propriétés particulières du chargement diélectrique. En effet, l'atténuation de l'onde dans la direction de propagation dépend de la caractéristique diélectrique d'absorption, de l'épaisseur de l'éprouvette à réaliser et des caractéristiques diélectriques des autres éléments diélectriques de remplissage de l'applicateur [II.13]

En réalisant une faible atténuation de l'onde dans le voisinage de l'interface d'entrée, puis une atténuation progressivement croissante, il est possible de prélever une part significative de plus en plus importante de la puissance transmise pour obtenir une valeur absolue constante de la puissance absorbée [II.14].

La solution consiste donc à réaliser une variation de l'épaisseur du moule diélectrique le long du matériau à traiter comme le montre la figure II.30, où M et N sont les rapports entre les épaisseurs du moule diélectrique et l'épaisseur de l'éprouvette. Je rappelle que la longueur des deux biseaux L_B est fixée à 0,50 m. Par modélisation électromagnétique, nous avons cherché à dimensionner le moule diélectrique et à trouver le rapport convenable de M/N , de telle sorte que nous obtenions une répartition uniforme des sources de chaleur d'origine électromagnétique dans le composite à traiter.

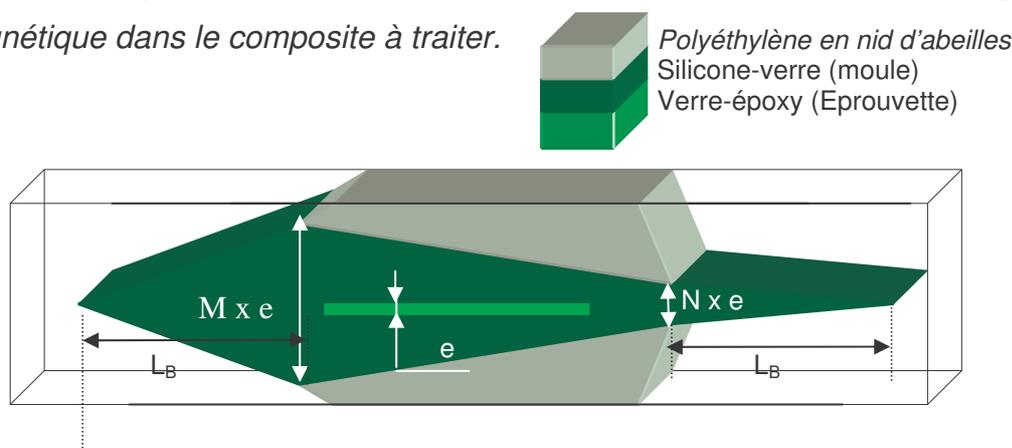


Figure II.30: Schéma de la solution utilisant un chargement diélectrique à géométrie spécifique

La première étape de la modélisation consiste à faire varier les dimensions M et N du moule diélectrique, tout en gardant l'épaisseur et les caractéristiques diélectriques de l'éprouvette, ainsi que les caractéristiques diélectriques du moule et du remplissage. Nous avons travaillé sur plusieurs épaisseurs du composite.

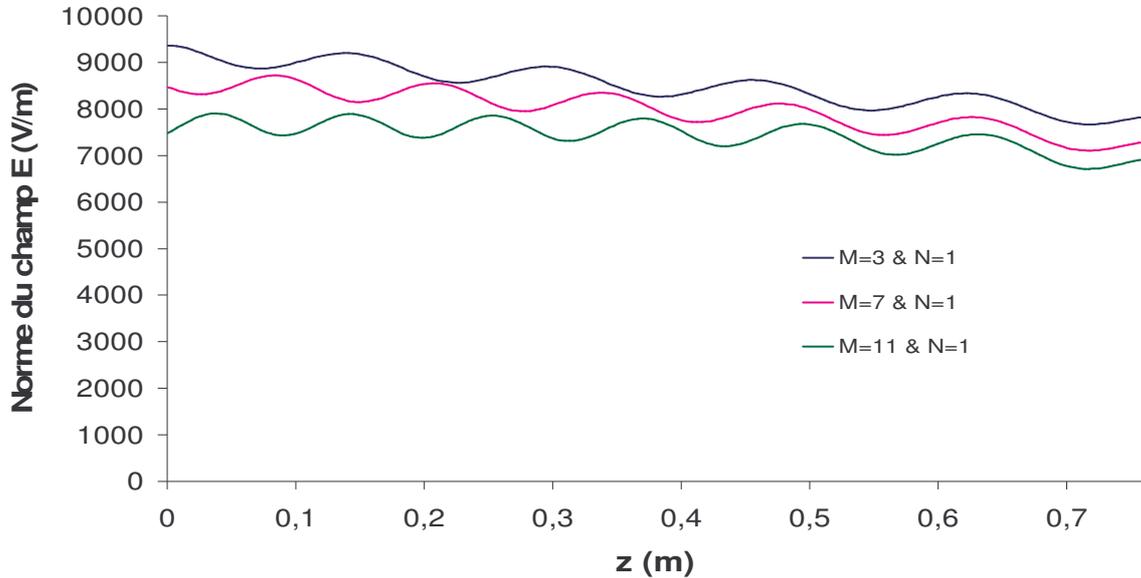


Figure II. 31: Evolution du champ électrique en fonction des dimensions du moule, le long de l'éprouvette de 5 mm d'épaisseur et de 0.30 de caractéristique d'absorption

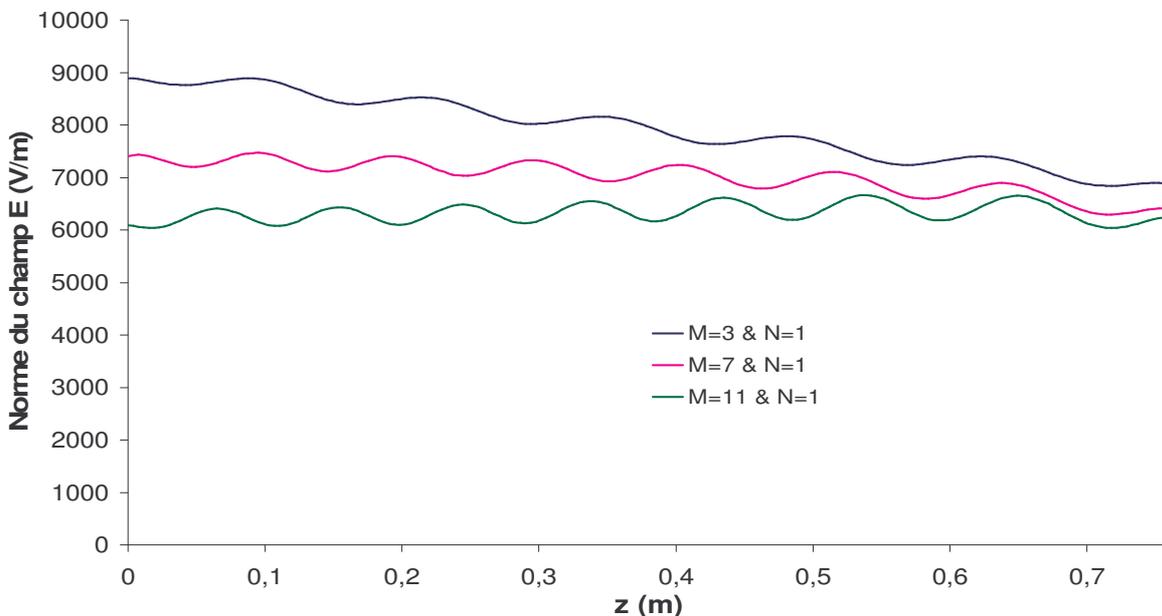


Figure II. 32: Evolution du champ électrique en fonction des dimensions du moule, le long de l'éprouvette de 10 mm d'épaisseur et de 0.30 de caractéristique d'absorption

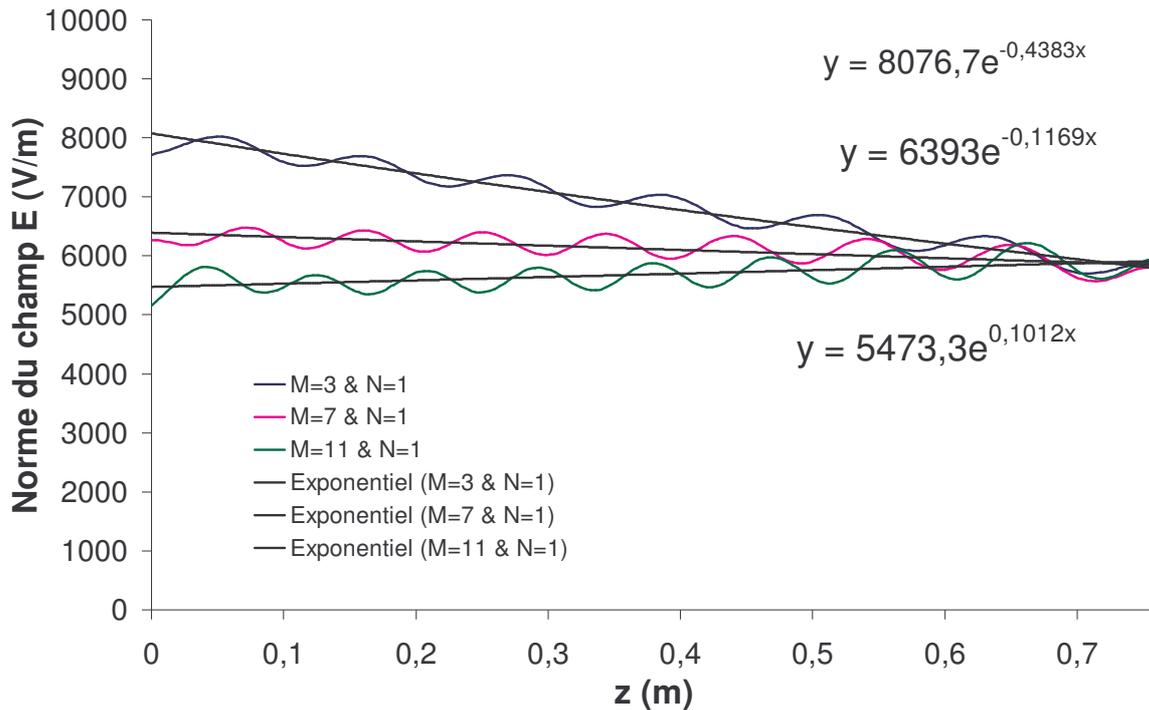


Figure II. 33: Evolution du champ électrique en fonction des dimensions du moule, le long de l'éprouvette de 15 mm d'épaisseur et de 0.30 de caractéristique d'absorption

Les figures de II.31 à II.33 représentent le profil du champ électrique dans le matériau à traiter en fonction des paramètres dimensionnels M et N du moule. Nous avons constaté d'après ces figures que plus on augmente l'épaisseur du moule à l'entrée de l'éprouvette, plus l'atténuation dans cette dernière diminue, et plus on tend vers une uniformité du champ électrique dans le composite jusqu'à une inversion de l'atténuation comme le montre les courbes dans le cas de $M=11$ et $N=1$.

Avec ces dimensions du moule diélectrique (c'est-à-dire $M=11$ et $N=1$), nous avons fait varier le coefficient d'absorption de notre matériau à élaborer. Le but est de savoir quelle est l'influence de l'évolution de ces caractéristiques sur cette solution proposée lors d'un procédé réel.

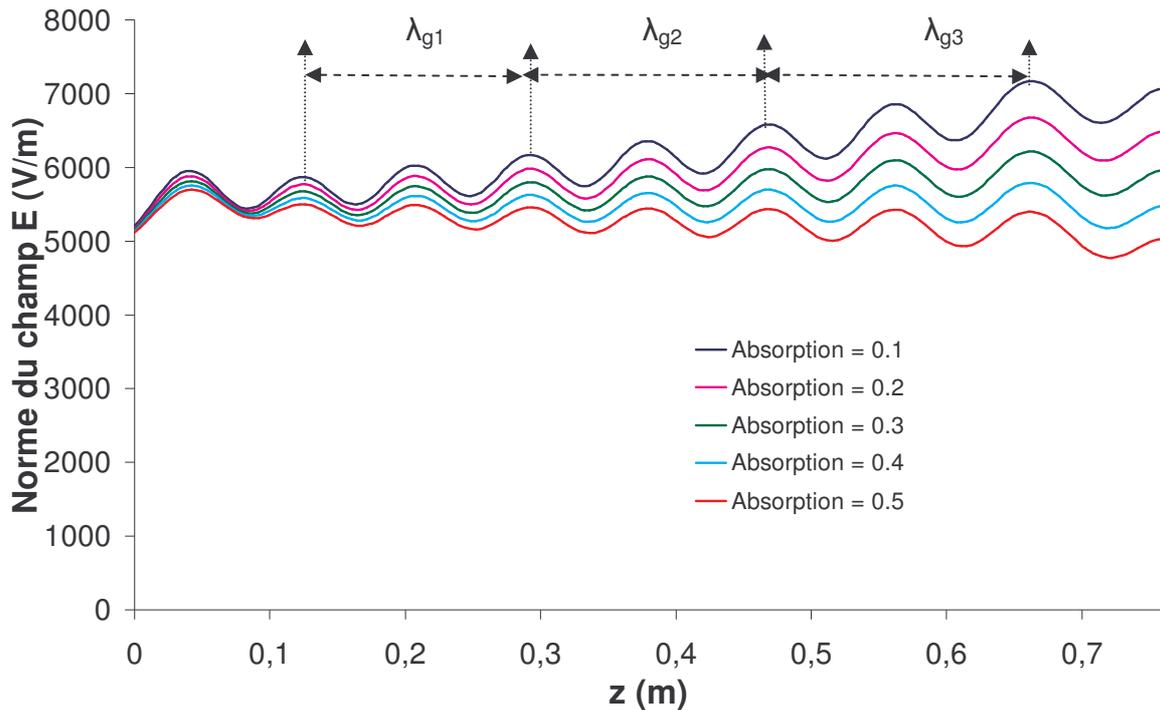


Figure II.34 : Profil du champ électrique le long de l'éprouvette de 15mm d'épaisseur et avec un moule d'épaisseur variable

Les figures II.34 et II.35 représentent respectivement le profil du champ électrique longitudinal et transversal d'une l'éprouvette de 15 mm d'épaisseur et avec un moule d'épaisseur variable le long du composite à traiter.

On remarque d'après la figure II.34 qu'on a un effet de compensation quelle que soit la variation de caractéristique du composite. On constate également d'après la figure II.34 que la longueur d'onde le long du composite à élaborer est variable dans la direction de la propagation d'onde électromagnétique. La modélisation de la longueur d'ondes montre qu'elle augmente ($\lambda_{g1} < \lambda_{g2} < \lambda_{g3}$) en fonction de z , dans la direction de la propagation. Cette augmentation est due à la variation de l'épaisseur du moule diélectrique dans cette direction. Plus l'épaisseur du moule augmente plus la longueur d'onde dans le composite diminue comme le montre les figures II.22, II.23 et II.24.

La figure II.35 représente l'évolution du champ électrique transversal dans les sections qui passe par les maxima du champ électrique. On remarque que le champ ne s'atténue pas de la même proportion d'une maxima à une autre. Cela explique

que l'atténuation de l'onde dans le cas d'un moule d'épaisseur variable le long de l'éprouvette n'est pas constante dans la direction de la propagation d'onde. Cette évolution de l'atténuation dans la direction de propagation est due à la variation de l'épaisseur du moule dans cette direction.

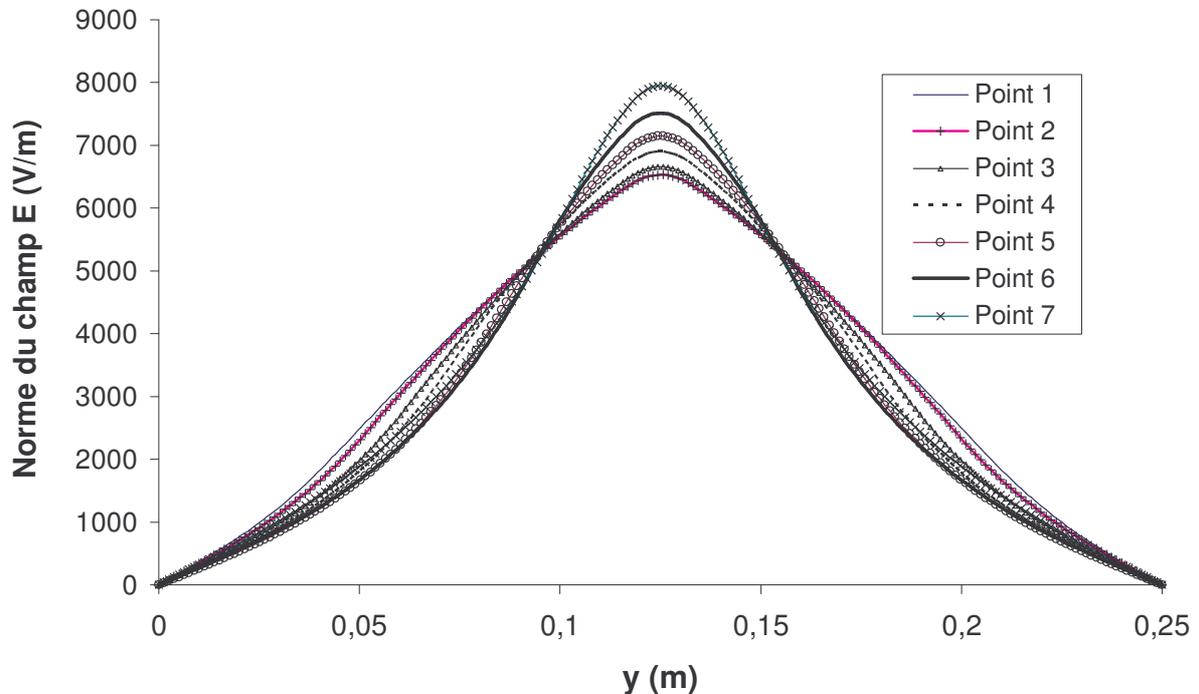


Figure II.35 : Le profil longitudinal de la norme du champ électrique aux abscisses z où le champ passe par des maxima

Conclusion

Ce chapitre s'intéresse à la modélisation électromagnétique du procédé fondé sur l'hystérésis diélectrique.

Nous nous sommes intéressés, dans un premier temps à la modélisation des propagations guidées pour vérifier quelques notions de base de l'électromagnétisme comme la longueur d'onde guidée et le mode fondamental TE_{01} . Nous avons constaté que dans un guide d'onde ou dans un applicateur parallélépipédique, le taux d'ondes stationnaires calculé correspond au taux mesuré.

Dans un deuxième temps nous nous sommes intéressés à la modélisation et à l'optimisation du procédé. Nous avons donc étudié tous les paramètres physiques et dimensionnels influençant la répartition de la source de chaleur d'origine électromagnétique dans le composite à traiter. Nous avons montré le rôle que joue l'adaptation aux interfaces pour minimiser les réflexions d'ondes et augmenter le rendement du système. Cette adaptation est choisie à l'aide des études antérieures. Nous avons constaté aussi dans tous les cas une atténuation des ondes électromagnétiques. Cette atténuation est due à l'absorption des ondes par l'éprouvette et la dégradation de l'énergie électromagnétique en chaleur. Cette atténuation est la cause majeure de l'établissement de forts gradients de température à l'intérieur du produit à traiter.

Cependant, et en troisième temps nous nous sommes intéressés à montrer les solutions connues. Nous avons montré l'aspect de la modélisation électromagnétique de ces solutions. Une solution utilise deux sources électromagnétiques alternées, et une autre utilise les propriétés diélectriques de l'ensemble du moule et la pièce à élaborer pour compenser l'atténuation des ondes électromagnétiques.

Nous allons voir dans la chapitre III, les raisons de notre choix sur la deuxième méthode dans le cas du procédé utilisant une fréquence 915 MHz, ainsi que la validation expérimentale de cette solution.

Références bibliographiques II

- [II.1] P. URRO, H. JULLIEN, V. DUHOT, *Comparaison structurale de systèmes DGEBA/DDA réticules par micro-ondes et par voie thermique, Annales des composites*, 1-2, 137, 145, 1990.
- [II.2] L. OUTIFA, *Contribution au génie de l'élaboration par micro-ondes de matériaux composites matrice polymère de dimensions supérieures à la longueur d'onde. Aspects électromagnétique et thermique. Thèse. Paris VI, 1992.*
- [II.3] E. JAO JULES, *Couplages entre propriétés thermiques, réactivité chimique et viscosité des matériaux composites thermodurcissables en relation avec les conditions de leur élaboration fondée sur l'hystérésis diélectrique. Thèse. Décembre 2001*
- [II.4] M. DELMOTTE, H. JULLIEN and M. OLLIVON, *Variation of the dielectric properties of epoxy resins during microwave curing, Eur. Polym. J. Vol. 27, 4/5, pp.371-376, 1991.*
- [II.5] V. VEGH, I. W. TURNER, E. SIZGEK and D. SIZGEK, *Numerical validation of microwave heated fluidised bed calcination of waste containing ceramic powders, ANZIAM J. 45 (E), pp34-49, 2004.*
- [II.6] J.P. PEREZ, R. CARLES, R. FLECKINGER *Electromagnétisme, Fondements et applications .MASSON. 3^{ème} édition. Juillet 1990.*
- [II.7] R. PETIT, *Ondes électromagnétiques en radioélectricité et en optique Chapitre IX, Masson 1993.*
- [II.8] L. OUTIFA, H. JULLIEN, C. MORE and M. DELMOTTE, *A homogeneous microwave curing process for epoxy-glass composites. Polym. Mat. Scien. And Eng. 72, pp341-343, 1995.*
- [II.9] H. RENAUDIN, *Simulation numérique du couplage électro-thermique en propagation guidée. Maitrise des gradients de champ électrique et de température en milieu dissipatif. Thèse. Université de Bourgogne. 1994*
- [II.10] W. E. HORD, *PhD, Univ. Missouri, Rolla, Mis. USA. 1966.*
- [II.11] T. MORENO, *Microwave transmission design data, Artech House, Boston 1989*

[II.12] E. JAO JULES, M. DELMOTTE and C.MORE. *Réc. Prog. Génie Proc.*, 15, 88 (2001) pp 169-176

[II.13] L., DOUADJI, M. DELMOTTE, *Modélisation de la température obtenue par l'effet diélectrique d'inversion de l'atténuation des ondes électromagnétiques pour le traitement thermique uniforme des matériaux composites*, pp.799-804, SFT2006, Ile de Ré- France, 16-19 mai 2006.

Chapitre III :
Les expériences et les mesures thermiques

Introduction

Bien que les composites à matrice thermodurcissable trouvent de nombreuses applications, l'inconvénient de ces matériaux est le coût des équipements et des procédés. La durée de traitement des matériaux composites, à l'aide d'un procédé basé sur un chauffage micro-ondes, a un avantage certain par rapport aux procédés conventionnels [III.1].

Nous avons vu que les micro-ondes présentent des difficultés de mise en œuvre liées à la structuration spatiale des sources de chaleur au sein du produit, à cause des deux problèmes majeurs, et ceci quel que soit le type d'applicateur utilisé. Le premier problème est le régime d'ondes stationnaires identifié par des zones chaudes et des zones froides. Ces zones sont séparées d'une longueur constante égale à la moitié de la longueur d'onde guidée λ_g . Ces ondes stationnaires sont dues aux multiples réflexions de l'onde incidente aux interfaces. Ce premier problème peut être considéré comme résolu en utilisant une adaptation convenable. Cette dernière est assurée par une forme biseautée des interfaces.

De plus, il est bien connu que si on dispose un produit présentant un fort coefficient d'absorption ε'' sous un champ micro-ondes, on constate rapidement l'établissement de forts gradients de température à l'intérieur du produit. Cela est dû à l'atténuation de la source de chaleur d'origine électromagnétique qui représente la seconde grande difficulté de ce procédé. [III.2]

Nous avons vu précédemment que, selon la direction principale de la propagation, la variation de l'amplitude du champ électrique suit une loi exponentielle décroissante [III.3]; la caractéristique de cette loi est l'atténuation qui constitue le problème le plus fondamental à résoudre pour obtenir des sources de chaleur uniformes. Cette atténuation dépend de l'ensemble des paramètres diélectriques et dimensionnels du système éprouvette–moule.

Dans ce chapitre, nous donnerons une description détaillée du procédé mettant en œuvre l'hystérésis diélectrique avant de présenter les matériels utilisés dans ce procédé (guide d'ondes, remplissage diélectrique). Nous allons voir la description

des matériaux diélectriques nécessaires au procédé et les démarches à suivre pour la préparation des éprouvettes. Nous verrons les différentes techniques de mesures thermiques sous champ micro-ondes, puis nous présenterons les résultats des mesures thermiques réalisées sur des éprouvettes épaisses en verre-époxy. Nous verrons aussi quelles sont les précautions expérimentales à prendre pour éviter la destruction des sondes utilisées dans ces mesures thermiques. Nous allons voir ensuite comment nous avons pu transposer les concepts de la modélisation électromagnétique aux moyens expérimentaux réels pour résoudre le problème de l'atténuation des sources de chaleur d'origine électromagnétique par l'effet diélectrique d'inversion de l'atténuation. Enfin, nous présenterons la mise en œuvre calorimétrique de l'atténuation et nous présenterons les résultats des mesures des puissances réfléchies, transmises et absorbées réalisées lors de l'élaboration des éprouvettes.

III.1. Description du procédé micro-ondes

Les éprouvettes à élaborer sont de forme parallélépipédique, de 0.10 m de largeur, de 0.76 m de longueur et de différentes épaisseurs de l'ordre du centimètre. Le procédé micro-ondes nécessite un applicateur parallélépipédique où l'onde se propage selon le mode TE₀₁ (figure III.3) et rempli de trois diélectriques (figure III.1 et III.2) dont l'un constitue le moule de la pièce à élaborer [III.4]. Les deux petites dimensions de l'éprouvette (épaisseur et largeur) sont toujours disposées selon les deux directions perpendiculaires à la propagation principale (figure III.1). La grande dimension de l'éprouvette est toujours disposée suivant cette direction.

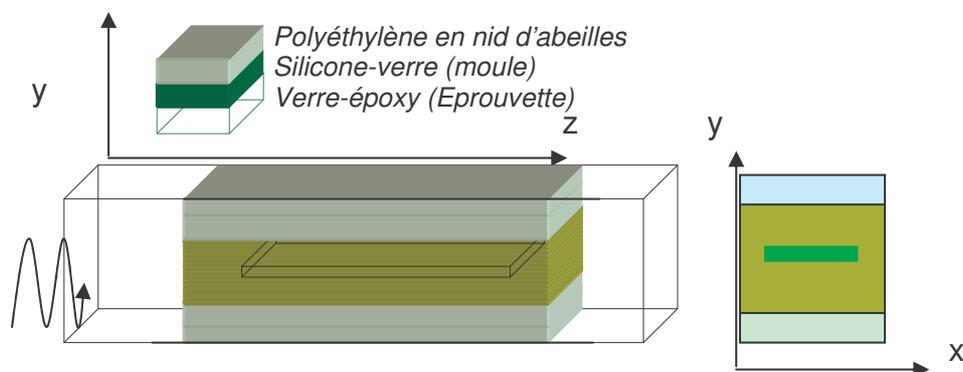


Figure III.1 : Modèle expérimental d'un applicateur rempli par trois diélectriques

III.1.1. Description de l'applicateur

Il s'agit d'un applicateur parallélépipédique en aluminium, d'une largeur de 0.12m, d'une hauteur de 0.25 m et d'une longueur de 2m.

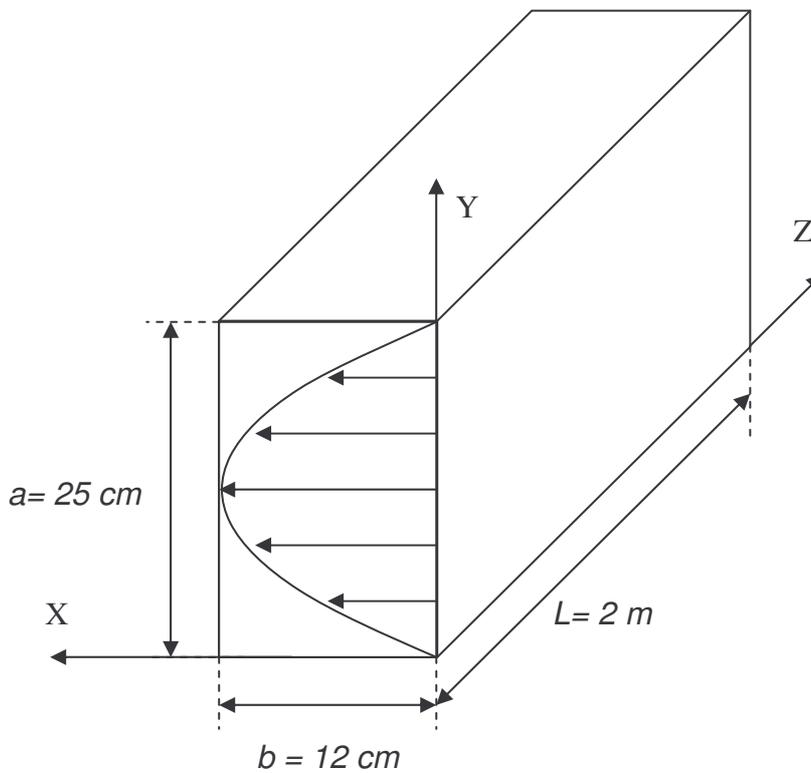
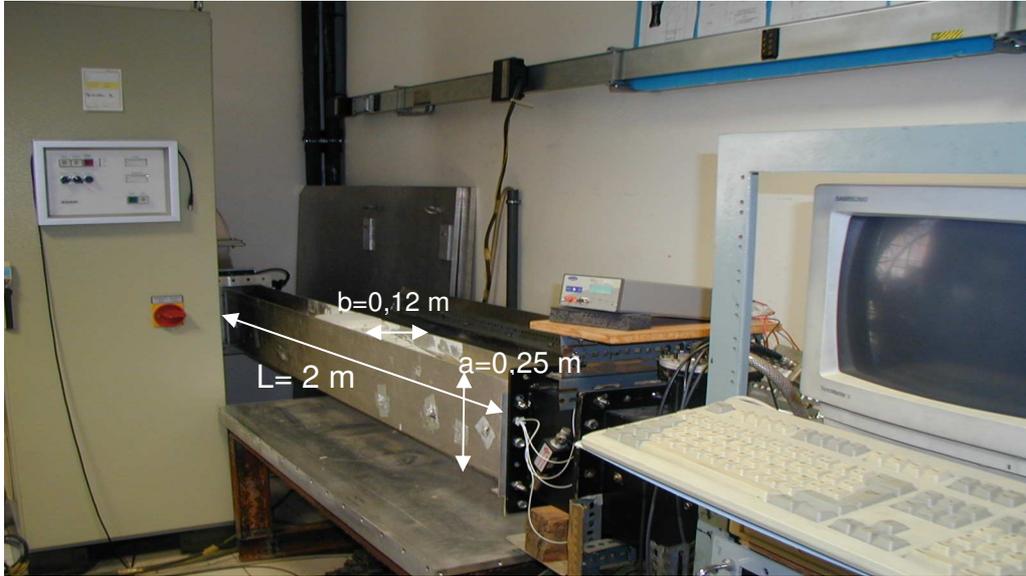


Figure III.2 : Matériels du procédé micro-ondes et rappel du mode TE01 associés par les dimensions de l'applicateur

III.1.2. Description du remplissage

Pour le remplissage de l'applicateur nous avons utilisé deux matériaux totalement différents sur le plan diélectrique et le plan thermique.

Le premier matériau utilisé est le polyéthylène (PE) à structure en nids d'abeille (figure III.3). Sur le plan diélectrique, ce matériau interagit peu avec les ondes, offrant peu de réflexion aux ondes ni d'absorption de l'énergie électromagnétique ; il a une permittivité ϵ' proche de 1 ($\epsilon' = 1.10$) et une caractéristique d'absorption ϵ'' de l'ordre de 0.001. Ce matériau joue donc le rôle de support, pour maintenir le moule et l'éprouvette dans le plan médian de l'applicateur.



Figure III.3 : Le polyéthylène

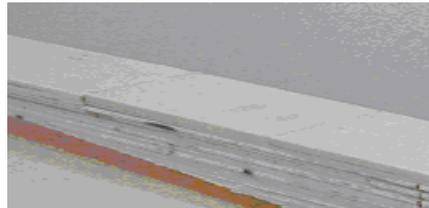


Figure III.4 : Silicone-verre

De plus, il est un très bon isolant thermique ; la valeur de sa conductivité thermique est particulièrement faible ($0.03\text{W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$). Dans les expériences antérieures au Laboratoire, il a été constaté que ce matériau, en entourant l'éprouvette, réalisait une très bonne isolation thermique de cette dernière, en réduisant les transferts thermiques à sa périphérie.

Le deuxième matériau utilisé est un composite de silicone-verre (SV) (figure III.4) d'origine industrielle qui est obtenu par compression à chaud de tissus de fibres de verre imprégnés d'une matrice silicone et présentés sous forme de plaques d'épaisseur de 5 mm ou de 3 mm. En assurant la forme de la pièce, ce matériau joue le rôle d'un moule.

Sur le plan diélectrique, ce matériau entoure l'éprouvette afin d'obtenir un effet de concentration des ondes dans le voisinage du plan médian de l'applicateur. Ce phénomène est dû à ses propriétés diélectriques qui sont beaucoup plus élevées que celles du polyéthylène en nid d'abeilles. Il a une permittivité de l'ordre de 5, et

une caractéristique d'absorption de l'ordre de 0.03 c'est à dire 30 fois plus importante que celle du polyéthylène en nid d'abeilles (PE).

Sur le plan thermique, ce matériau est, quand même, beaucoup moins isolant thermiquement que le PE; sa conductivité thermique est égale à $0.4 \text{ W} \cdot \text{m}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$.

III.1.3. Description du matériau à élaborer

Le matériau traité est un composite de fibres de verre imprégnées dans une matrice époxy (DGEBA-DDA); l'orientation des fibres est unidirectionnelle et longitudinale. Le composite est d'origine industrielle et se présente sous l'aspect d'une longue bande de composite sous forme d'un rouleau dont les couches sont protégées par une feuille intercalaire de polyéthylène qui évite qu'elles n'adhèrent les unes aux autres (figure III.5).



Figure III.5 : Images du composite pendant la préparation

III.2. Préparation des éprouvettes et des moules diélectriques

Le procédé micro-ondes est un procédé manuel qui a pour objet la réalisation de pièces en composite à matrice thermodurcissable. Ce procédé est classé dans la famille des procédés dits par voie sèche (sans solvant et sans réactif à l'état liquide) [III.5]. La réalisation se déroule en deux étapes :

- préparation et stockage du semi-produit (éprouvette) à partir d'un préimprégné,
- mise en forme du semi-produit et réticulation par chauffage micro-ondes dans un moule fermé.

III.2.1. La préparation de l'éprouvette

L'élaboration de l'éprouvette se déroule ainsi: on découpe à partir du rouleau des bandelettes de composites d'une longueur de 760 mm. La largeur des bandes est de 60mm; leur épaisseur est de 0.7 mm. Il faut donc 35 bandes disposées de la manière présentée sur la figure III.6, pour obtenir une éprouvette de largeur de 100 mm, de 15 mm d'épaisseur et de 760 mm de longueur (voir le tableau B.1 dans l'annexe B). On enrobe ensuite l'éprouvette dans un revêtement en téflon-verre qui n'interagit pas avec les ondes et qui ne sert qu'à éviter le fluage, hors du moule, de la matrice lors de son chauffage (figure III.7) et son adhérence aux éléments en silicone-verre.

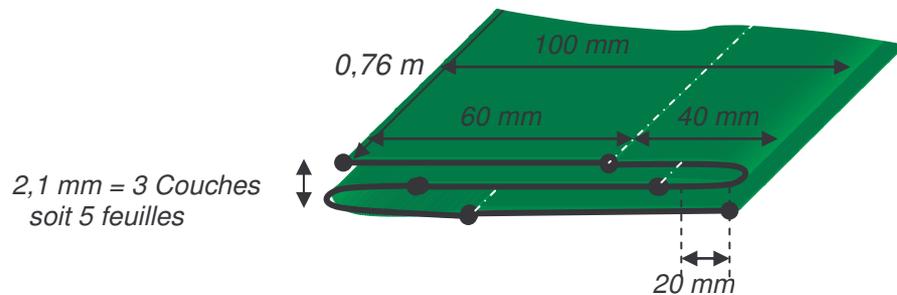


Figure III.6 : La disposition des bandes

L'éprouvette est installée au sein du moule (c'est-à-dire le remplissage diélectrique) dans l'applicateur pour l'élaboration et pour la transformation physico-chimique des constituants de la matrice pendant une durée de 30 minutes.

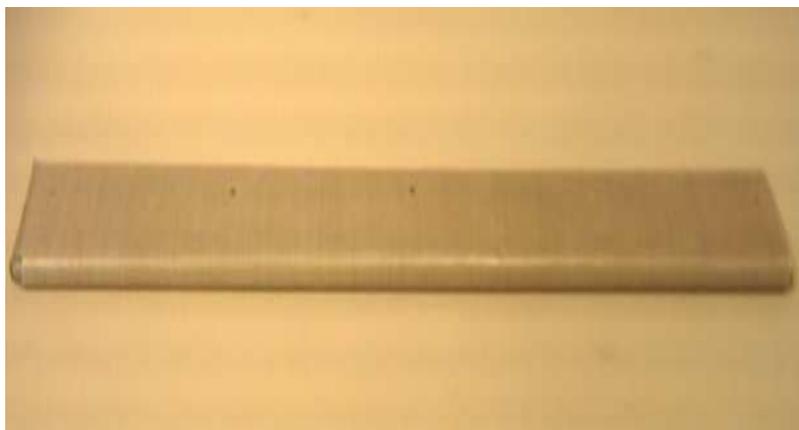


Figure III.7 : L'éprouvette enrobée dans le revêtement en téflon-verre

III.2.2. La préparation du moule et le choix de son épaisseur

On a vu dans le chapitre II de modélisation électromagnétique que la répartition du champ électrique dépend fortement de l'épaisseur du moule diélectrique. Le moule est préparé et son épaisseur est choisie en tenant compte de cette modélisation et des travaux expérimentaux antérieurs du Laboratoire (voir le tableau B.2 dans l'annexe B).

Le moule est composé par des plaques de silicone-verre de 5 mm et 3 mm de même largeur que l'applicateur. Pour obtenir une certaine épaisseur, il faut donc faire un empilement et une combinaison de ces plaques.

III.3. Thermométrie

La température est un paramètre très important du procédé, dans la mesure où l'on s'intéresse aux aspects cinétiques d'un phénomène chimique et physique lié à la transformation du matériau composite. Il est donc essentiel d'effectuer une mesure précise de la température. Nous verrons que cela va nécessiter des précautions sur le matériel de mesure à utiliser.

III.3.1. Les différentes techniques de mesures thermiques sous un champ micro-ondes

La plupart des capteurs de température doivent être reliés électriquement au système de traitement des données (thermocouples et thermistances). De manière générale l'utilisation de ces techniques dans un applicateur micro-ondes est donc impossible, à cause des problèmes de compatibilité électromagnétique de ces liaisons électriques qui jouent un rôle d'antenne. L'échauffement du thermocouple lui-même peut fausser considérablement les relevés [III.6]. Enfin, une orientation particulière des sondes par rapport à la direction du champ électrique peut limiter les interférences, mais en aucun cas les supprimer.

Ces effets nocifs sont modérés dans le cas d'une puissance faible ou dans le cas des matériaux fortement dissipatifs [III.7]

Par contre, il existe des techniques de mesure compatibles en électromagnétisme. Elles sont utilisées afin d'éliminer les problèmes d'interférence précédents. Dans ce cas, les liaisons conductrices sont remplacées par une fibre optique totalement non interférente avec les champs électromagnétiques.

III.3.2. Le thermomètre utilisé dans nos mesures

Le thermomètre utilisé est de marque NORTECH. C'est un thermomètre fluoro-optique et il dispose de quatre voies permettant quatre mesures de température simultanées. Il est donc possible de suivre simultanément l'évolution de la température en quatre points différents de l'objet à élaborer. En plus, il possède un écran d'affichage permettant un suivi constant de l'évolution de ces températures.

Les sondes possèdent une fibre optique n'interférant pas avec le champ électrique [III.8]. Chaque fibre optique est terminée par un détecteur en fluorogermanate de magnésium, de dimension de l'ordre du millimètre, rendant la sonde très fragile. Lorsque ce détecteur est excité par une lumière ultraviolette, il émet une onde lumineuse de fluorescence dont l'intensité est fonction de la température [III.9-III.10]. Le signal est ensuite traité à l'aide de photodiodes, permettant alors de déterminer la température avec une précision du dixième de degré.

Pour éviter les perturbations des signaux lumineux d'excitation et d'émission par la lumière ambiante, la fibre de verre qui véhicule ces signaux est recouverte de Téflon pigmenté. Le pigment sert également à protéger la fibre de l'environnement.

III.3.3. Etalonnage des sondes

Les étalonnages des sondes permettent de convertir les températures relevées en degré Celsius ($^{\circ}\text{C}$) à partir des valeurs en millivolts (mV) des signaux électriques provenant des photodiodes. Il est à savoir que le programme de suivi des expériences traite également sous forme de signaux électriques en millivolts les puissances électromagnétiques (incidente, réfléchie et transmise) mesurées pendant les expériences ; ceci permet une unicité des interfaces du système des traitements des données. Les étalonnages des sondes de température se déroulent comme suit:

a/ A l'aide d'un thermomètre à mercure, gradué de 25 °C à 210 °C, on relève la température d'un objet cylindrique métallique percé à sa surface d'un puits, et à l'aide des quatre sondes on enregistre en même temps les valeurs des températures données par les sondes sur ordinateur. Ce puits permet de maintenir les sondes et le thermomètre à mercure à la même température. L'objet cylindrique est entouré d'une bague chauffante. Cette bague est traversée par un courant électrique contrôlé par un potentiomètre (figure III.8), qui sert à élever la température de l'objet en augmentant l'intensité du courant qui traverse la bague chauffante.

b/ On note en même temps les valeurs des températures indiquées par le thermomètre à mercure et le temps relevé par l'ordinateur. On obtient un tableau qui donne la correspondance entre le temps et deux températures de l'objet cylindrique : une température en degré Celsius (°C) relevée par le thermomètre à mercure et la valeur du signal électrique en millivolt donné par le thermomètre fluoroptique.

c/ Pour chaque sonde, on trace la courbe qui donne le signal électrique en millivolt en fonction de la température en °C qui est une droite de forme: $y = a x + b$. Celle-ci est complétée par une courbe de tendance de premier degré par régression linéaire et permet d'obtenir la pente «**a**» de cette courbe ainsi que son ordonnée à l'origine «**b**» (voir l'annexe B)

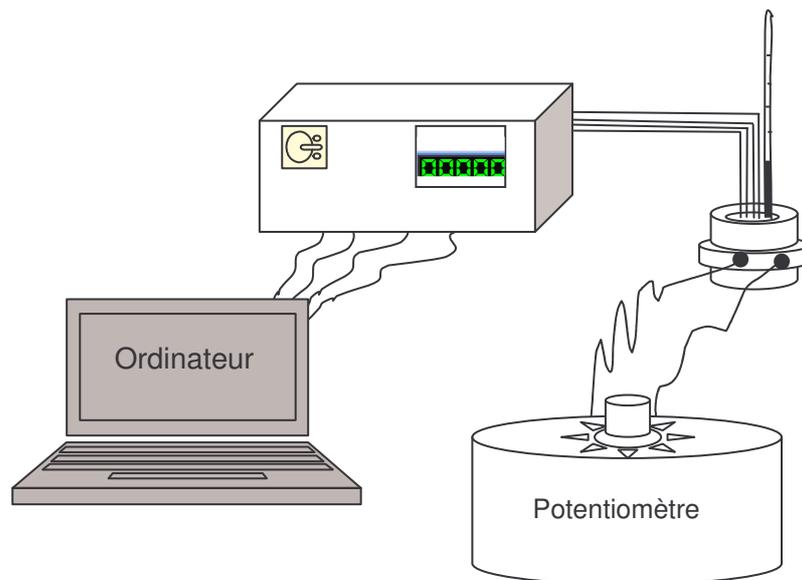


Figure III.8: Schéma simplifié de l'enregistrement des données des étalonnages

III.3.4. L'installation des sondes

Pour mesurer la température en un point donné de l'éprouvette d'étude en matériau composite, les sondes sont disposées dans l'éprouvette. Le matériau composite étant à matrice thermodurcissable, la résine réticule risquant, à chaque essai, sous l'effet de l'augmentation de la température, d'immobiliser les fibres optiques en son sein, provoquant ainsi la destruction des sondes fluoroptiques d'un coût unitaire élevé. La manipulation des sondes de température entraîne donc l'impossibilité de la mise en contact direct des sondes dans le matériau composite.

Pour éviter la destruction des sondes fluoroptiques, nous avons donc recours à des tubes de quartz de diamètre intérieur de 2 mm dans lesquels les sondes sont placées ; ces tubes sont insérés au sein du composite en différents emplacements repérés par leurs cotes (z_1, z_2, z_3 et z_4) (figure III.9). De cette manière, les sondes sont protégées et il est possible de les utiliser pour plusieurs expériences, ce qui augmente la reproductibilité des mesures et la comparaison des résultats.

De plus, la réduction de la viscosité de la résine en fonction de la température entraîne le fluage de cette dernière et peut provoquer les déplacements vers le haut des tubes de quartz qui contiennent les sondes. Ces déplacements verticaux (suivant l'ordonnée y) engendrent des erreurs sur les mesures de température, celle-ci étant maximale dans le plan médian en y . Il est donc nécessaire de maintenir les tubes de quartz, afin de garder les sondes aux points des mesures.

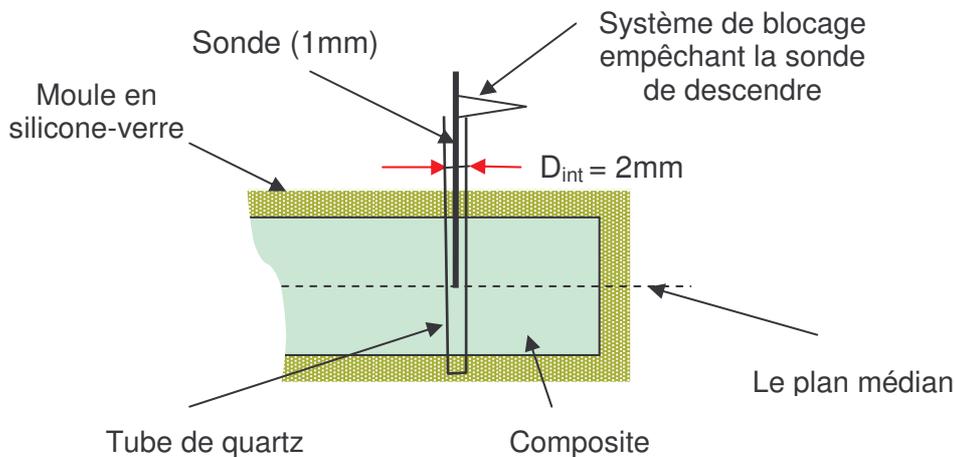


Figure III.9 : Dispositif permettant de positionner les sondes

III.4. Mesures thermiques pour le suivi temporel de la température dans le composite

L'évolution temporelle de la température est une donnée capitale de ce travail car elle renseigne sur la distribution de la température en différents points du matériau composite au cours de sa transformation, en fonction du temps.

Des séries de mesures thermiques ont été réalisées sur des éprouvettes de 15 mm d'épaisseur, en quatre points choisis à partir de l'interface d'entrée de l'éprouvette aux valeurs 0.02 m, 0.20 m, 0.38 m et 0.74 m de la cote z (Figures III.10 et III.11), par des sondes diélectriques non interférentes électriquement [III.11], fonctionnant sur le principe précédemment décrit, de la thermodépendance de l'intensité de la lumière émise par fluorescence.

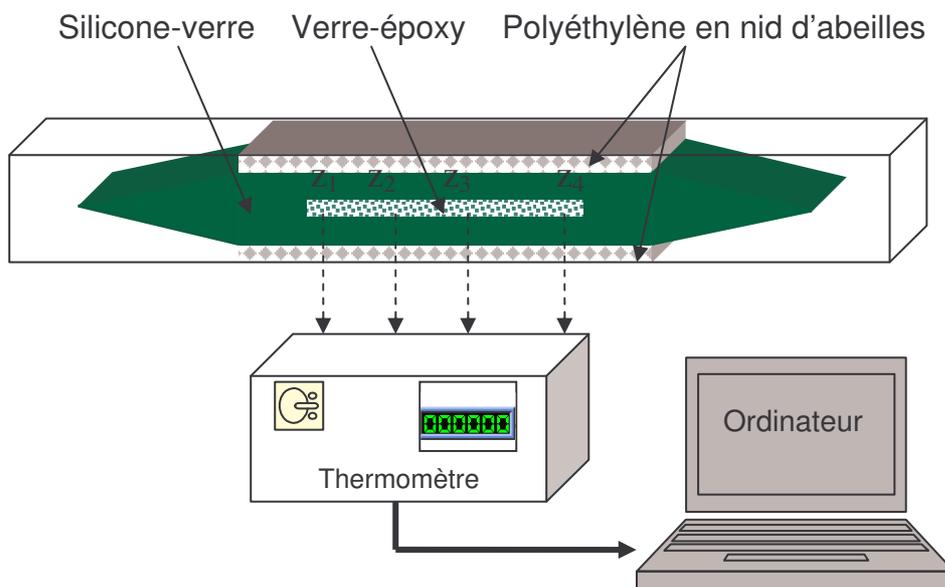


Figure III.10 : Schéma expérimental des mesures thermiques

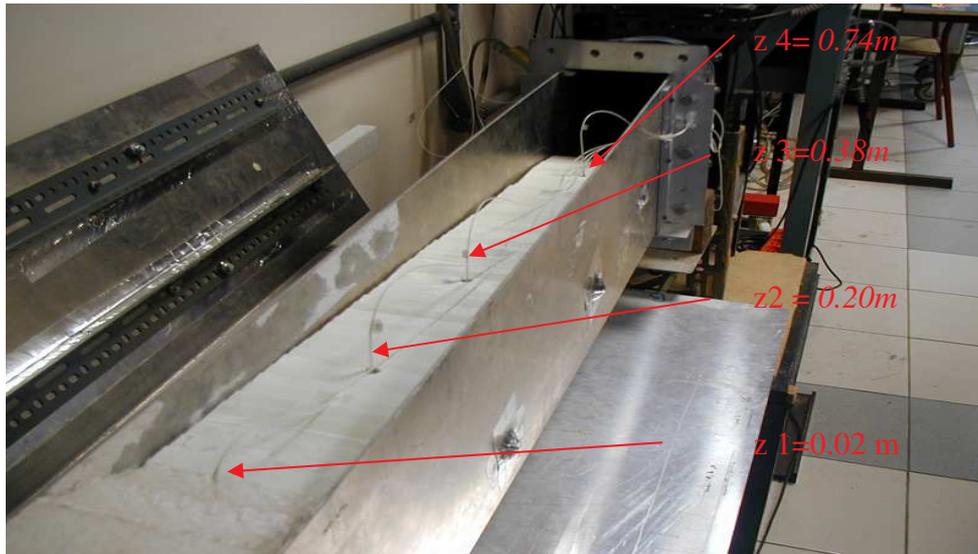


Figure III.11 : Les positions des sondes

III.4. 1. Paramètres des expériences

Nous avons réalisé des mesures de la température durant des expériences de 30 minutes sur des éprouvettes de 15 mm d'épaisseur. Ces éprouvettes sont entourées par le moule en matériau diélectrique (silicone-verre) et la hauteur de l'applicateur est complétée par le polyéthylène en nid d'abeilles comme nous l'avons expliqué précédemment.

L'épaisseur de silicone-verre (moule) est constante, et égale à 7 fois l'épaisseur des éprouvettes. La figure III.12 montre le schéma expérimental d'un applicateur rempli de l'éprouvette et du moule diélectrique.

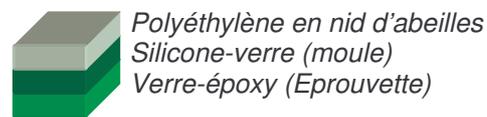


Figure III. 12 : Le schéma expérimental d'un applicateur rempli par trois diélectriques

III.4.2. Les résultats des mesures thermiques

Les courbes de la figure III.13 représentent l'évolution de la température en fonction du temps relevées par les mesures thermiques, le long de l'éprouvette dans le cas d'un moule d'épaisseur uniforme. L'allure générale des courbes de température en fonction du temps, obtenues lors de la réticulation de la résine époxy DGEBA été observé également par GOURDENNE [III.12].

On constate que les courbes de la figure III.13 présentent toutes une évolution de la température, en trois phases:

- La phase a est une partie à température croissante ; la température évolue de façon quasi-linéaire. C'est une période correspondant à une élévation de la température due au chauffage par micro-ondes jusqu'à environ 120 °C.

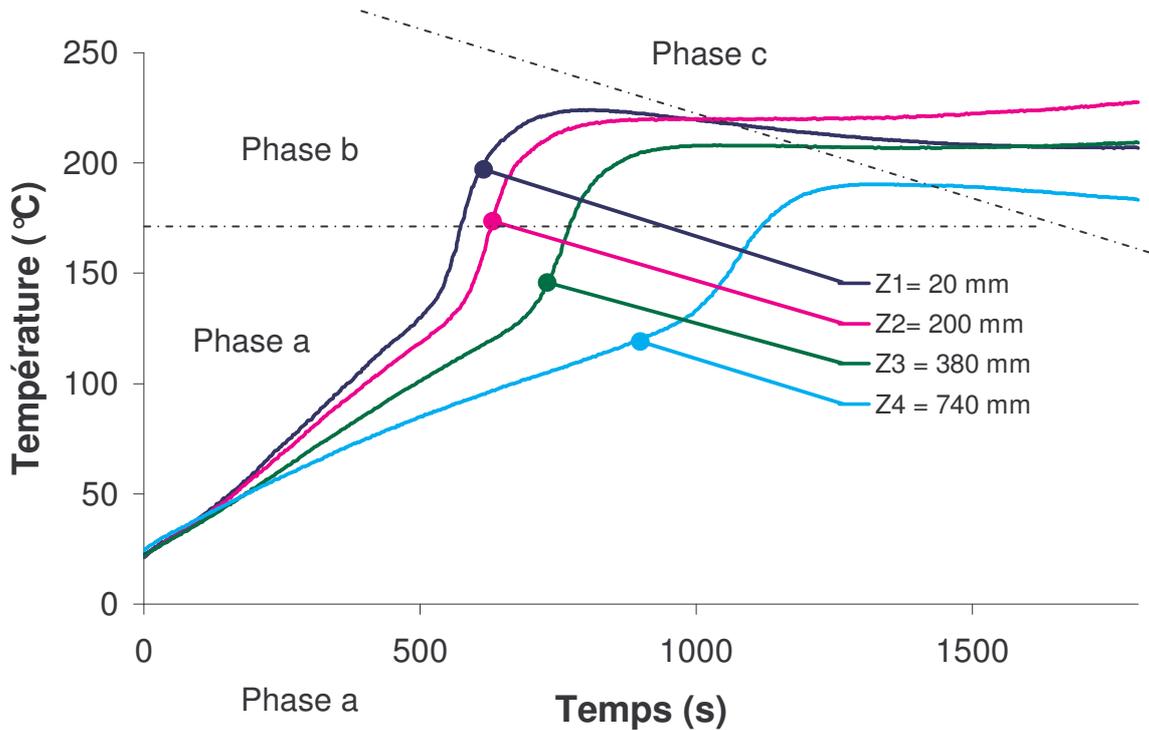


Figure III.13: Evolution des températures le long de l'éprouvette en fonction du temps

- La phase b est une période qui commence par une autre partie croissante d'une pente plus forte que la partie précédente et qui se termine par un maximum ou un plateau. Cette partie croissante est le signe de la manifestation de la réaction chimique. Pour la figure III.13, les points de changement de pente entre la partie quasi-linéaire croissante (phase a) de la courbe et la partie à pente plus élevée

(phase b) se produit pour la même température mais à des temps différents pour chaque point de mesure. Ils correspondent au début de la réaction de réticulation. Plus particulièrement, en raison de l'atténuation de l'onde électromagnétique suivant z , dans le cas d'un moule d'épaisseur uniforme le long de l'éprouvette (voir paragraphe II.4.1), la réaction de réticulation commence à partir de l'interface d'entrée puis la réaction de réticulation suit pour les autres points.

- La phase c est une dernière période représentée par une pente décroissante de l'évolution de la température qui commence après la fin de la réaction de réticulation. Cette évolution résulte d'un chauffage dû uniquement aux ondes micro-ondes et d'un refroidissement par les échanges de chaleur avec l'extérieur. On remarque que, dans cette phase, les variations de la température par rapport au temps aux quatre points ne sont pas les mêmes, cela est également dû au transfert de la chaleur au sein de l'éprouvette et aux échanges entre l'éprouvette et le moule diélectrique et leur environnement.

D'après les courbes de la figure III.13, le point situé à $z_1 = 0.02$ m de l'interface d'entrée, à gauche du composite et proche de la source de chaleur d'origine électromagnétique de plus forte intensité, possède la température la plus élevée. Le point $z_4 = 0.74$ m situé à l'opposé du point z_1 , possède la température la plus basse, ce qui est normal puisque la source micro-ondes s'atténue exponentiellement dans la direction de propagation. Cette atténuation est due à l'absorption par l'éprouvette de l'énergie véhiculée par les ondes micro-ondes. Cela est justifié par les résultats de la modélisation électromagnétique représentés par exemple par la figure II.18. Le calcul de cette atténuation entre les points de mesure z_1 et z_4 , dans ce cas, donne notamment une atténuation égale à $0,31\text{m}^{-1}$ (voir figure III.25).

De plus la modélisation électromagnétique nous montre un taux d'ondes stationnaires de l'ordre de 1.1. Cela est confirmé par des marquages visibles dans la figure III.24 sur les éprouvettes 1 et 2, réalisées à l'aide d'un moule d'épaisseur uniforme.

III.5. L'évolution temporelle de la température dans le composite sans atténuation

On a vu que l'absorption d'énergie dans la direction de propagation est la cause d'une atténuation du champ électrique, et par conséquent d'une décroissance de l'intensité des sources de chaleur dans cette direction. Pour obtenir une uniformité spatiale des sources de chaleur dans la direction de propagation, deux solutions sont possibles :

- *l'utilisation de deux sources hyperfréquences alternées, [III.13]*
- *l'utilisation du phénomène appelé effet diélectrique d'inversion de l'atténuation.*

III.5.1. L'effet diélectrique d'inversion de l'atténuation (EDIA)

Comme on a vu précédemment dans le chapitre 2, selon la direction principale de la propagation, la variation de l'amplitude du champ électrique suit une loi exponentielle décroissante. La caractéristique de cette loi est l'atténuation qui constitue le problème à résoudre pour obtenir des sources de chaleur uniformes. Cette atténuation dépend de l'ensemble des paramètres diélectriques et dimensionnels du système éprouvette–moule.

La compensation de l'atténuation se fait, en réalisant une variation spatiale convenable des dimensions des éléments diélectriques du moule le long de la pièce à élaborer [III.14]. Il est possible d'obtenir une variation de l'amplitude du champ électrique telle que la croissance spatiale de cette amplitude s'oppose au sens de l'atténuation électromagnétique (figure III.14). Cette situation est appelée l'effet diélectrique d'inversion de l'atténuation [III.15], et il permet l'obtention de sources de chaleur uniformes. Cette solution utilise les caractéristiques de propagation électromagnétiques du système moule et objet à traiter, et plus précisément les propriétés dimensionnelles particulières du chargement diélectrique.

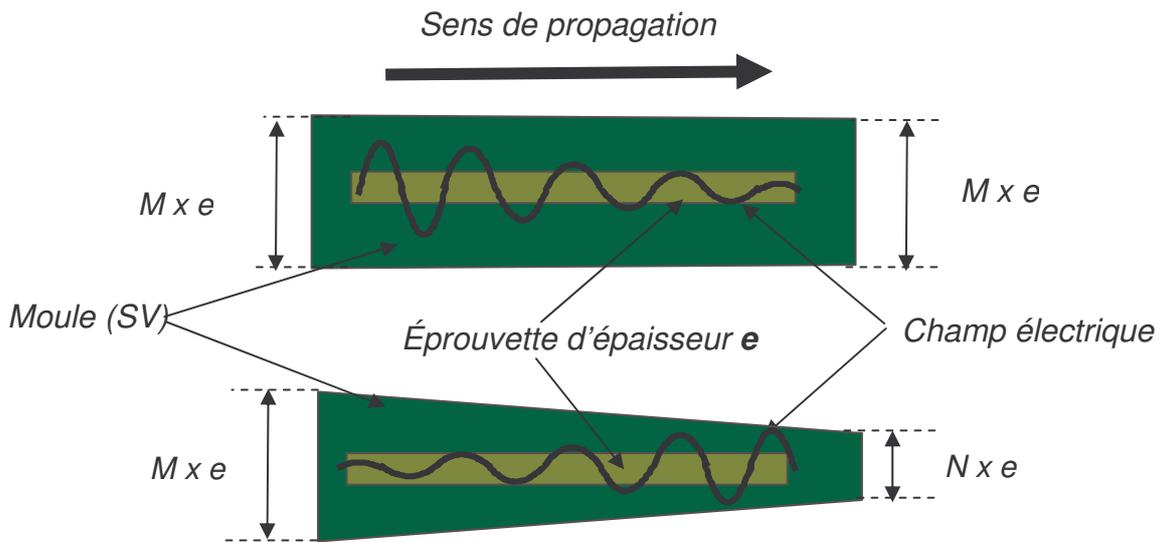


Figure III.14: Schéma représentatif du phénomène d'effet diélectrique d'inversion de l'atténuation

III.5.2.1. La géométrie du moule

Nous nous basons sur les résultats de la modélisation électromagnétique réalisée dans la chapitre II pour concevoir un modèle expérimental qui permettrait de vérifier que nous pouvons compenser l'atténuation de la source de chaleur d'origine électromagnétique par l'utilisation du phénomène d'effet diélectrique d'inversion de l'atténuation. Nous avons l'objectif d'obtenir une distribution uniforme des sources de chaleur le long du composite.

Le modèle idéal obtenu par une transposition directe des résultats électromagnétiques est présenté à la figure III.15, qui respecte un rapport M/N supérieur à 10 avec des biseaux d'égale longueur, en relation avec les résultats du paragraphe II.5.1.

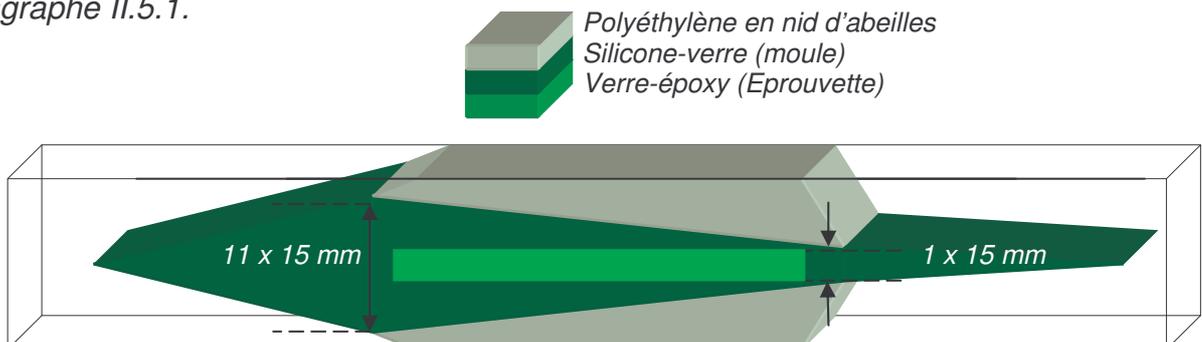


Figure III.15 : La géométrie idéal du moule, pour une éprouvette de 15mm.

La géométrie du moule du modèle électromagnétique de la figure III.15 ne peut pas être reproduite à l'identique à partir des outils diélectriques disponibles. Ces outils diélectriques ne sont pas des blocs massifs qui peuvent être découpés ou taillés en oblique. En effet, ils sont constitués de plusieurs matériaux de propriétés diélectriques très différentes, en conséquence de masses volumiques différentes et présentant des résistances mécaniques très différentes également. Il faut modifier la géométrie du moule de la figure III.15 pour la rendre symétrique, afin de placer le centre de gravité au centre de la structure et afin de ne faire subir aux matériaux diélectriques que des contraintes de compression.

De plus les matériaux disponibles sont toujours constitués d'empilements de plaques en silicone-verre (tissus de verre imprégnés de silicone) ou en polyéthylène en nid d'abeilles. Ces deux types de matériaux sont résistants aux seules contraintes de compression.

Pour respecter la symétrie recherchée et l'équilibre mécanique, nous avons augmenté l'épaisseur centrale du moule de la figure III.12, en maintenant la pente des deux biseaux à leur valeur initiale pour aboutir à une géométrie représentée par la figure III.16. Nous avons changé la position de l'éprouvette dans le moule (figures III.17 et III.18) de façon à la placer dans une zone d'épaisseur non uniforme du diélectrique de forte permittivité. Le principe est le même que celui du modèle électromagnétique de la figure III.15 ; nous avons une éprouvette entourée par un moule d'épaisseur non uniforme dans la direction de la propagation de l'onde.

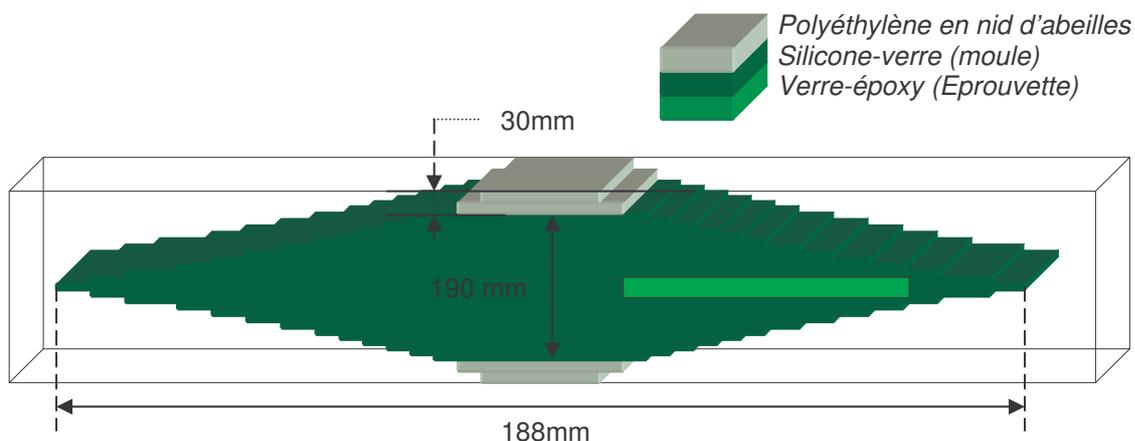


Figure III.16 : La géométrie et les dimensions de modèle du moule expérimental de la première expérience sans atténuation

Cette transposition en plusieurs étapes conduit à une modification simple des outils diélectriques. La géométrie de ce montage est mécaniquement symétrique. Son centre de gravité est positionné au milieu de l'appliqueur, ce qui apporte un équilibre pour le montage dans le guide. Enfin il comporte deux biseaux de même pente.

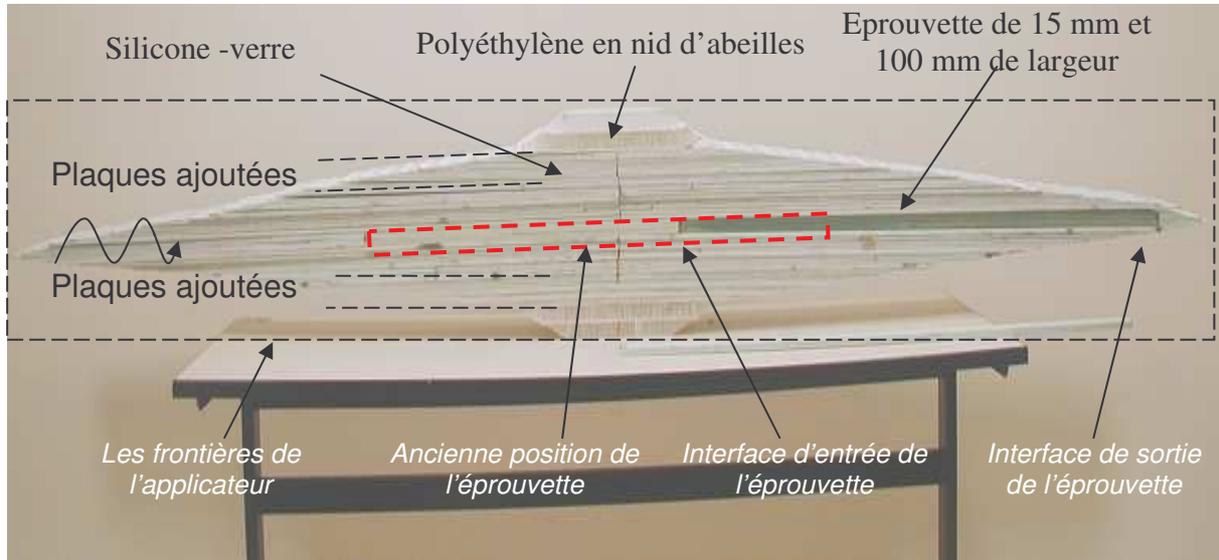


Figure III.17: Le moule expérimental et la position de l'éprouvette

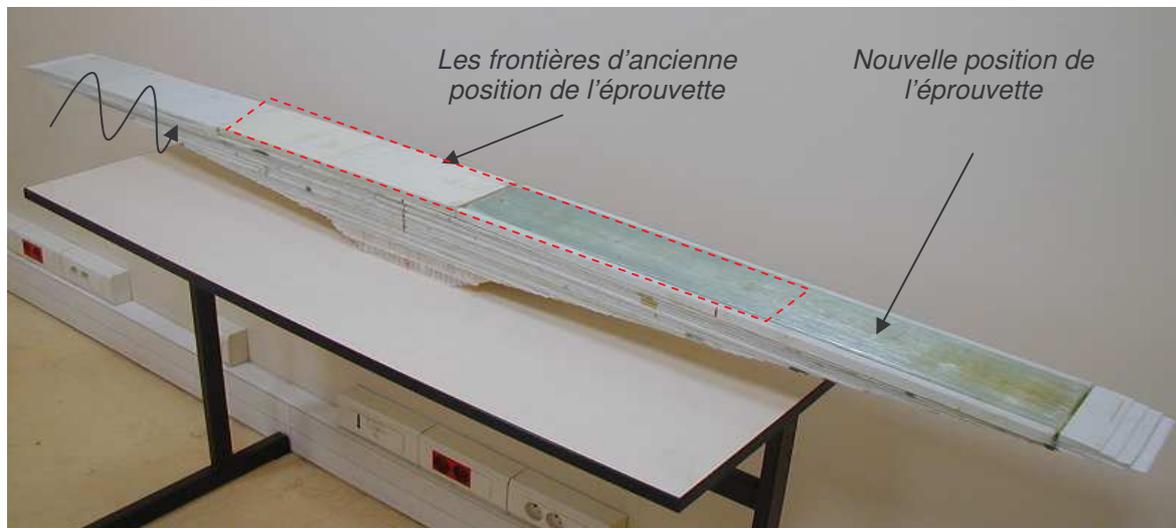


Figure III.18: La moitié du moule et la position de l'éprouvette

D'autre part, la modélisation électromagnétique appliquée à la géométrie obtenue donne des résultats satisfaisants de point de vue de la répartition du champ électrique dans le composite.

On remarque d'après les résultats de la modélisation électromagnétique représentée par les figures III.19 et III. 20, que l'atténuation du champ électrique le long de

l'éprouvette est compensée par l'utilisation de cette géométrie du moule diélectrique de la figure III.16.

On remarque également dans la figure III.19 que, plus on s'éloigne de l'interface d'entrée de l'éprouvette dans la direction de la propagation des ondes et plus on s'approche de l'interface de sortie, plus les amplitudes maximales du champ électrique s'intensifient le long de la section longitudinale de l'éprouvette.

De plus, la figure III.20 montre que la variation du coefficient d'absorption de l'éprouvette n'influe pas sur cette compensation, dans le domaine de 0.1 à 0.5 des valeurs de ce coefficient. Ce domaine de valeurs couvre largement les variations de l'absorption, en fonction de la température, du matériau composite verre-époxy concerné. On remarque que lorsque ce coefficient augmente, l'intensité du champ électrique aux points qui sont situés proches de l'interface de sortie de l'éprouvette, reste toujours plus forte que l'intensité du champ aux points situés proches de l'interface d'entrée de l'éprouvette. On observe donc la situation inverse en comparaison avec les résultats de la modélisation électromagnétique représentée par la figure II.27 du paragraphe II.5.4. Rappelons que ces résultats-là sont obtenus pour le cas d'un moule d'épaisseur uniforme le long de l'éprouvette. La nouvelle situation confirme l'appellation «effet diélectrique d'inversion de l'atténuation», comme nous avons vu dans le paragraphe III.5.1.

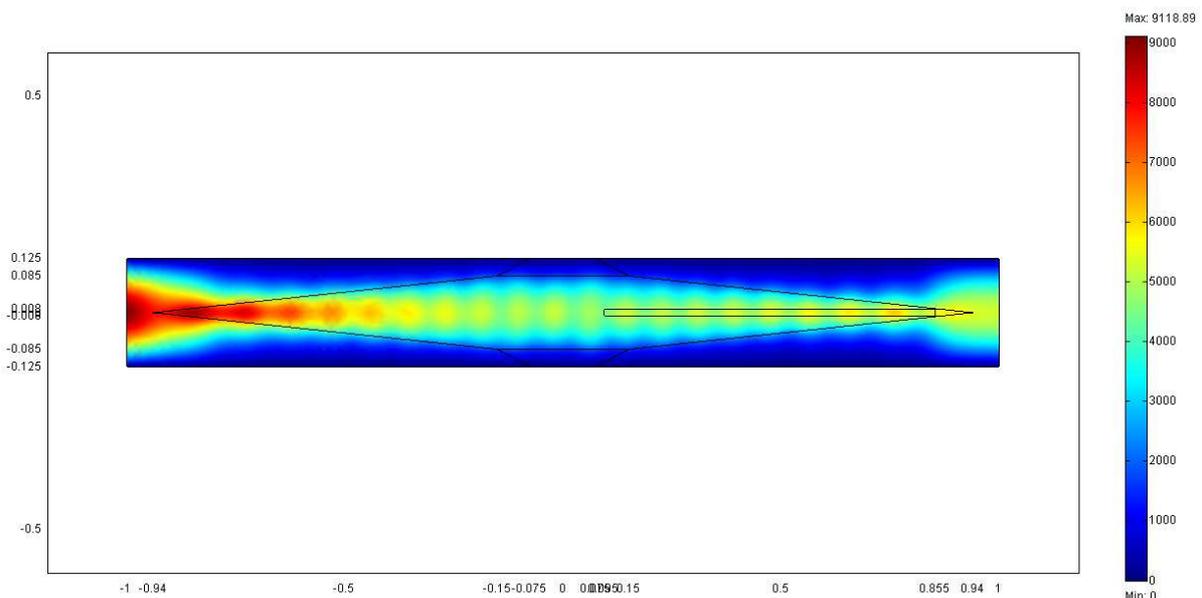


Figure III.19 : Profil de la norme du champ électrique dans l'applicateur et le moule choisi, représenté dans la figure III.17

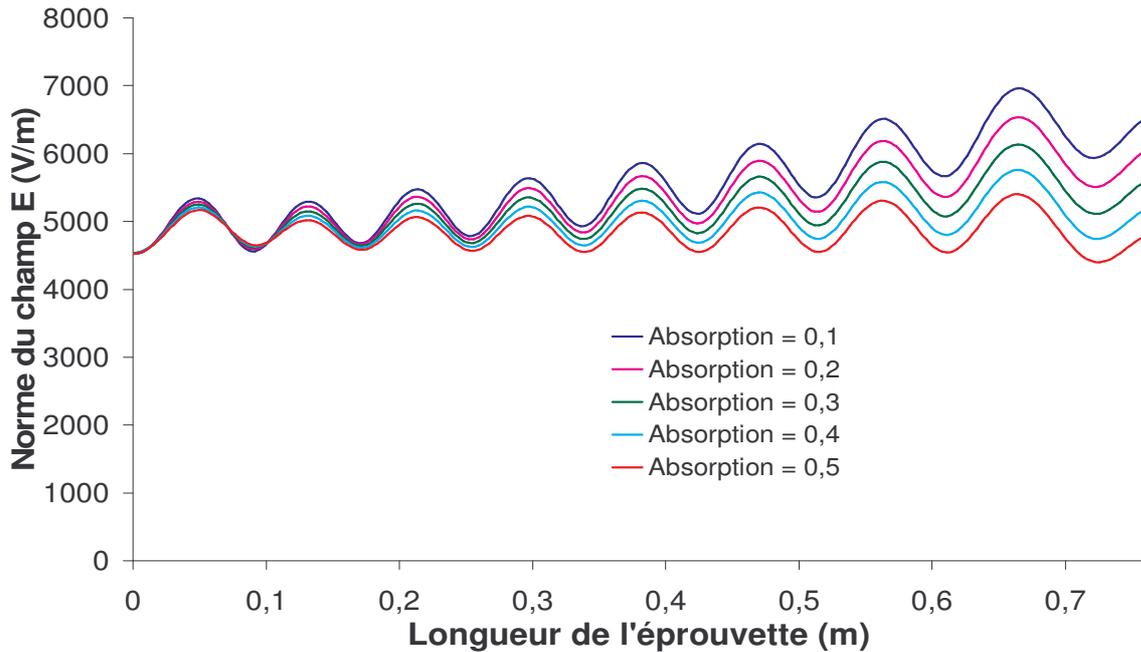


Figure III.20 : Profil de la norme du champ électrique dans le plan médian de l'éprouvette

Nous avons donc décidé de réaliser nos expérimentations sur ce moule, en élaborant des éprouvettes de 15 mm, et en faisant en même temps des mesures de température le long du composite.

III.5.2.2. Les points des mesures

Pour assurer comparaison avec les expériences précédentes réalisées avec un moule diélectrique d'épaisseur constante, les positions des points des mesures définies par rapport à l'interface d'entrée de l'éprouvette, n'ont pas été pas changées. Par contre, il faut accepter que leurs positions par rapport au moule soient changées ; cela est dû au changement de la position de l'éprouvette dans le moule.

III.5.3. Les premières mesures thermiques sans atténuation

Les premiers résultats des mesures thermiques utilisant le phénomène d'effet diélectrique d'inversion de l'atténuation sont représentés par la figure III.21. On remarque d'après les courbes de cette figure, que les évolutions des températures en fonction du temps présentent toujours trois phases, comme pour le cas d'un moule d'épaisseur uniforme (figure III.13). L'interprétation et les détails de ces

phases sont les mêmes que dans le cas d'un moule d'épaisseur uniforme (paragraphe III.4.2).

Cependant, contrairement au cas représenté par la figure III.13 (moule d'épaisseur uniforme), on remarque cette fois, d'après les courbes de la figure III.21 (moule d'épaisseur variable dans le sens de propagation des ondes), que c'est le point $z_4 = 0.74$ m qui possède la température la plus élevée, bien que le côté gauche bénéficie de la plus grande intensité de la puissance électromagnétique véhiculée par l'onde. Cela est dû au fait que l'atténuation des sources de chaleur d'origine électromagnétique suit le phénomène d'effet diélectrique d'inversion de l'atténuation. Cette «inversion» est justifiée par les résultats de modélisation électromagnétique représentés par les figures III.19 et III.20. Cela est confirmé par des marquages visibles, du côté droit, dans la figure III.24 sur les éprouvettes 3 et 4, réalisées à l'aide d'un moule d'épaisseur non uniforme. Dans ce cas (cas d'un moule d'épaisseur non uniforme le long de l'éprouvette), le calcul de l'atténuation entre les points de mesure z_1 et z_4 , donne une atténuation apparente «négative» égale à $-0,37$ m^{-1} (voir figure III.26).

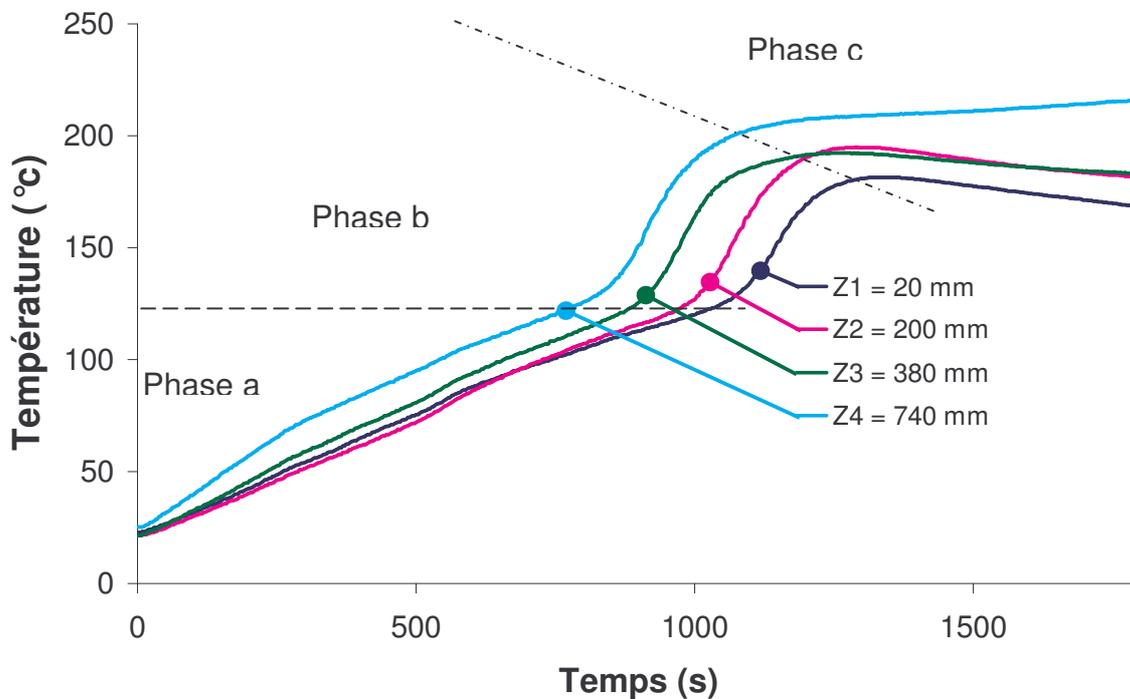


Figure III.21: Evolution des températures le long de l'éprouvette en fonction du temps, obtenue avec le premier moule sans atténuation (EDIA)

On observe en plus dans la figure III.21, en raison de cette compensation de l'atténuation de l'onde électromagnétique, et contrairement au cas de la figure III.13,

que la réaction de réticulation commence à partir de l'interface de sortie. Cette observation renforce bien le fait que l'atténuation de la source de chaleur d'origine électromagnétique est donc inversée.

III.5.4. Les secondes mesures thermiques sans atténuation

La modélisation électromagnétique a montré que, plus on augmente l'épaisseur du moule ($M \times e$) à l'interface d'entrée de l'éprouvette (voir la figure II.6.2.), plus la norme du champ électrique diminue à l'interface d'entrée et plus la source de chaleur d'origine électromagnétique est compensée, jusqu'à ce que l'on arrive à une inversion apparente de l'atténuation. D'après les résultats des mesures thermiques représentés par la figure III.21 précédente, on a une «inversion» forte de l'atténuation en raison d'une trop forte compensation. Nous avons donc décidé de modifier les paramètres géométriques du moule diélectrique représenté par la figure III.16, afin d'observer la sensibilité du phénomène à ces conditions expérimentales, et bien sûr afin de tendre vers de meilleures conditions d'une uniformité spatiale de la température dans le composite.

L'épaisseur du moule diélectrique de la figure III.16 a été réduite par le retrait de deux fois trois plaques de 3 mm, en dessous et au dessus du moule (pour garder la symétrie du montage), à la verticale de l'interface d'entrée de l'éprouvette. Les plaques de silicone-verre retirées ont été remplacées par des plaques de polyéthylène en nid d'abeilles de 10 mm. L'épaisseur du moule silicone-verre a donc été réduite jusqu'à 170 mm (figure III.22).

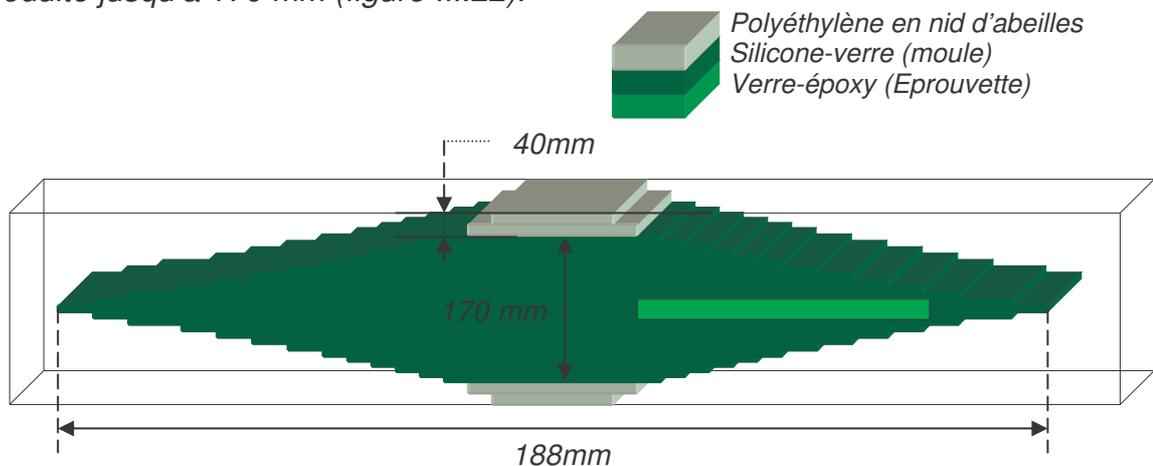


Figure III.22: La géométrie et les dimensions du moule pour les deuxièmes mesures thermiques sans atténuation

Comme dans les cas précédents, nous avons réalisé nos expérimentations sur ce moule, en élaborant des éprouvettes de 15 mm, et en réalisant en même temps des

mesures de température le long du composite. La figure III.23 représente l'évolution, lors de l'élaboration, des températures aux mêmes endroits de l'éprouvette que précédemment. On remarque d'après la figure III.23, comme pour les deux cas précédents, que les évolutions des températures en fonction du temps présentent toutes trois phases. Les interprétations et les analyses de ces phases sont semblables aux deux premiers cas.

Cependant, et contrairement au cas précédent (figure III.21), on remarque, d'après les courbes de la figure III.23, que dans la phase a, les trois premiers points (z_1 , z_2 et z_3 ,) ont le même profil de température. Mais, dès que la réaction chimique se manifeste vers 120 °C, les profils de température en ces trois points se séparent, mais tout en restant relativement proches. Ces profils de température montrent qu'il y a une compensation de l'atténuation des sources de chaleur d'origine électromagnétique convenable. En effet, l'élévation forte de la température au point $z_4 = 0.74$ m dépend, de plus, de la capacité calorifique du moule en ce point, qui est plus faible que le long de l'éprouvette [III.16]. La partie de l'éprouvette qui se trouve dans le voisinage de l'interface de sortie de l'onde, est entourée par une couche en silicone-verre égale à seulement 1,33 fois l'épaisseur de l'éprouvette.

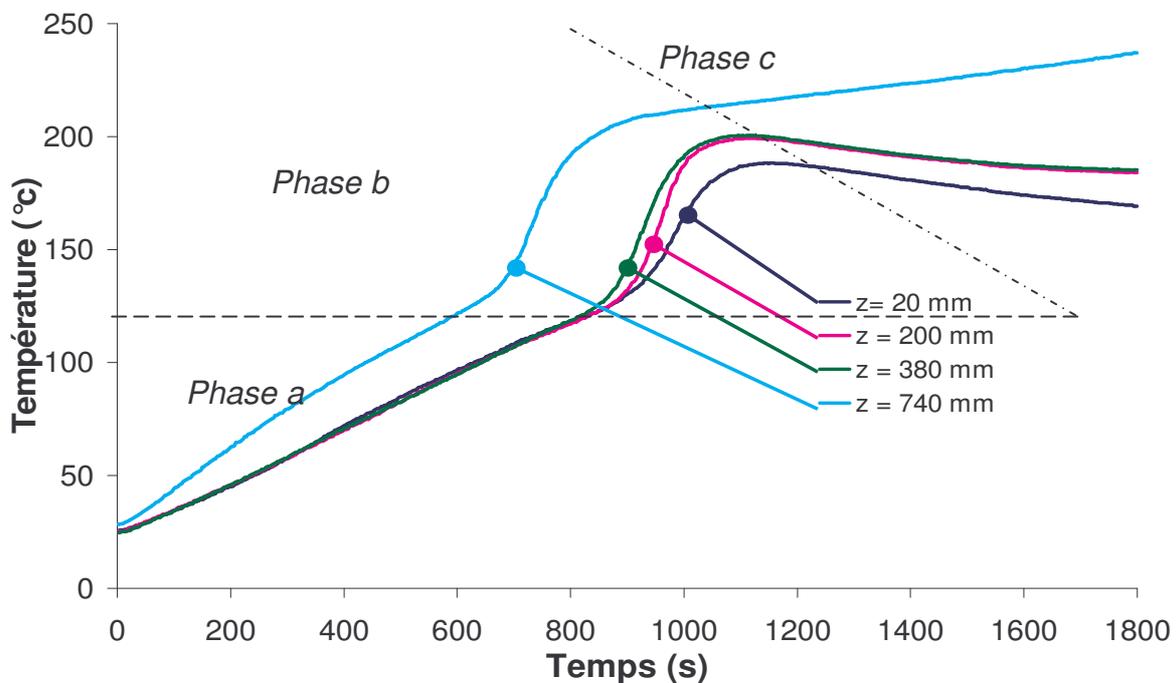


Figure III.23: Evolution des températures le long de l'éprouvette en fonction du temps, obtenue avec le deuxième moule sans atténuation (EDIA)

De plus, les calculs de l'atténuation de la source de chaleur d'origine électromagnétique entre les points de mesure z_1 et z_4 , pour cette expérience donne une atténuation apparente négative égale à $-0,38 \text{ m}^{-1}$ (figure III.27)

Les valeurs absolues des deux atténuations mesurées au paragraphe III.5.3 et ci-dessus sont très voisines et ne reflètent que la difficulté de la mesure calorimétrique et le fait que la modification de l'empilement des plaques de silicone-verre du moule, a été très partielle.

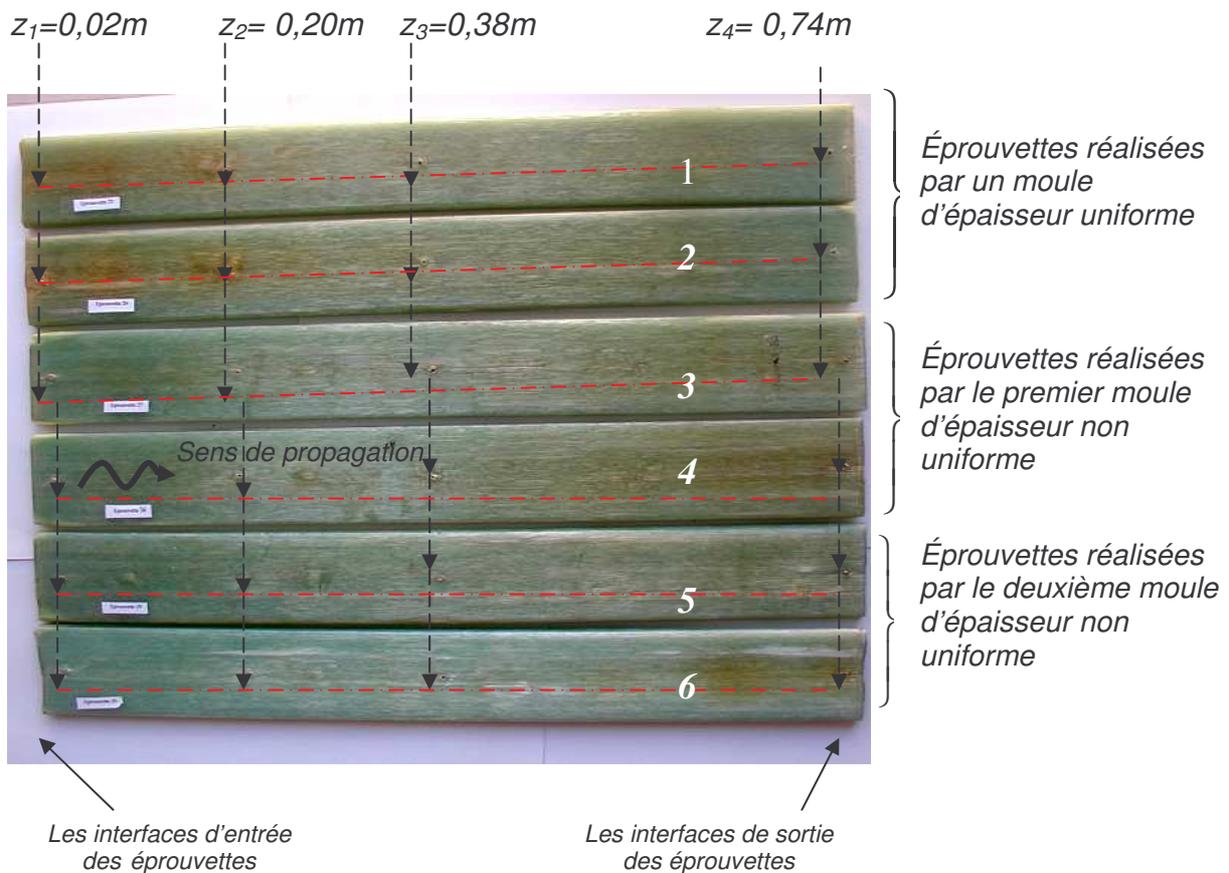


Figure III.24 : Les éprouvettes réalisées

III.6. Mesures calorimétriques de l'atténuation

Les mesures de la température réalisées permettent une comparaison nouvelle et différente du comportement électromagnétique des trois moules utilisés. Ce comportement électromagnétique est accessible par l'intensité des sources de chaleur d'origine électromagnétique. L'intensité de ces sources de chaleur est mesurable à partir de la dérivée en fonction du temps de la température, en tout point de l'éprouvette et à l'instant initial de réalisation du phénomène d'hystérésis

diélectrique, instant pour lequel la température de l'éprouvette et la température de son environnement sont égales, et pour lequel les réactions chimiques n'ont pas encore démarré.

L'équation de la chaleur appliquée à une éprouvette chauffée par micro-ondes ou par toute source de chaleur interne s'exprime par la relation suivante:

$$\rho C_p \frac{dT}{dt} = \text{div} (\text{flux de transfert thermique par conduction}) + (\text{source de chaleur}) \quad (\text{III.1})$$

A l'instant initial de l'échauffement de l'éprouvette par des sources de chaleur, la variation par rapport au temps de la température correspondant à cet échauffement est indépendante des conditions de transfert thermique entre la pièce et son environnement et elle est directement dépendante de la l'intensité des sources de chaleur. Si on observe que cette variation par rapport au temps est constante pendant un intervalle de temps donné, on peut négliger les pertes par transfert thermique entre la pièce et son environnement et on peut considérer que, au début du chauffage, l'équation de la chaleur se réduit :

$$\rho C_p \frac{dT}{dt} = + (\text{source de chaleur}) \quad (\text{III.2})$$

Dans cette équation (III.2), l'intensité de la source de chaleur est une fonction qui dépend de la variable d'espace (z) et de l'atténuation α du champ électromagnétique à l'instant initial de l'échauffement. Ainsi, on obtient :

$$\rho C_p \frac{dT}{dt} = q_0 \cdot e^{-2\alpha z} \quad (\text{III.3})$$

On exprime alors le logarithme népérien de l'évolution de la température par rapport au temps en fonction de la cote longitudinale z :

$$\text{Ln} \frac{dT}{dt} = (-2\alpha) z + \text{Ln} (q_0/\rho C_p) \quad (\text{III.4})$$

avec : α l'atténuation (m^{-1}), ρ la masse volumique du composite (1900 kg.m^{-3}) et C_p la chaleur spécifique du composite ($1500 \text{ J.kg}^{-1}.\text{K}^{-1}$).

En traçant la courbe donnant $\text{Ln} \frac{dT}{dt}$ en fonction de z, on obtient alors une droite de

la forme :

$$Y = - A z - B \quad (\text{III.5})$$

Par comparaison des deux équations (III.4) et (III.5) on obtient les égalités suivantes: $2\alpha = A$ et $\ln(q_0/\rho C_p) = B$, tel que cela est représenté dans les figures (III.25, III.26, III.27).

Les calculs de l'atténuation de la source de chaleur d'origine électromagnétique entre les points de mesure z_1 et z_4 , dans le cas d'un moule uniforme (figure III.13) donnent une atténuation égale à $0,31\text{m}^{-1}$.

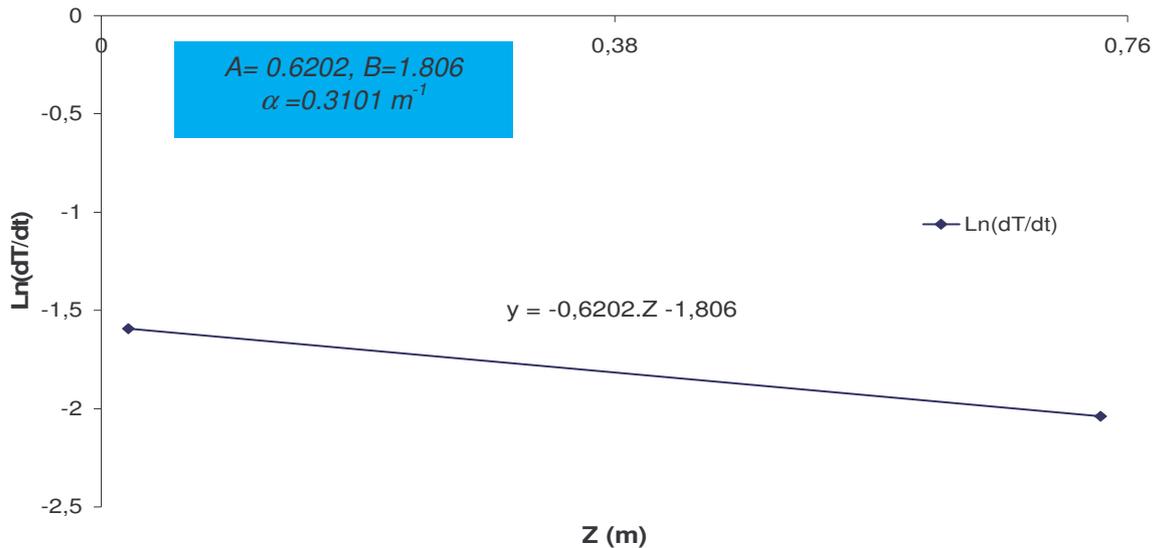


Figure III.25: L'atténuation entre le point $z_1=0,02\text{ m}$ et $z_4=0,74\text{m}$ dans le cas d'un moule d'épaisseur uniforme (résultat de la figure III.13)

Les calculs de l'atténuation de la source de chaleur d'origine électromagnétique entre les points de mesure z_1 et z_4 , dans le cas d'un moule non uniforme (figure III.21) donne une atténuation apparente négative égale à $-0,37\text{ m}^{-1}$, ce qui justifie le terme d'inversion de l'atténuation.

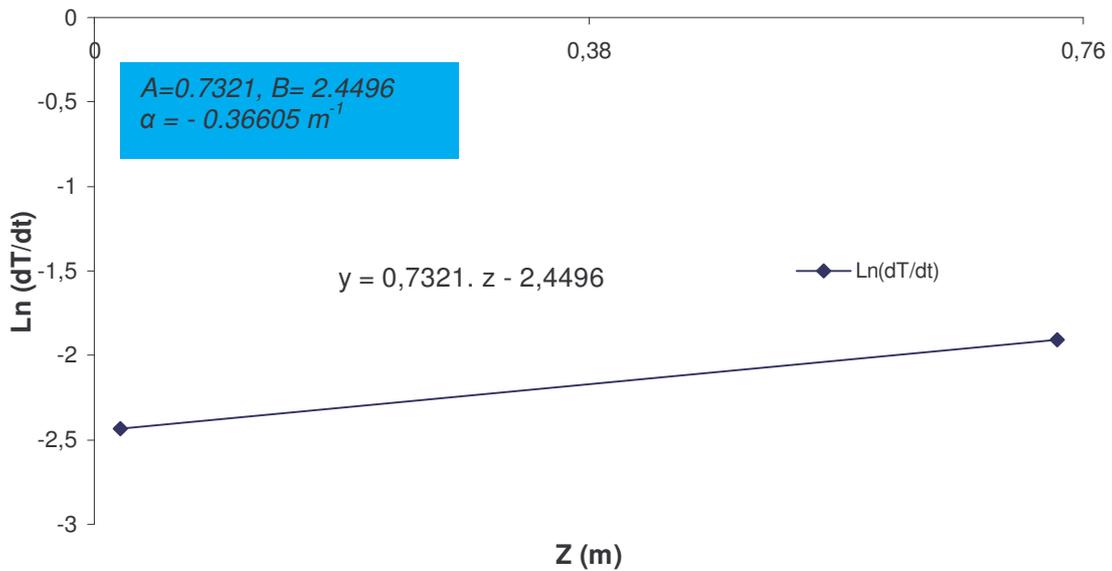


Figure III.26 : L'atténuation entre le point $z_1= 0,02 \text{ m}$ et $z_4=0,74\text{m}$ dans le cas d'un moule avec compensation de l'atténuation (résultat de la figure III.21)

Les calculs de l'atténuation de la source de chaleur d'origine électromagnétique entre les points de mesure z_1 et z_4 , dans le cas d'un moule non uniforme (figure III.23) donne une atténuation apparente négative égale à $-0,38 \text{ m}^{-1}$, ce qui justifie toujours le terme d'inversion de l'atténuation.

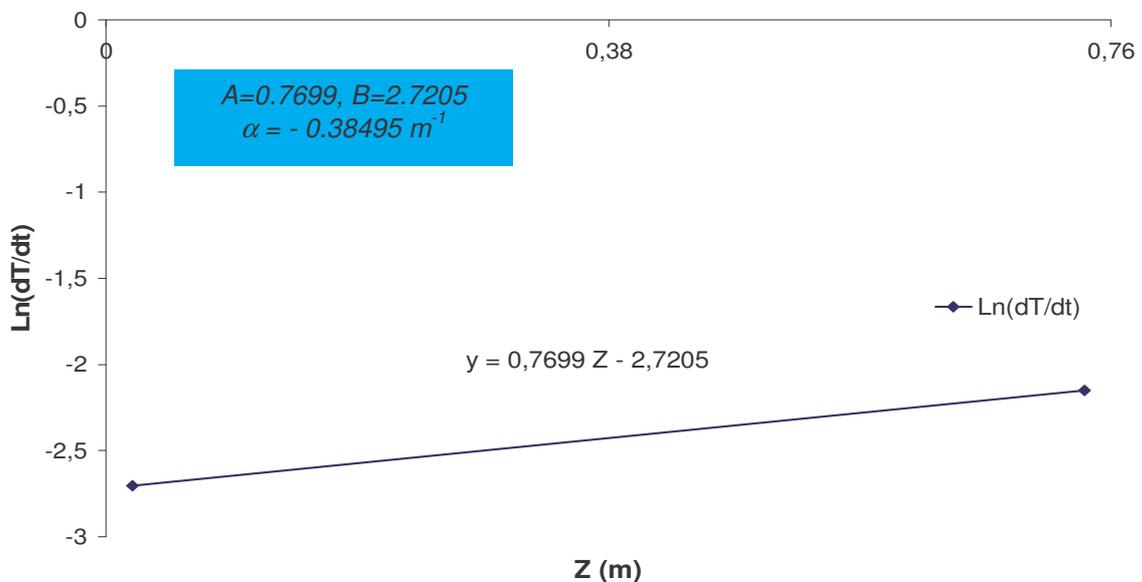


Figure III.27 : L'atténuation entre le point $z_1= 0,02 \text{ m}$ et $z_4=0,74\text{m}$ dans le cas d'un moule avec compensation de l'atténuation (résultat de la figure III.23)

III.7. Mesures des puissances

Rappelons que lorsqu'un matériau reçoit une onde, une partie de cette dernière va être transmise et une autre réfléchi. Dans le cas d'un matériau diélectrique avec des pertes diélectriques, l'onde s'atténue classiquement selon une décroissance exponentielle due à l'absorption des ondes par le matériau.

Si on désigne par [III.17]

P_{inci} : puissance incidente.

P_{tran} : puissance transmise.

$P_{réflé}$: puissance réfléchi.

P_{abs} : puissance absorbée ou dissipée.

le bilan de puissance s'écrit alors :

$$P_{inci} = P_{tran} + P_{réflé} + P_{abs} \quad (III.7)$$

A l'aide de deux wattmètres connectés à chacun des coupleurs directifs disposés aux deux extrémités de l'applicateur, nous mesurons la puissance réfléchi $P_{réflé}$ et la puissance transmise P_{tra} pendant la totalité de la durée de l'élaboration (figures III.28 et III.29). On estime la puissance absorbée P_{abs} par le composite et son environnement diélectrique au sein de l'applicateur par la relation (III.7). Ces mesures nous renseignent sur l'évolution du comportement du matériau composite lors de sa transformation par le chauffage micro-ondes.

III.7.1. Analyse des résultats des puissances

Les courbes des puissances réfléchies (figure III.28) montrent que la structure du moule diélectrique des expériences avec compensation de l'atténuation conduit à une puissance réfléchi deux fois plus faible que la structure de l'expérience sans compensation. Cette observation est cohérente avec le fait que la pente des biseaux est la même et que l'absorption de la puissance électromagnétique est mieux répartie dans l'ensemble de l'éprouvette.

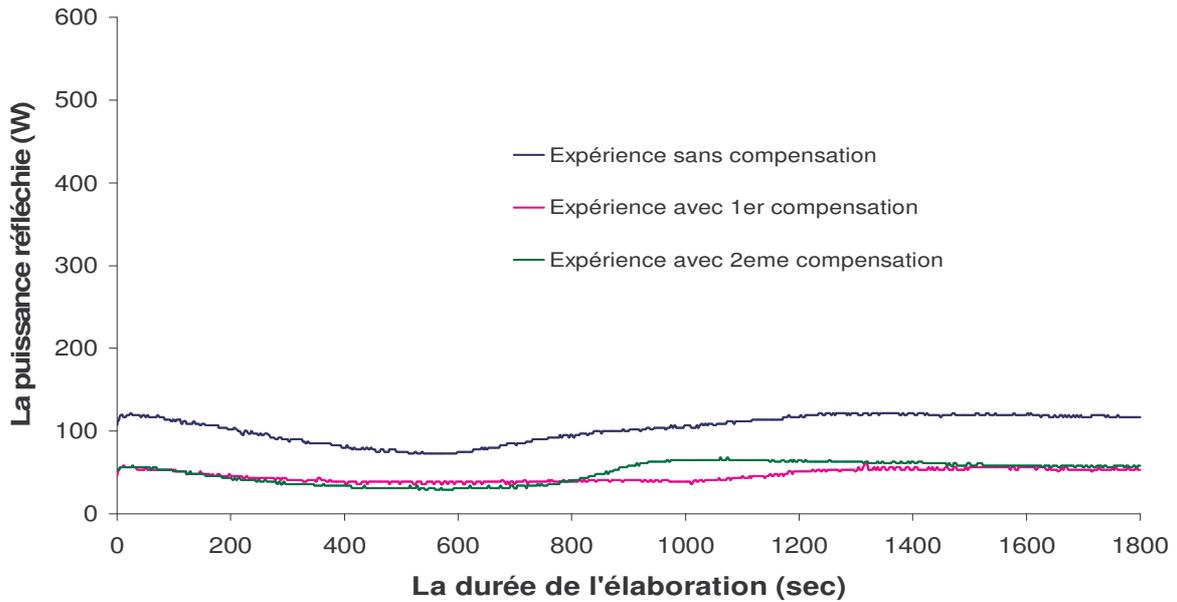


Figure III.28 : Puissances réfléchies

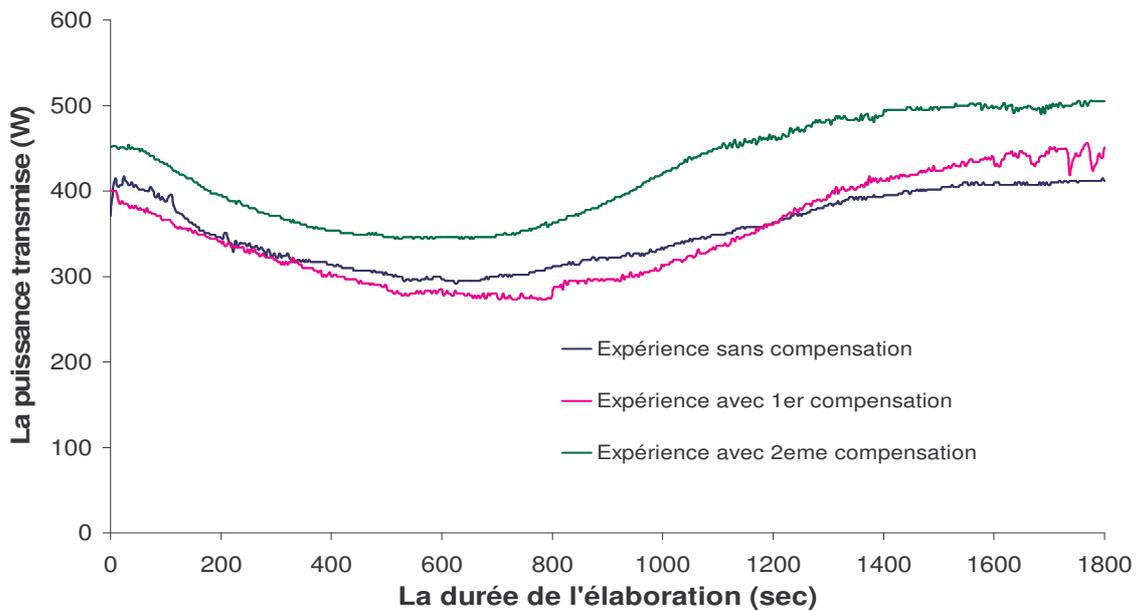


Figure III.29 : Puissances transmises

III.7.2. Puissances absorbées

La figure III.30 représente l'évolution des puissances absorbées mesurées pendant le chauffage des trois expériences précédemment décrites. On remarque d'après cette figure, que toutes les courbes des puissances absorbées, représentent trois évolutions pendant la durée de l'élaboration et cela quelle que soit l'expérience.

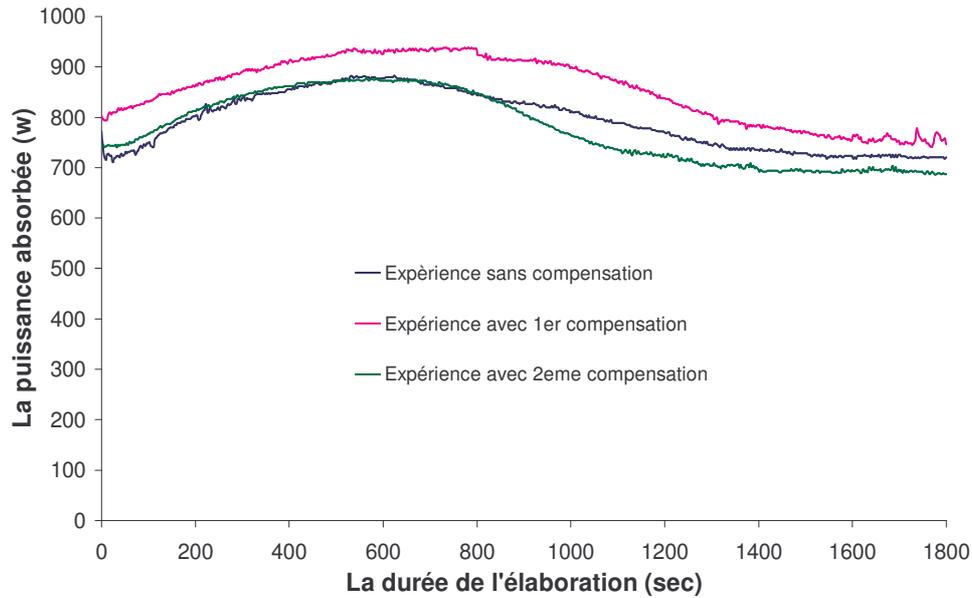


Figure III.30: Puissances absorbées

III.7.2.1. Puissances absorbées croissantes

Le début de chauffage, jusqu'à environ 600 secondes, montre une puissance absorbée croissante. D'après la caractérisation diélectrique du composite verre-époxy (figure IV.7), dans la première phase à température croissante, le facteur d'absorption est une fonction croissante de la température. Donc, plus la température augmente plus le matériau absorbe de l'énergie, d'où l'augmentation de la puissance absorbée. Cette augmentation de la puissance absorbée est reliée à une relaxation de la résine DGEBA [III.18] dont le maximum de la caractéristique ε'' est à environ 80 °C.

III.7.2.2. Puissances absorbées décroissantes

La température de début de la réaction chimique de la matrice se situe vers la température de 120 °C. Or, on remarque que la puissance absorbée commence à décroître aux environs de cette température. Nous sommes donc en présence du début de réaction de la réticulation, qui a tendance à consommer les fonctions réactives, entraînant une diminution de leur nombre, ce qui se manifeste par une chute du facteur d'absorption $\varepsilon''(T)$, d'où la diminution de la puissance absorbée.

III.7.2.3. Puissances absorbées constantes

On peut proposer que trois phénomènes contribuent à ce que la puissance absorbée reste constante.

- *Le facteur d'absorption $\varepsilon''(T)$ du composite est très faiblement croissant en fonction de la température après la fin de la réaction chimique.*
- *La réaction de réticulation de la matrice étant terminée, les fonctions réactives ne donnent plus aucune contribution aux deux caractéristiques ε' et ε'' .*
- *La température de l'éprouvette dans cette phase tend vers une asymptote.*

Conclusion

Ce chapitre traite en sept parties des aspects expérimentaux et analytiques du procédé d'élaboration de matériaux composites, fondé sur l'hystérésis diélectrique. Avant de nous intéresser à la mise en œuvre expérimentale du procédé d'élaboration, nous avons décrit le procédé dans sa généralité. Nous avons vu que le procédé micro-ondes nécessite un applicateur rempli de trois diélectriques où l'un représente la pièce à élaborer. Nous avons donc fait une description de l'applicateur utilisé et nous avons présenté le remplissage et le matériau à élaborer. Dans notre cas il s'agit d'un composite à matrice thermodurcissable (DGEBA/DDA) associée à des fibres de verre unidirectionnelles.

Comme tous les procédés de transformation, le procédé micro-ondes se déroule en plusieurs étapes, c'est pour cette raison que nous avons détaillé la démarche expérimentale et les étapes à suivre pour la réticulation de la matrice du matériau composite.

Avant de passer aux mesures et à l'étude thermique expérimentale, et afin de nous assurer que la température relevée est bien la température au sein du matériau étudié, des précautions expérimentales ont été prises. Ces précautions concernent le positionnement de l'extrémité des sondes de température dans le plan médian des éprouvettes, après l'étalonnage de ces sondes.

Les études thermiques expérimentales montrent des profils de températures qui résultent :

- de la distribution des sources de chaleur d'origine électromagnétique,
- de l'exothermicité de la réaction de réticulation de la matrice thermodurcissable,
- des transferts internes de chaleur et des échanges de la chaleur entre l'éprouvette et le moule diélectrique et son environnement.

Ces études thermiques confirment l'atténuation de la source de chaleur d'origine électromagnétique due à l'absorption des ondes électromagnétiques par le composite le long de ce dernier pour le cas d'un montage avec un moule d'épaisseur uniforme. Ces études mettent aussi en évidence la compensation de l'atténuation de cette source par l'utilisation de l'effet diélectrique d'inversion de l'atténuation.

Nous avons vu dans le premier cas d'un moule d'épaisseur non uniforme, que l'on a un gradient relativement fort de température le long du composite dans le sens inverse de la propagation de l'onde. Dans le cas de la deuxième expérience avec un moule d'épaisseur variable le long de l'éprouvette, le choix convenable des dimensions du moule permet d'obtenir une faible atténuation de la source de chaleur dans le sens de la propagation et une température uniforme sauf au point situé à l'extrémité de l'éprouvette. Cette forte élévation de la température est due à la capacité calorifique du moule qui n'est pas constante le long de l'éprouvette.

De plus, la mesure de la puissance absorbée par le matériau au cours du temps peut renseigner sur la transformation subie par ce dernier. Ces renseignements sont utiles surtout pour la modélisation thermique complexe lors du couplage entre l'électromagnétisme, la thermique et la réaction chimique de la réticulation.

Références bibliographiques III

- [III.1] C.Y. YUE and H. C. LOOI, influence of thermal and microwave processing on the mechanical and interfacial properties of a glass/epoxy composite, *Composites* 26(1995) 767-733
- [III.2] M. ABBAS, Cl. MARZAT, P. A. BERNARD et B. HAMDOUN, Modélisation électromagnétique et thermique d'un applicateur micro-ondes à 2,45 GHz afin d'optimiser la répartition au niveau du joint de colle, *Matériaux et Techniques*, 10, p. 27-32, 2003.
- [III.3] G. ROUSSY, J. F. ROCHAS et C. OBERLIN, Chauffage diélectrique -Principes et spécificités, *Technique de l'Ingénieur, traité Génie électrique*, D 5 940
- [III.4] M. DELMOTTE, C. MORE, L. OUTIFA, et H. JULLIEN, brevet N° 9014889, 28.11.90.
- [III.5] N. CONSULTANTS, Etude stratégique, *L'industrie française des matériaux composites 2002*
- [III.6] R.R. Bowman, A probe for measuring temperature in radio-frequency- Heated material. *IEEE Trans. MTT- Jan.*, 43-45, 1976
- [III.7] L., LARSEN, R. A. MOORE, J.H. JACOBI, F.A. HALGAS and P. V. BROWN, A microwave compatible MIC temperature electrode for use in biological dielectrics. *IEEE Trans.*, MTT- 27 (7), 673-679, 1979.
- [III.8] T. C. ROZZELL, C. C. JOHNSON, C. H. DURNEY, J. L. LORDS, and R. G., OLSEN, Non-perturbing temperature sensor for measurements in electromagnetic fields. *J. of Microwave Power* 9(3), 241-249, 1994
- [III.9] K. X. WICHERSHEIM, and LEFÈVRE, H.C. (Photonetics Inc), Phospors and fiber optics remove doubt from difficult temperature measurements, *Research ad development*, Nov p.6, 1994
- [III.10] F. URBACH, Measurement of temperature distribution on the surface of solid bodies. USA .Patent N°2.551.650, 1951
- [III.11] Georges ROUSSY, Jean-François ROCHAS et Claude OBERLIN, Chauffage diélectrique, *Technique de l'ingénieur, traité Génie électrique D5941*
- [III.12] A. GOURDENNE, *polymer Preprints*. 1981, 22(2), 125.
- [III.13] M. DELMOTTE, L. OUTIFA,, and C. MORÉ, 09.09.1993, brevet France, N°93/10710.
- [III.14] M. DELMOTTE,, L. OUTIFA,, C. MORE, and D. DELAUNAY, 08.06.1994, brevet France, N°407008.

[III.15] L., DOUADJI, M. DELMOTTE, *Materials curing by using the dielectric effect of attenuation inversion of electromagnetic waves to obtain a uniform temperature*, AJAM, 3, pp.293-296, 2006.

[III.16] L., DOUADJI, M. DELMOTTE, *Modélisation de la température obtenue par l'effet diélectrique d'inversion de l'atténuation des ondes électromagnétiques pour le traitement thermique uniforme des matériaux composites*, pp.799-804, SFT2006, Ile de Ré- France, 16-19 mai 2006.

[III.17] J. P. PEREZ, R. CARLES and R. FLECKINGER, *Electromagnétisme-Fondements et applications*, 3eme édition, MASSON.

[III.18] M. DELMOTTE, H. JULLIEN and M. OLLIVON, *Variation of the dielectric properties of epoxy resins during microwave curing*, Eur. Polym. J., Vol. 27, 4/5, pp.371-376, 1991.

Chapitre IV :
Interprétations thermiques des résultats

Introduction

Les résultats des mesures thermiques réalisées sur des éprouvettes en composite verre-époxy montrent que le point qui se trouve proche de l'interface de sortie possède la température la plus élevée. Une modélisation thermique du procédé d'élaboration par hystérésis diélectrique du composite à matrice thermodurcissable et renfort de verre s'impose donc. Elle s'impose pour l'interprétation de ce phénomène particulier et pour la maîtrise de l'aspect thermique du procédé et doit permettre d'optimiser le phénomène et d'assurer une uniformité suffisante du traitement.

Cette modélisation thermique va nous permettre de simuler l'évolution les distributions spatiales de la température dans une pièce lors de son élaboration par le procédé micro-ondes. Elle prendra en compte les phénomènes de la réticulation et l'avancement de la réaction chimique en fonction de la température et du temps. Elle prendra également en compte les évolutions des caractéristiques du matériau en fonction de la température. Une caractérisation diélectrique des matériaux diélectriques utilisés dans ce procédé est donc nécessaire.

Dans ce chapitre, nous donnerons des descriptions détaillées des deux sources électromagnétique et chimique mises en jeu lors de l'élaboration.

Dans un premier temps, nous présenterons la source de chaleur d'origine électromagnétique qui est la première source mise en jeu dans le procédé micro-ondes. Nous allons voir le développement qui nous permet d'obtenir l'équation d'onde qui a servi de base pour la modélisation. Dans le but d'élaborer ce matériau par un procédé utilisant des micro-ondes, nous avons donc cherché à déterminer les propriétés diélectriques des matériaux utilisés: la permittivité ϵ' et le coefficient d'absorption ϵ'' en fonction de la température. Ces deux propriétés conditionnent le comportement du matériau vis-à-vis des micro-ondes, notamment l'intensité du champ électrique au sein de l'objet élaboré (ϵ' et ϵ'') et la conversion en chaleur de l'énergie transportée par les

ondes (ϵ''). Nous présenterons alors les résultats des différentes techniques de caractérisation diélectrique.

En un deuxième temps, nous donnerons une description détaillée de la deuxième source de chaleur, d'origine chimique mise en jeu lors du traitement thermique d'un matériau à matrice thermodurcissable par voie micro-ondes. Nous présenterons également les différents modèles de la cinétique de la réticulation de la matrice. Nous présenterons par la suite les mesures qui ont été effectuées en utilisant un calorimètre différentiel à balayage pour déterminer l'intensité de la source de chaleur d'origine chimique et la cinétique de la réticulation de la matrice DGEBA.

Dans la partie concernant la modélisation thermique du procédé micro-ondes, nous présenterons les évolutions de toutes les caractéristiques thermiques et physiques du composite verre-époxy en fonction de l'avancement de la réaction de réticulation et de la température. Avant la conclusion, nous présenterons et nous interpréterons les résultats de la modélisation sans et avec la source chimique.

IV.1. Les sources de chaleur mises en jeu lors de l'élaboration

L'objectif est de modéliser numériquement les phénomènes thermiques qui représentent la transformation du matériau composite lors de son élaboration sous micro-ondes. L'échauffement d'un corps soumis à un champ micro-ondes est régi par les lois des sources et des transferts de chaleur. Dans le cas d'un objet en matériau composite à matrice thermodurcissable, deux types de sources de chaleur internes sont à prendre en compte:

- Une source de chaleur d'origine électromagnétique due au chauffage micro-ondes. Cette source existe durant toute la période du traitement du composite et elle dure 1800 secondes dans toutes nos expériences.
- Une source de chaleur d'origine chimique due à la réaction de réticulation de la matrice DGEBA, qui réalise un changement d'état les polymères (de l'état liquide vers

l'état solide). Elle est mise en jeu à partir d'une certaine température (à partir de 120 °C, d'après les observations expérimentales), elle s'annule à une certaine température (vers 200 °C environ d'après nos observations) lorsque la matrice finira de se réticuler.

IV.1.1. Description des sources de chaleur électromagnétiques

La source électromagnétique est caractérisée par la distribution du champ électrique ainsi que par la distribution de la variation du facteur d'absorption du matériau à élaborer. Cette source est définie comme une fonction du carré du champ électrique E et du facteur d'absorption ε'' du matériau composite donnée par la relation suivante [IV.1] :

$$Q_{micro} = \frac{\omega}{2} \cdot \varepsilon_0 \cdot \varepsilon'' \cdot |E|^2 = \pi \cdot f \cdot \varepsilon_0 \cdot \varepsilon'' \cdot |E|^2 \quad (IV.1)$$

Rappelons que ω est la vitesse angulaire égale à $2 \cdot \pi \cdot f$, telle que f est la fréquence micro-ondes égale à 915 MHz.

E est le champ électrique, obtenu en résolvant l'équation de propagation d'onde (voir plus loin le paragraphe IV.1.1.1).

ε_0 est la permittivité du vide et ε'' est la caractéristique diélectrique d'absorption du matériau à élaborer, qui varie avec la température ; ε'' est connue à partir de caractérisations diélectriques en fonction de la température. En conséquence, plusieurs méthodes ont été menées pour déterminer les caractéristiques du matériau à élaborer, le composite verre-époxy.

IV.1.1.1. Le champ électrique

La propagation d'une onde électromagnétique est obtenue par les équations de Maxwell. Dans ce qui suit, on donnera les hypothèses de travail et le développement qui nous permet d'avoir l'équation d'onde qui a servi de base pour la modélisation.

Les équations de Maxwell sont [IV.2] :

$$\nabla \times \vec{E} = -\mu \frac{\partial \vec{H}}{\partial t} \quad (IV.2)$$

$$\nabla \times \vec{H} = \sigma \cdot \vec{E} + \varepsilon \frac{\partial \vec{E}}{\partial t} \quad (IV.3)$$

$$\nabla \cdot \vec{D} = Q_c \quad (IV.4)$$

$$\nabla \cdot \vec{B} = 0 \quad (IV.5)$$

L'équation de conservation des charges et des courants électriques [IV.2] est:

$$\nabla \cdot \vec{J}_c = -\frac{\partial Q_c}{\partial t} \quad (IV.6)$$

Les relations constitutives du milieu sont:

$$\vec{B} = \mu \vec{H} \quad (IV.7)$$

$$\vec{D} = \varepsilon \vec{E} \quad (IV.8)$$

Pour les matériaux diélectriques à pertes diélectriques ($\sigma = 0$; $\varepsilon = \varepsilon' - j \varepsilon''$), le système d'équations se réduit à :

$$\nabla \times \vec{E} = -\mu \frac{\partial \vec{H}}{\partial t} \quad (IV.9)$$

$$\nabla \times \vec{H} = \varepsilon \frac{\partial \vec{E}}{\partial t} \quad (IV.10)$$

$$\nabla \cdot \vec{E} = 0 \quad (IV.11)$$

$$\nabla \cdot \vec{H} = 0 \quad (IV.12)$$

Puisque dans la modélisation nous ne nous intéressons qu'au champ électrique (qui servira de base pour le calcul du terme source de chaleur électromagnétique dans le matériau composite non métallique), nous allons traiter les équations de Maxwell afin d'en tirer l'équation de propagation du champ électrique.

Nous posons l'hypothèse que ε est indépendant du temps et nous dérivons l'équation (IV.9) par rapport au temps ($\frac{\partial}{\partial t}$)

$$\frac{\partial^2 \vec{E}}{\partial t^2} = \frac{1}{\varepsilon} \nabla \times \frac{\partial \vec{H}}{\partial t} \quad (IV.13)$$

Nous remplaçons $\frac{\partial \vec{H}}{\partial t}$ par sa valeur et nous obtenons l'équation suivante :

$$\frac{\partial^2 \vec{E}}{\partial t^2} = \frac{1}{\epsilon} \nabla \times \left[-\frac{1}{\mu} \nabla \times \vec{E} \right] \quad (IV.14)$$

En simplifiant l'équation IV.14 par l'utilisation de l'opérateur suivant: $\nabla \times \nabla \times = \nabla \nabla \cdot - \Delta$ et en supposant μ constant sur tout le domaine, nous obtenons:

$$\frac{\partial^2 \vec{E}}{\partial t^2} = -\frac{1}{\epsilon \mu} \nabla \times \nabla \times \vec{E} \quad (IV.15)$$

$$\frac{\partial^2 \vec{E}}{\partial t^2} = -\frac{1}{\mu \epsilon} [\nabla \nabla \cdot - \Delta] \vec{E} \quad (IV.16)$$

Nous avons d'après (IV.11) et (IV.12) $\nabla \cdot \vec{E} = 0$; nous obtenons finalement l'équation de propagation d'onde découplée :

$$\Delta \vec{E} - \epsilon \mu \frac{\partial^2 \vec{E}}{\partial t^2} = \vec{0} \quad (IV.17)$$

Si nous nous plaçons dans le cadre d'un guide d'onde de section rectangulaire, le mode de propagation est le mode fondamental TE_{01} ($H_x = E_y = E_z = 0$), \vec{z} étant la direction de propagation.

Le développement des équations (IV.10, IV.11 et IV.12) donne une indépendance en x ($\frac{\partial}{\partial x} = 0$); soit : $E_x = E_x(\bar{x}, \bar{z})$, $H_y = H_y(\bar{x}, \bar{z})$, $H_z = H_z(\bar{x}, \bar{z})$ ce qui donne :

$$\frac{\partial^2 E_x}{\partial y^2} + \frac{\partial^2 E_x}{\partial z^2} = \mu \epsilon \frac{\partial^2 E_x}{\partial t^2} \quad (IV.18)$$

Nous pouvons prendre en compte un champ électrique de la forme :

$$E_x(\bar{y}, \bar{z}, t) = E_x(\bar{y}, \bar{z}) e^{j\omega t} \quad (IV.19)$$

pour aboutir à l'équation de propagation utilisée par FEMLAB (chapitre II) :

$$\frac{\partial^2 E_x}{\partial y^2} + \frac{\partial^2 E_x}{\partial z^2} = -\epsilon \mu \omega^2 E_x \quad (IV.20)$$

IV.1.1.2. Caractérisations diélectriques du matériau à élaborer

Les propriétés diélectriques déterminent la réponse du matériau sous un champ électrique. L'incapacité des molécules à réaliser leur alignement instantané au champ électrique conduit à une dissipation d'énergie électrique. Les propriétés diélectriques sont décrites par un nombre complexe [IV.3] dont la partie réelle représente la constante diélectrique ϵ' , et la partie imaginaire représente les pertes diélectriques ϵ'' . La constante diélectrique représente la polarisation des molécules et leur capacité à stocker l'énergie électrique. Les pertes diélectriques représentent l'énergie électromagnétique absorbée et dissipée [IV.4].

Les deux caractéristiques diélectriques ϵ' et ϵ'' étant représentatives des interactions électriques intermoléculaires, elles sont très dépendantes de la température et de l'état du matériau. Il est donc important de connaître les paramètres diélectriques des matériaux à étudier et leurs variations en fonction de la température car la matrice est très réactive et se transforme en fonction de la température. En conséquence, leur mesure systématique dans des conditions cinétiques les plus proches du procédé doit être menée pour nos matériaux.

L'évolution des caractéristiques diélectriques liée à l'avancement de la réaction de réticulation des résines époxy-amines a largement été étudiée [IV.5, IV.6, IV.7]. Plus particulièrement, ces études concernent les propriétés diélectriques du système DGEBA–DDS [IV.8, IV.9, IV.10, IV.11].

Il existe plusieurs méthodes de mesure des caractéristiques diélectriques [IV.12], mais nous ne présenterons dans ce qui suit que trois méthodes de mesure qu'il est possible de mener dans notre Laboratoire. La première est une mesure par λ_g dans un guide fermé par un court-circuit, la deuxième est une mesure par une méthode inverse, et la dernière mesure est une méthode appelée méthode des petites perturbations d'une cavité résonnante. Cette dernière est une mesure dans les conditions cinétiques les plus proches du procédé.

IV.1.1.2.1. Mesure par λ_g dans un guide fermé par un court-circuit

Nous savons d'après le chapitre modélisation électromagnétique que le fait de remplir un guide d'onde avec des matériaux diélectriques, change la longueur d'onde de propagation λ_g dans ce guide chargé, fermé par un court-circuit. Le principe de cette méthode consiste à mesurer la longueur d'onde λ_g en régime stationnaire, puis à déterminer la valeur absolue de la permittivité diélectrique ε' du matériau par la formule suivante :

$$\varepsilon' = \lambda_0^2 \cdot \left(\frac{1}{\lambda_g^2} + \frac{1}{\lambda_c^2} \right) \quad (IV.21)$$

Rappelons que λ_c est la longueur d'onde de coupure égale à deux fois la grande dimension de l'applicateur (dans le mode de propagation fondamental). λ_0 est la longueur d'onde en espace libre, qui est égale au rapport de la célérité de la lumière et de la fréquence f de l'onde. Nous avons donc :

$$\lambda_c = 2 \cdot a = 0.50 \text{ m,}$$

$$\lambda_0 = c/f = 0.327 \text{ m}$$

La mesure expérimentale de λ_g s'effectue en plaçant un papier thermosensible de même longueur que le matériau à caractériser, dans le plan médian du guide où le champ électrique est maximum, afin de visualiser les nœuds et ventres d'énergie. Sachant que les ventres d'énergie sont séparés d'une distance constante et égale à $\lambda_g/2$, on en déduit expérimentalement la valeur de λ_g .

La détermination de ε' par cette méthode dépend fortement de la mesure expérimentale de λ_g , donc de la mesure de la distance entre les marquages sur le papier thermosensible, qui n'est pas toujours précise. De plus, le remplissage exact du guide de mesure n'est pas toujours possible (présence de vides) et cette méthode de caractérisation ne tient pas compte de la variation de la permittivité avec la température. Mais elle va nous permettre de quantifier et d'avoir une valeur approchée de la permittivité.

Les résultats de cette méthode sont présentés dans le paragraphe IV.1.1.2.4.

IV.1.1.2.2. Mesure par la méthode inverse

Cette méthode consiste à mesurer la puissance transmise, dans un guide rempli par un ou plusieurs matériaux. Connaissant les caractéristiques des deux autres matériaux, nous cherchons la permittivité diélectrique de la troisième. Par une modélisation électromagnétique, nous fixons la puissance transmise à celle mesurée expérimentalement. Par un calcul inverse nous remontons à la valeur de la permittivité du matériau qui se laisse traverser par cette puissance transmise mesurée.

Les démarches expérimentales se sont déroulées comme suit : Dans la première expérience, nous avons rempli l'applicateur par le polyéthylène en nid d'abeilles et silicone-verre comme le montre la figure IV.1. Nous voulons par cette expérience remonter à la valeur de l'absorption ϵ'' du deuxième matériau. La puissance incidente utilisée est de 1250 W.

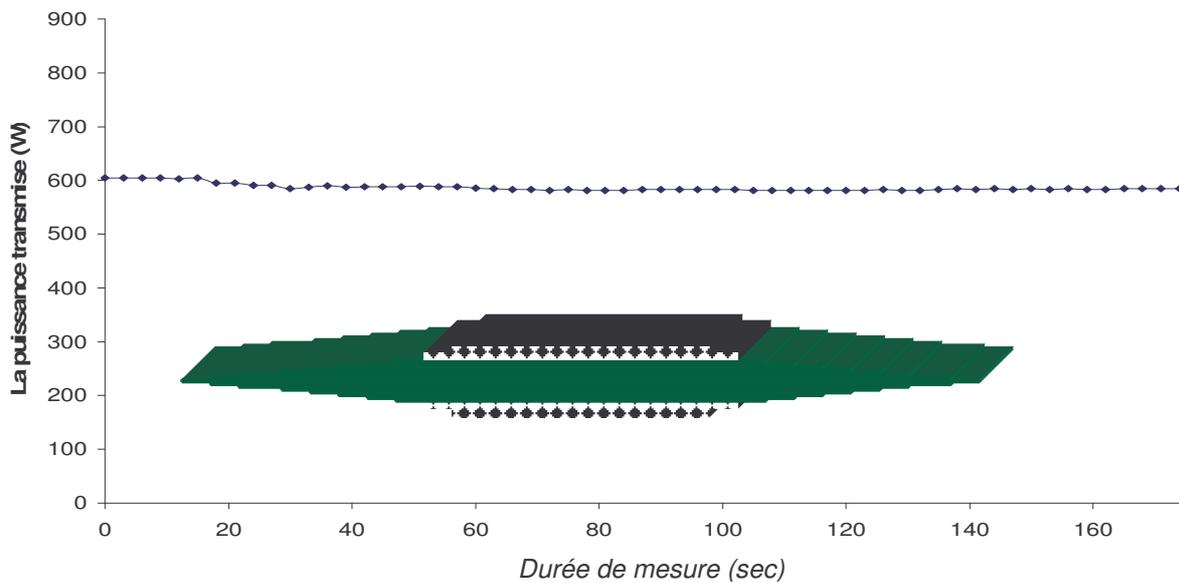


Figure IV.1 : La puissance transmise lors de la première expérience

Dans la deuxième expérience, nous avons ajouté une éprouvette déjà réticulée à l'ensemble "nid d'abeilles et silicone-verre" comme le montre la figure IV.2. Nous voulons par les mesures obtenues dans cette expérience trouver la valeur de ϵ'' de

l'éprouvette verre-époxy. Dans cette deuxième expérience la puissance incidente est 6kW. Les résultats de cette méthode sont présentés dans le paragraphe IV.1.1.2.5.

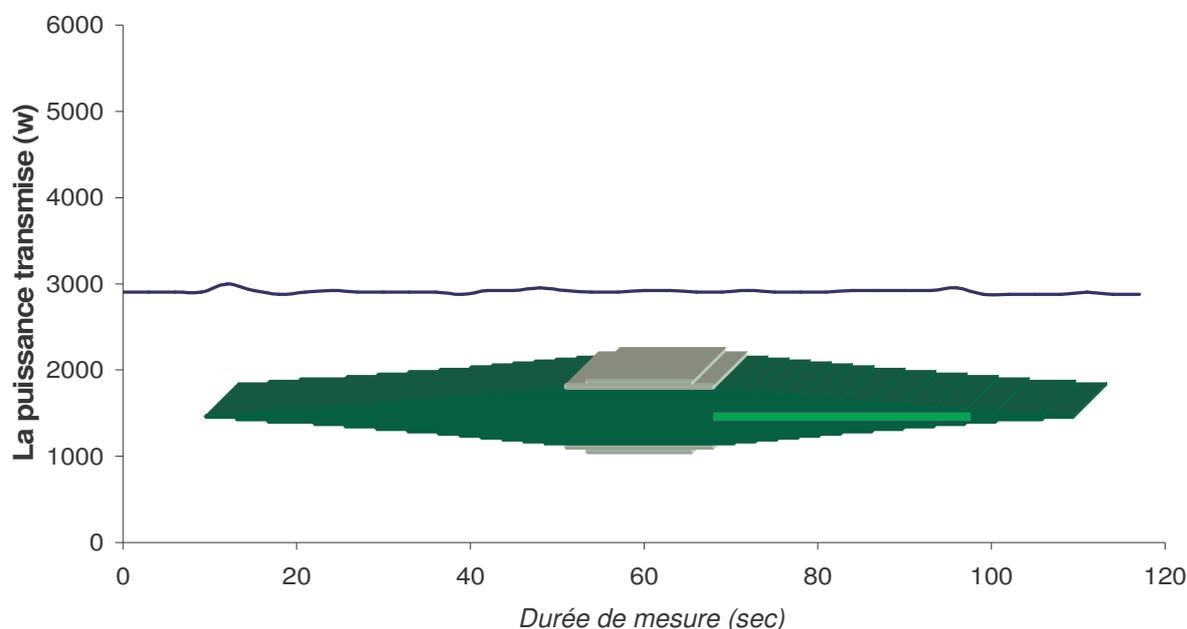


Figure IV.2 : La puissance transmise lors de la deuxième expérience

IV.1.1.2.3. Méthode des petites perturbations d'une cavité résonnante

Dans la perspective d'élaborer ce matériau par un procédé utilisant les micro-ondes, nous avons cherché à déterminer les propriétés diélectriques des matériaux: la permittivité ϵ' et le coefficient d'absorption ϵ'' .

La méthode utilisée pour analyser les propriétés diélectriques des matériaux de cette étude a été développée et est exploitée depuis de nombreuses années par notre Laboratoire LIM [IV.13]. Elle est basée sur les petites perturbations de la résonance que crée un échantillon diélectrique dans une cavité électromagnétique résonnante. L'échantillon est une petite quantité de quelques dizaines de milligrammes du produit. Il est placé à l'endroit de la cavité où l'intensité du champ électrique atteint son maximum. A l'une de ses extrémités, la cavité est alimentée par une antenne émettrice de faible puissance (de l'ordre de 1 W). La mesure de la puissance transmise par une antenne

réceptrice placée à l'extrémité opposée permet de détecter les conditions de résonance de la cavité.

La méthode dite des petites perturbations des cavités résonnantes est associée à une mesure simultanée de la température *in situ*. Il s'agit d'une méthodologie convenant particulièrement bien au suivi cinétique des paramètres diélectriques, mais aussi parce qu'elle reste l'une des méthodes les plus simples et les plus précises [IV.14]. Le banc d'essai permet non seulement la mesure cinétique des paramètres diélectriques et de la température, mais aussi l'application, le cas échéant, d'une puissance micro-ondes donnée, et enfin le maintien de la température de l'échantillon à une valeur fixe.

L'objectif de l'étude est de caractériser les matériaux par une mesure fine des caractéristiques diélectriques réalisée sur de faibles quantités de chaque matériau. La démarche consiste à transposer à un échantillon et à une échelle réduite l'ensemble des conditions réalisées lors de la mise en oeuvre du procédé d'élaboration du matériau composite, telles que l'évolution temporelle de la température ou la transformation chimique. Les résultats de cette méthode sont présentés dans le paragraphe IV.1.1.2.6

IV.1.1.2.4. Les résultats de la mesure par λ_g dans un guide fermé par un court-circuit

Le tableau IV.1 représente les résultats de la caractérisation à la fréquence 915 MHz et 2450 MHz, obtenus par la mesure par λ_g . Le but d'une caractérisation à deux fréquences est de vérifier par la suite l'étude théorique sur la transposition des caractéristiques des matériaux de 2450 MHz à 915 MHz (voir paragraphe IV 1.1.2.6.2)

Le matériau	ϵ' à 915 MHz	ϵ' à 2450 MHz
Silicone-verre	3,94	4,14
Verre-époxy	3,38	4,33
Polyéthylène en nid d'abeille	1,11	1,13

Tableau IV.1 : Les valeurs obtenues par la mesure de λ_g de la permittivité diélectrique à deux fréquences

Nous avons dit précédemment que la détermination de la permittivité ϵ' dépend fortement de la mesure expérimentale de λ_g qui nécessite la présence d'un matériau thermosensible, qui nécessite le remplissage exact du guide et qui n'est pas très précise. Ces résultats nous permettent toutefois d'avoir connaissance d'une valeur approchée de la permittivité. Ces résultats vont être utilisés dans la modélisation thermique.

IV.1.1.2.5. Les résultats de la mesure par la méthode inverse

Le tableau IV.2 représente les résultats de la mesure de l'absorption du silicone-verre et du verre-époxy obtenues par la méthode inverse. Ces résultats dépendent fortement des valeurs de permittivité introduites dans le programme de calcul. Rappelons que les valeurs de la permittivité utilisées sont celles obtenues par la mesure de λ_g .

Les résultats obtenus ici par cette méthode sont les valeurs des absorptions à une température plus faible que la température pour laquelle nous avons mesuré les permittivités par la mesure de λ_g . Car dans cette dernière méthode, la température est voisine de 100 °C, température pour laquelle le papier thermosensible devient noir. L'inconvénient de la mesure par la méthode inverse est l'utilisation des valeurs des permittivités mesurées à des températures élevées pour déterminer des valeurs des absorptions à des températures plus basses.

Le matériau	ϵ'' (absorption)
Silicone-verre	0.039
Verre-époxy (réticulé)	0.21

Tableau IV.2 : Résultats de la mesure par la méthode inverse

On sait que les deux paramètres (absorption et permittivité) varient en fonction de la fréquence des micro-ondes et de la température. Dans le procédé d'élaboration par micro-ondes, la fréquence d'excitation reste fixe, mais le procédé induit une élévation importante de la température. La transformation chimique du matériau due à la réticulation de la matrice influence à son tour ses propriétés diélectriques. Une

caractérisation diélectrique qui soit la plus proche possible de la réalité est donc nécessaire.

IV.1.1.2.6. Résultats de la méthode des petites perturbations d'une cavité résonnante

L'essai a été réalisé à une fréquence de 2.45 GHz, sur un échantillon de 127,9 mg. Nous avons tracé les courbes des variations des constantes ϵ' et ϵ'' sur la même figure, avec un rapport entre les échelles de chaque paramètre permettant une comparaison d'un paramètre par rapport à l'autre.

IV.1.1.2.6.1. Evolution des caractéristiques diélectriques du composite verre-époxy en fonction de la température

Les courbes d'évolution des constantes diélectriques de permittivité et de facteur d'absorption du composite verre-époxy, sont obtenues par l'imposition à ce dernier d'un cycle thermique en trois phases :

- La première phase est une montée en température de la température ambiante jusqu'à la température de 200 °C durant 10min.
- La deuxième phase est un palier de température constante, égale à 200 °C durant 2 min.
- La troisième phase est une descente en température jusqu'à la température ambiante durant 10 min.

L'évolution des paramètres diélectriques du composite verre-époxy en fonction de la température, montre un maximum du coefficient d'absorption vers 100 °C dû à la relaxation du DGEBA et aux étapes précoces de la réaction de réticulation. Cette propriété se retrouve dans presque tous les systèmes époxydiques à base de DGEBA. [IV.13]. Par contre, on n'observe aucune relaxation du DDA dans cette gamme de température, car les températures enregistrées sont trop faibles pour que la fusion du

DDA se produise. A partir de 140 °C, on remarque une décroissance de ϵ' et ϵ'' sans doute liée à la transformation chimique des espèces polaires suivant la réaction de réticulation. Au-dessus de 165 °C, les caractéristiques diélectriques sont représentatives d'un réseau tridimensionnel. Par la suite nous ne nous intéresserons qu'aux évolutions de paramètres diélectriques en fonction de la température.

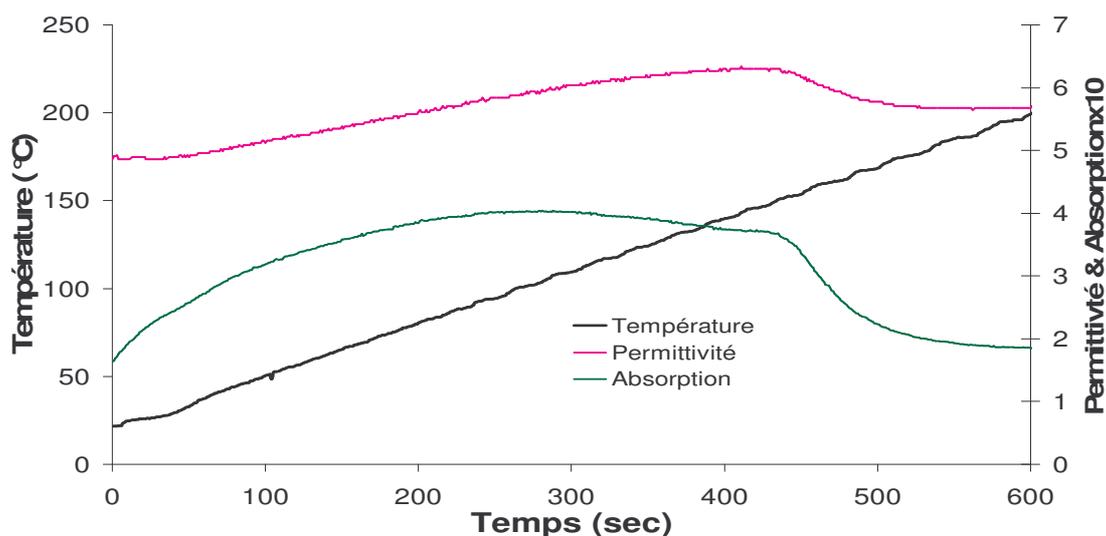


Figure IV.3. Variation des caractéristiques diélectriques de verre-époxy en fonction du temps jusqu'à une température de 200 °C à 2450 MHz (Caractéristique d'absorption multipliée par 10)

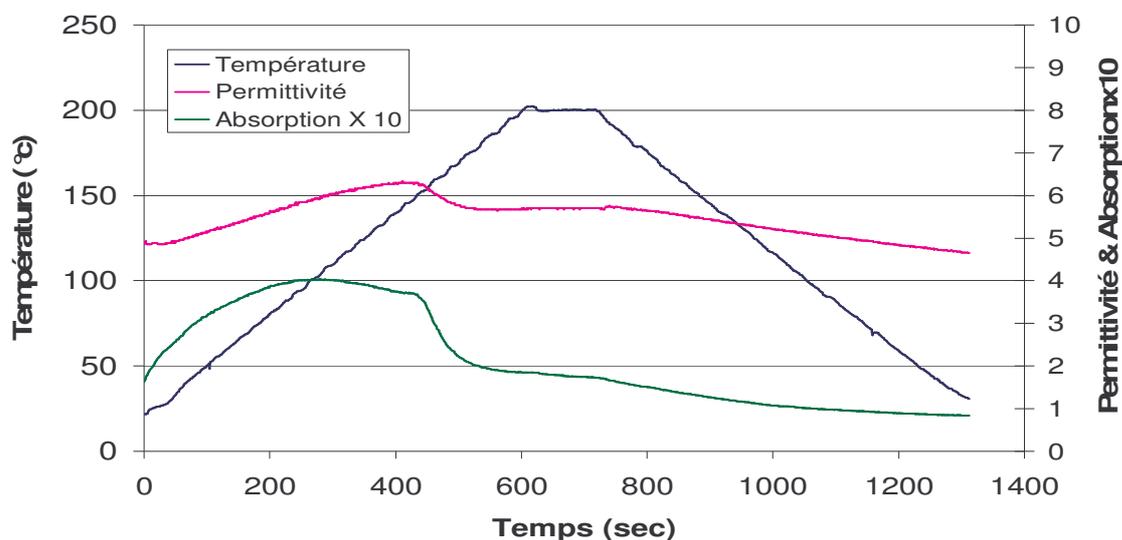


Figure IV.4 : Variation des caractéristiques diélectriques de verre-époxy en fonction du temps à 2450 MHz (Caractéristique d'absorption multipliée par 10)

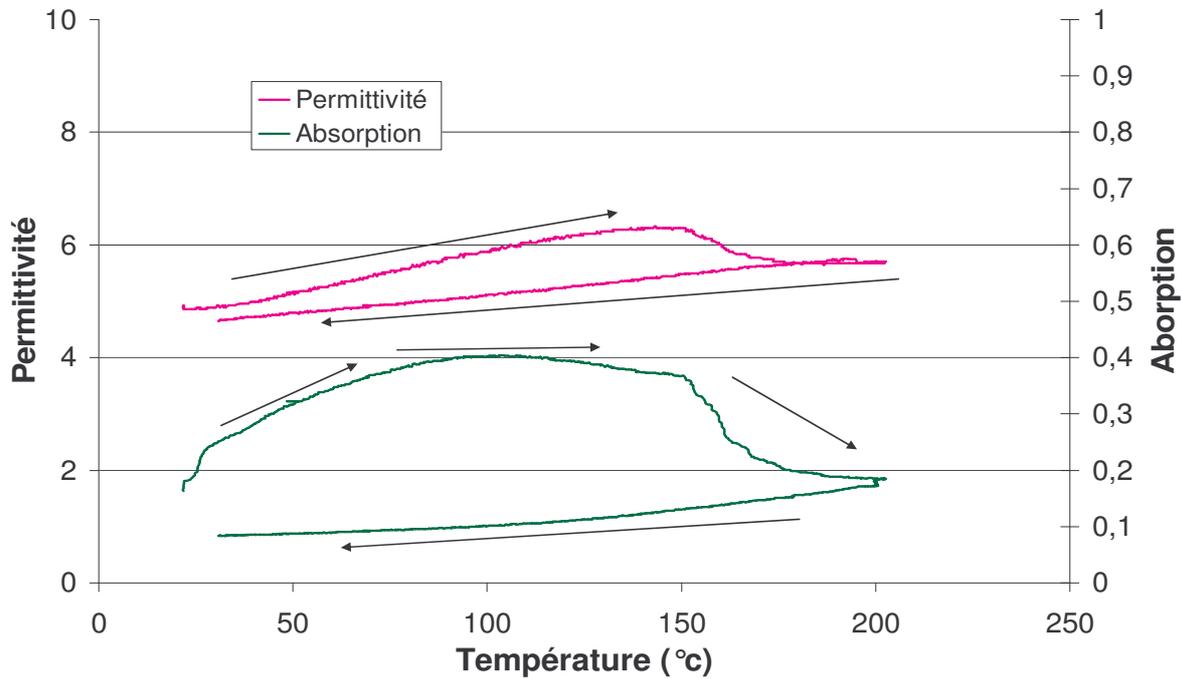


Figure IV.5 : Variation des caractéristiques diélectriques de verre-époxy en fonction de la température à 2450 MHz

IV. 1.1.2.6.2. Transposition des caractéristiques de 2450 MHz à 915 MHz

Cette étude permet la transposition à la fréquence 915 MHz des caractéristiques diélectriques des matériaux déjà caractérisés à la fréquence 2450 MHz.

Si la relaxation du matériau est décrite par le modèle de DEBYE [IV.15] suivant:

$$\varepsilon^* = \varepsilon' + j\varepsilon'' = \varepsilon_\infty + \frac{\varepsilon_s - \varepsilon_\infty}{1 + j\omega\tau} \quad (\text{IV.22})$$

ε_s et ε_∞ représentant respectivement les valeurs de la constante diélectrique du matériau soumis à un champ statique et à un champ de fréquence infinie, la séparation des termes réels et imaginaires conduit à [IV.16] :

$$\varepsilon' = \varepsilon_\infty + \frac{\varepsilon_s - \varepsilon_\infty}{1 + \omega^2\tau^2} \text{ et } \varepsilon'' = \frac{(\varepsilon_s - \varepsilon_\infty)\omega\tau}{1 + \omega^2\tau^2} \quad (\text{IV.23})$$

Le système de coordonnées (ϵ', ϵ'') est caractérisé par un demi cercle de rayon $\frac{\epsilon_s - \epsilon_\infty}{2}$, centré en $(\frac{\epsilon_s - \epsilon_\infty}{2}, 0)$. Cette présentation a été proposée par COLE et COLE [IV.17].

Nous obtenons

$$\omega\tau = \operatorname{tg}\beta = \frac{\epsilon''}{\epsilon' - \epsilon_\infty} \quad (\text{IV.24})$$

Avec $\epsilon_\infty = n^2 = (1.5)^2 = 2.25$

n étant l'indice de réfraction du composite,

β étant défini par la figure IV.6,

τ : La constante de temps de relaxation diélectrique indépendant de la fréquence.

ω : La vitesse angulaire = $2\pi f$.

D'après la figure IV.4, à la température 27°C on a $\epsilon' = 6.13$ et $\epsilon'' = 0.236$.

$$\operatorname{tg}\beta_{2450} = (\omega\tau)_{2450} = 0.236/(6.13-2.25) = 0.061$$

en conséquence $\beta_{2450} = 3.491^\circ$

donc : $\operatorname{tg}\beta_{915} = (\omega\tau)_{915} = 0.023$ et $\beta_{915} = 1.30^\circ$

Les angles β_{2450} et β_{915} sont très voisins, ce qui implique que : $\epsilon'_{2450} \approx \epsilon'_{915}$, (voir les résultats des caractérisations diélectriques par la mesure par λ_g dans le tableau IV.1) et que le rapport de ϵ''_{2450} sur ϵ''_{915} est égal au rapport de β_{2450} sur β_{915} . Ainsi on peut tracer, avec une certaine simplification, l'évolution des caractéristiques diélectriques du verre-époxy, en fonction de la température, à 915 MHz.

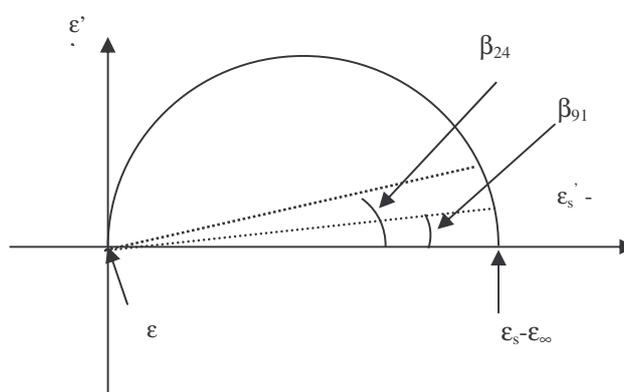
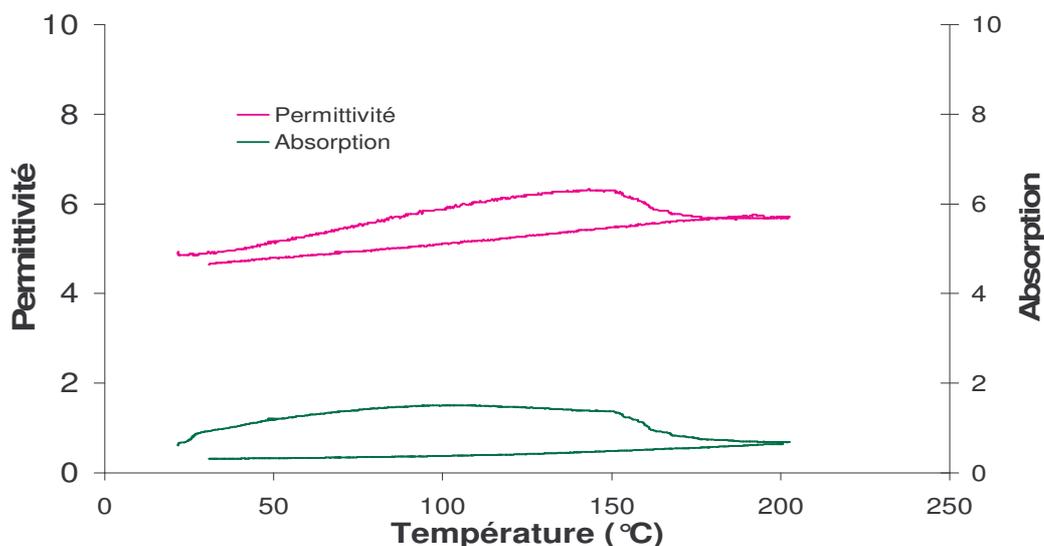


Figure IV. 6 : Diagramme dérivé de Cole et Cole



IV.7: Variation des caractéristiques diélectriques du verre-époxy en fonction de la température à 915 MHz (caractérisation d'absorption multipliée par 10)

IV.1.2. Description des sources de chaleur d'origine chimique

La source chimique est caractérisée par sa variation d'enthalpie. Elle est liée à l'exothermicité de la réaction de réticulation de la matrice thermodurcissable du matériau composite. La cinétique de réaction permet d'exprimer d'une part l'évolution du degré d'avancement de la réaction α et d'autre part le flux de chaleur dégagé par cette réaction [IV.18]. Elle est donnée par la relation suivante :

$$Q_{\text{chimi}} = \rho \cdot \Delta H_r \cdot \frac{d\alpha}{dt} \quad (\text{IV.25})$$

dont la valeur de l'enthalpie totale de la réaction du composite est $\Delta H_r = 103 \cdot 10^3 \text{ J} \cdot \text{kg}^{-1}$ et la masse volumique $\rho = 1900 \text{ kg} \cdot \text{m}^{-3}$. Plusieurs modèles ont été proposés [IV.19, IV.20, IV.21] pour exprimer le terme de la vitesse de réaction $\frac{d\alpha}{dt}$ de la résine époxy lors de sa transformation par chauffage.

IV.1.2.1. L'enthalpie de la réaction

En supposant que le mécanisme réactionnel est le même tout au long de la réticulation, la chaleur de réaction est indépendante de la conversion. Par contre, d'après la thermodynamique, on doit tenir compte de sa variation avec la température, décrite par la loi de Kirchhoff [IV.21] :

$$\Delta H_r(T) = \Delta H_r(T_0) + \int_{T_0}^T (C_{p1}(T) - C_{p0}(T)) dT \quad (IV.26)$$

$C_{p0}(T)$ et $C_{p1}(T)$ sont respectivement les capacités calorifiques de la matrice initiale et après réaction et $\Delta H_r(T_0)$ est la valeur de la chaleur de réaction à une température de référence T_0 . La plupart des auteurs négligent cette variation avec la température et considèrent une valeur constante de la chaleur de réaction [IV.19].

IV.1.2.2. Forme générale des modèles cinétiques

Il est possible de décrire la vitesse de la réaction simplement à l'aide du degré de conversion. Dans ces conditions, en supposant que la réaction chimique est thermiquement activée comme c'est le cas du procédé micro-ondes, celle-ci peut être modélisée à l'aide d'une équation différentielle [IV.19] :

$$\frac{\partial \alpha}{\partial t} = F(\alpha, T) \quad (IV.27)$$

avec pour condition initiale un degré de conversion α_0 au temps $t = 0$.

Un tel modèle cinétique est dit de type phénoménologique, car il décrit l'évolution globale de la réaction à travers le degré de conversion et de la température sans décrire les espèces chimiques présentes.

On suppose généralement que les contributions du degré de conversion et de la température sont indépendantes [IV.19] d'où la forme :

$$\frac{\partial \alpha}{\partial t} = \sum K_i(T) \cdot f_i(\alpha) \quad (IV.28)$$

où les $f_i(\alpha)$ sont appelées des fonctions cinétiques correspondant chacune à une réaction ou un ensemble de réactions et $K_i(T)$ sont des constantes d'Arrhenius données par la relation suivante:

$$K_i = k_i \exp\left(-\frac{E_i}{R.T}\right) \quad (IV.29)$$

où E_i est l'énergie d'activation et k_i le facteur de fréquence de la réaction ou du groupe de réactions.

IV.1.2.3. Exemples de modèles cinétiques

Les modèles cinétiques phénoménologiques peuvent reposer sur des considérations théoriques sur le mécanisme réactionnel, ou bien être de nature totalement empirique.

IV.1.2.3.1. Modèle de KAMAL et SOUROUR

Ce modèle a été établi pour les systèmes époxydes avec durcisseur aminé en considérant directement les réactions mises en jeu [IV.20]:

$$\frac{d\alpha}{dt} = K_1(1-\alpha)^2 + K_2(\alpha+a)(1-\alpha)^2 \quad (IV.31)$$

où a est un paramètre proportionnel à la quantité initiale de catalyseur.

Néanmoins, il est aussi utilisé sous une forme étendue (IV.31), de manière totalement empirique cette fois, pour décrire d'autres réactions de réticulation, notamment dans le cas de polyesters insaturés [IV.21]:

$$\frac{d\alpha}{dt} = K_1(1-\alpha)^n + K_2(\alpha+a)^m(1-\alpha)^n \quad (IV.32)$$

où m et n sont des exposants ajustables.

Ce modèle est le plus employé pour les mélanges époxydes, comme dans le cas de DGEBA/DDA (notre matrice). Nous réduisons la forme étendue de Kamal et Sourour à la forme générale suivante [IV.22, IV.23, IV.24, IV.25]:

$$\frac{d\alpha}{dt} = (K_2 + K_1 \cdot \alpha^m)(1 - \alpha)^n \quad (IV.33)$$

avec K_1 et K_2 les constantes de vitesse de réaction, dépendant de la température et des énergies d'activation E_1 et E_2 , selon la loi d'Arrhenius donnée par la relation IV.29, et avec $k_1 = 26.7 \times 10^3 \text{ s}^{-1}$, $E_1 = 68.3 \text{ kJ.mol}^{-1}$, $k_2 = 4.25 \text{ s}^{-1}$ et $E_2 = 38.7 \text{ kJ.mol}^{-1}$ [IV.26].

IV.1.2.3.2. Modèle de BAILLEUL

En substitution et par opposition au premier, ce modèle illustre le cas d'une description totalement empirique de la réaction [IV.22] :

$$\frac{\partial \alpha}{\partial t} = K_{ref} \cdot \exp\left(-A \cdot \left(\frac{T_{ref}}{T} - 1\right)\right) \cdot \sum_{i=0}^7 a_i \cdot \alpha^i \quad (IV.30)$$

Son avantage est de permettre la description d'un nombre important de réactions, néanmoins sa plage de fiabilité sera limitée à des températures voisines de la température de référence T_{ref} choisie.

IV.1.2.4. Source chimique par résolution analytique du modèle de KAMAL et SOUROUR

Pour simplifier le modèle général de cinétique de réaction proposé par KAMAL et SOUROUR, on prend les coefficients m et n égaux à 1 [IV.26] et puis on intègre cette équation pour trouver $\alpha(t, T)$. L'équation (IV.33) s'écrit alors comme suit :

$$\frac{d\alpha}{(K_2 + K_1 \cdot \alpha)(1 - \alpha)} = dt \Rightarrow \quad (IV.34)$$

$$\int_{\alpha(0,T)}^{\alpha(t,T)} \frac{d\alpha}{(K_2 + K_1 \cdot \alpha)(1 - \alpha)} = \int_0^t dt \Rightarrow \quad (IV.35)$$

$$\int_{\alpha(0,T)}^{\alpha(t,T)} \left[\frac{a}{(K_2 + K_1 \cdot \alpha)} + \frac{b}{(1 - \alpha)} \right] d\alpha = \int_0^t dt \quad (IV.36)$$

Avec : $a = \frac{K_1}{K_1 + K_2}$ et $b = \frac{1}{K_1 + K_2}$

Et : $K_1 = 26.7 \times 10^3 \exp\left(-\frac{68.3 \times 10^3}{R.T}\right)$

$K_2 = 4.25 \exp\left(-\frac{38.7 \times 10^3}{R.T}\right)$

D'où $\alpha(t, T)$ s'écrit alors :

$$\alpha(t, T) = \frac{K_2 \cdot (\exp((K_1 + K_2) \cdot t) - 1)}{K_1 + K_2 \cdot (\exp((K_1 + K_2) \cdot t))} \quad (IV.37)$$

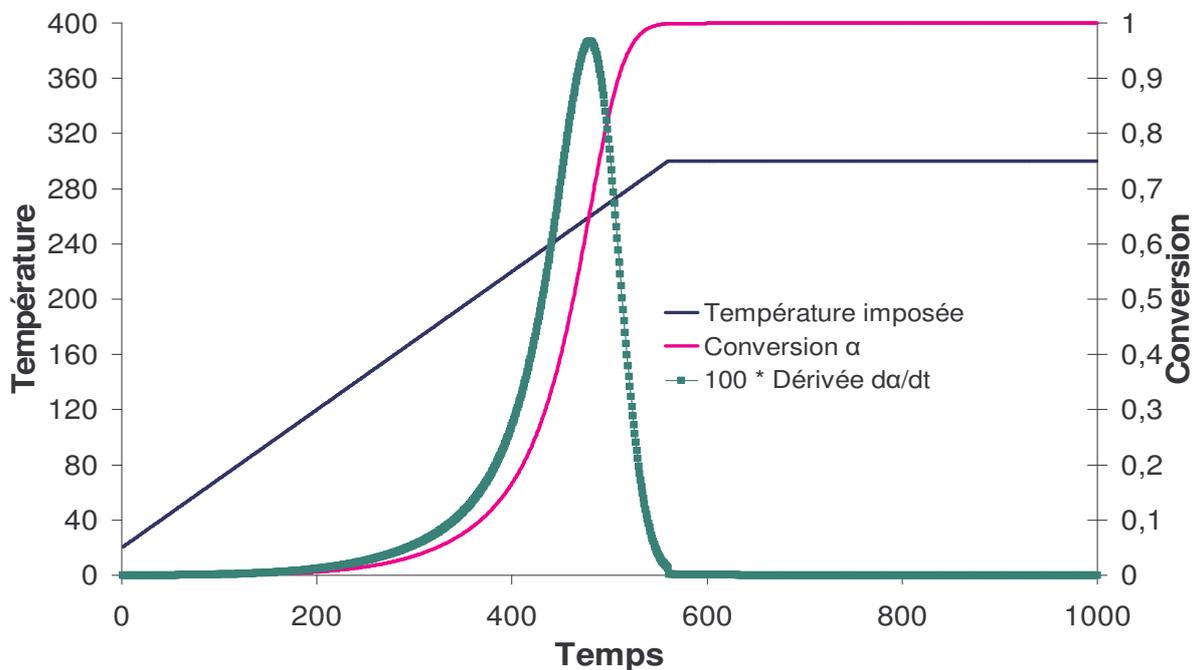


Figure IV.8 : La source de chaleur d'origine chimique obtenue par la résolution de l'équation de KAMAL et SOUROUR

La source de chaleur d'origine chimique obtenue par la résolution de l'équation de KAMAL et SOUROUR ne respecte pas les observations expérimentales, de l'initiation de la réaction à 120 °C, et d'une fin de réaction à 220 °C.

IV.1.2.4. Source de chaleur d'origine chimique par DSC

En parallèle à la résolution analytique du modèle de KAMAL et SOUROUR une étude cinétique par DSC sur le composite verre-époxy a été menée. Les essais ont été réalisés en mode dynamique en DSC pour une masse de 11,9 mg du composite verre-époxy à une vitesse de 10 °C/min de la forme suivante :

$$T(t) = 10t + 28 \quad (IV.38)$$

L'appareil utilisé est du type Mettler, constitué de deux éléments qui sont la cellule de mesure FP85 et le processeur central FP90 couplé à la cellule de mesure. Le principe de la mesure en Analyse Thermique Différentielle est le suivant : un échantillon est placé dans un creuset en aluminium, puis l'échantillon et une référence sont soumis à un même programme thermique. La différence de température entre le creuset de l'échantillon et le creuset de référence, causée par les changements physiques ou chimiques de l'échantillon, est ainsi mesurée.

Les figures IV.9, IV.10, représentent la conversion α et l'enthalpie de la réaction de 11,9mg du composite verre-époxy obtenue par une calorimètre différentiel à balayage (DSC) et par un cycle de la température $T(t)$.

L'enthalpie totale de la réaction s'obtient par intégration de l'aire sous le pic d'exothermicité. Cependant, il convient de définir correctement la ligne de base de l'intégration. La mesure de l'enthalpie totale de la réaction a donné une valeur de 224 Joule par gramme de matrice. Cette dernière représentant une fraction massique de 0.46, ce résultat correspond à une valeur de 103 Joules par gramme de composite.

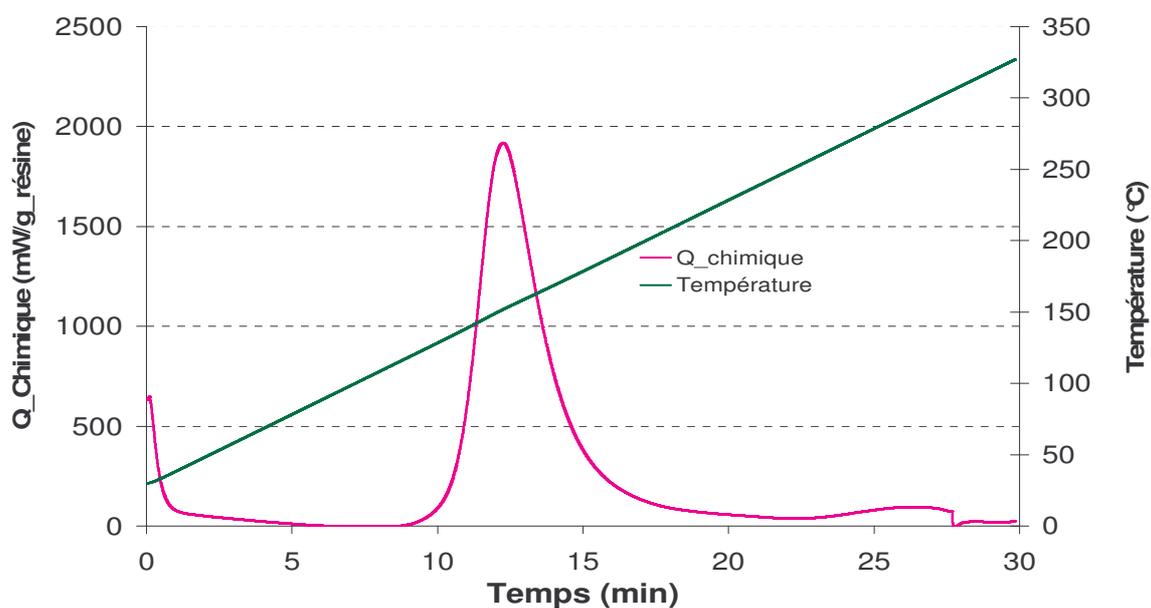


Figure IV.9 : La température imposée et source chimique obtenue par DSC

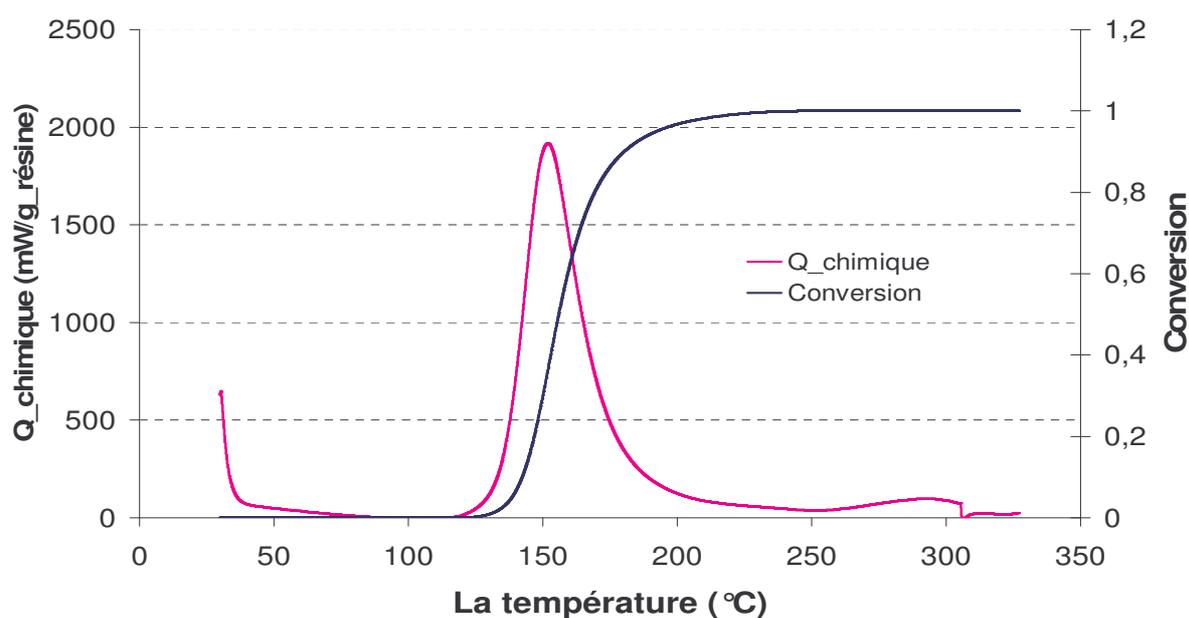


Figure IV.10 : La source chimique et conversion obtenus par DSC

On utilise ces résultats dans le programme de la modélisation thermique pour calculer l'élévation de la température dans le composite.

IV.2. L'équation de la chaleur

L'équation générale de la chaleur est donnée par la relation suivante :

$$\rho C_p \frac{\partial T}{\partial t} + \nabla(\bar{\lambda} \nabla T) = Q + \frac{h \cdot s}{V} (T_{ext} - T) + \frac{C_r \cdot s}{V} (T_{amb}^4 - T^4) \quad (IV.39)$$

Avec :

ρ est la masse volumique (en Kg.m^{-3})

C_p est la capacité calorifique (en $\text{J.kg}^{-1}.\text{K}^{-1}$)

$\bar{\lambda}$ est le tenseur de conductivité thermique (en $\text{W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$)

Q est la source de chaleur (en W.m^{-3}),

h est le coefficient de transfert thermique (en $\text{W.m}^{-2}.\text{K}^{-1}$)

s est la section (m^2).

V est le volume du composite (m^3).

C_r est la constante de rayonnement (en $\text{W.m}^{-2}.\text{K}^{-4}$).

Pour une première approximation nous négligeons les transferts thermiques par rayonnement, l'équation de la chaleur dans le composite s'écrit donc :

$$\left(\rho_{comp} \cdot C_{p_{comp}} \right) \frac{\partial T}{\partial t} + \nabla(\bar{\lambda}_{comp} \cdot \nabla T) = Q_{comp} \quad (IV.40)$$

Avec :

$$Q_{comp} = Q_{micro} + Q_{chimi} \quad (IV.41)$$

Q_{micro} est la source électromagnétique donnée par la relation (IV.1).

Q_{chimi} est la source chimique dégagée par réaction de la réticulation donnée par la relation suivante :

$$Q_{chimi} = \rho_{matrice} (1 - V_f) \Delta H_r \frac{\partial \alpha}{\partial t} \quad (IV.42)$$

où $\rho_{matrice}$ est la masse volumique de la matrice (en Kg.m^{-3})

V_f est le taux volumique de renfort (fibres).

$\bar{\lambda}_{comp}$ est le tenseur de conductivité thermique du composite. Ce tenseur est symétrique [IV.28].

Dans le cas général, il est caractérisé par 6 paramètres : trois conductivités principales λ_x , λ_y et λ_z (en $W.m^{-1}.K^{-1}$) et trois directions principales x , y et z . On notera que l'anisotropie vient de l'orientation des fibres.

$$\bar{\lambda}_{comp} = \begin{bmatrix} \lambda_{xx} & \lambda_{xy} & \lambda_{xz} \\ \lambda_{xy} & \lambda_{yy} & \lambda_{yz} \\ \lambda_{xz} & \lambda_{yz} & \lambda_{zz} \end{bmatrix}_{x,y,z} = \begin{bmatrix} \lambda_x & 0 & 0 \\ 0 & \lambda_y & 0 \\ 0 & 0 & \lambda_z \end{bmatrix}_{x,y,z} \quad (IV.43)$$

En chaque point du composite de coordonnées (x, y, z) et à chaque instant t , les paramètres du modèle dépendent du degré de conversion $\alpha(x, y, z, t)$ et de la température $T(x, y, z, t)$, il nous faut donc exprimer leur variations avec ces deux variables d'états.

IV.2.1. Modélisation de la capacité calorifique et la masse volumique du composite

Le produit de ces deux grandeurs étant une propriété volumique, sa valeur pour le composite est obtenue par une loi de mélange entre le renfort et la matrice en tenant compte de la fraction volumique de chaque composant [IV.29, IV.30]:

$$(\rho C_p)_{Comp} = V_f \cdot \rho_{Renf} \cdot C_{p_{renf}} + (1 - V_f) \cdot \rho_{matrice} \cdot C_{p_{matrice}} \quad (IV.44)$$

Il faut noter que cela suppose que l'effet des interactions fibre/matrice sur la capacité calorifique soit négligeable, ce qui semble réaliste.

IV.2.1.1. Capacité calorifique de la matrice

En décrivant l'évolution de la capacité calorifique de la matrice avec le degré de conversion et la température [IV.30, IV.31] comme suit :

$$C_p(\alpha, T) = \alpha \cdot C_{p_1}(T) + (1 - \alpha) \cdot C_{p_0}(T) \quad (IV.45)$$

où Cp_0 et Cp_1 sont respectivement les capacités calorifiques de la matrice avant réaction et après réaction totale.

L'application de cette équation pose en pratique un énorme problème d'extrapolation, Cp_0 ne pouvant être mesurée expérimentalement qu'à basse température (avant le début de la réaction) et Cp_1 uniquement à haute température (au dessus de la température de transition vitreuse du réseau thermodurci)

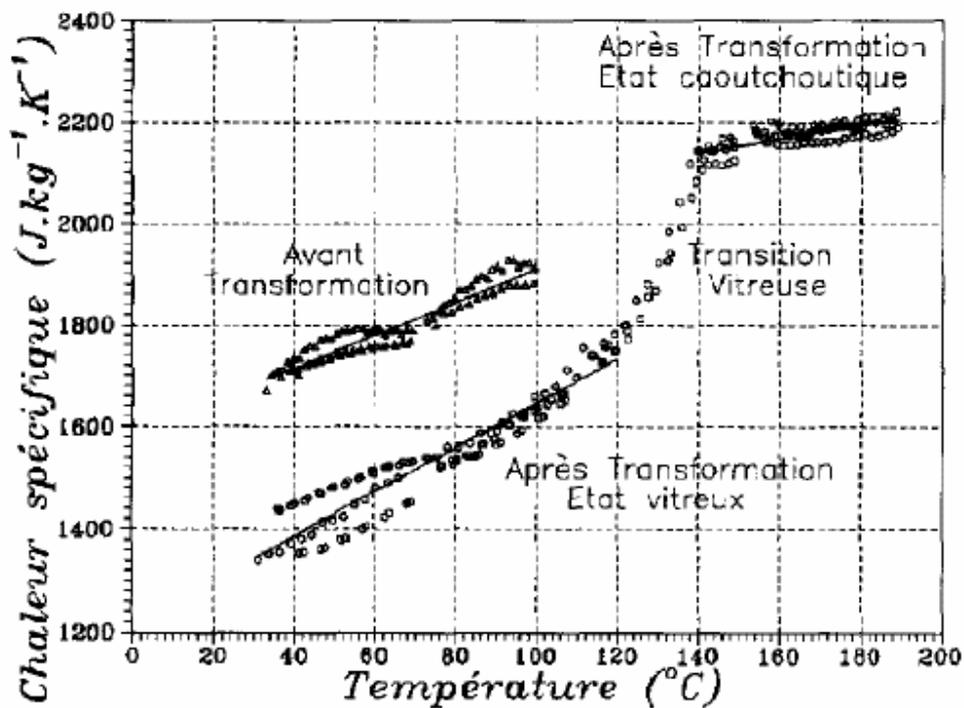


Figure IV.11 : L'évolution de la chaleur spécifique en fonction de la température d'une matrice époxydique [IV.29]

IV.2.1.2. Masse volumique de la matrice

La modélisation de la masse volumique de la matrice est plus complexe. Elle est souvent considérée comme constante bien que sa variation soit importante pour la plupart des matrices. MIJOVIC et WANG [IV.32] proposent un modèle empirique :

$$\text{Si } \alpha < \alpha_{\text{gel}} \text{ on a } \rho_{\text{matrice}} = \rho_0(T) + B.\alpha \quad (\text{IV.46})$$

$$\text{Si } \alpha > \alpha_{\text{gel}} \text{ on a } \rho_{\text{matrice}} = \rho_1(T) \quad (\text{IV.47})$$

où

α_{gel} est le degré de conversion lors de la gélification.

ρ_0 et ρ_1 sont respectivement les masses volumiques avant et après la gélification

B est une constante.

Les propriétés du renfort étant indépendantes de la conversion, il suffira de déterminer expérimentalement les variations avec la température des 7 paramètres : Cp_0 , Cp_1 , ρ_0 , ρ_1 , B , ρ_{renfort} , Cp_{renfort} .

IV.2.2. Modélisation de la conductivité thermique de la matrice

Cette grandeur est sans doute la propriété thermophysique la plus complexe à modéliser du fait de sa nature tensorielle. Il n'existe pas de loi générale permettant d'exprimer les conductivités thermiques principales λ_x , λ_y et λ_z du composite en fonction des contributions des fibres et de la matrice.

Pour une matrice seule, on utilise généralement une loi empirique inspirée de la variation de la capacité calorifique de la matrice avec la conversion [IV.21, IV.29]. On a donc :

$$\lambda(\alpha, T) = \alpha.\lambda_1(T) + (1 - \alpha).\lambda_0(T) \quad (\text{IV.48})$$

Où : λ_0 , λ et λ_1 , sont respectivement les conductivités de la matrice (isotrope) avant, pendant et après réaction.

Pour le composite, le problème est encore plus complexe [IV.28]. Il faut en effet tenir compte de deux contributions : celle de la matrice et celle du renfort. Les modèles proposés dans la littérature permettent d'exprimer la conductivité thermique résultante

dans une direction donnée en fonction des conductivités des deux constituants, de la géométrie (arrangement des phases) et de la composition (fractions volumiques), en considérant un contact thermique parfait entre les phases. Même si cette modélisation est possible dans le cas de tissus simples [IV.28], elle reste un problème complexe dans le cas général. La conductivité du composite dans la direction $i = (x, y, z)$ pendant la réaction est donnée par la relation suivante :

$$\lambda_{Ci}(\alpha, T) = \alpha \cdot \lambda_{Ci1}(T) + (1 - \alpha) \cdot \lambda_{Ci0}(T) \quad (IV.49)$$

où

λ_{Ci} est la conductivité du composite dans la direction $i = (x, y, z)$ pendant la réaction.

λ_{Ci0} et λ_{Ci1} sont respectivement les conductivités du composite dans la direction i avant et après la réaction.

Les conductivités thermiques avant et après la réaction sont à déterminer que par une méthode expérimentale. Par manque des moyens, ces expériences n'ont pas été réalisées. Dans ce qui va suivre de la modélisation thermique du procédé nous allons tenir compte de la conductivité thermique du composite dans les trois directions, sans prendre en compte l'avancement de la réaction et son évolution en fonction de la température.

IV.3. Modélisation thermique du procédé micro-ondes

La modélisation thermique du procédé d'élaboration du composite verre-époxy s'impose pour la maîtrise de l'aspect thermique du procédé en tenant compte de l'ensemble des sources et des transferts de chaleur et une fois menée à terme, la modélisation thermique nous permettra d'atteindre les objectifs suivants :

- La compréhension et l'interprétation des phénomènes observés expérimentalement, comme les forts gradients de température au point situé proche de l'interface de sortie dans le cas d'un moule d'épaisseur non uniforme.
- La détermination et la mise en évidence des paramètres thermophysiques pertinents pour l'homogénéisation du traitement.

La modélisation des aspects thermiques de l'élaboration sous micro-ondes d'un composite à base de résine thermodurcissable présente une problématique à couplage triangulaire entre trois équations :

- l'équation de propagation déduite des équations de Maxwell,
- l'équation de la chaleur,
- l'équation de cinétique chimique.

On propose donc de résoudre un système d'équations couplées dans le but de connaître, à tout instant et en tout point du montage (applicateur, composite et le remplissage) avec les hypothèses et les conditions aux limites, détaillées dans le paragraphe suivant, la distribution du champ de température $T(x, y, z, t)$ et du champ électrique $E(x, y, z, t)$ dans l'applicateur et la transformation chimique $\alpha(x, y, z, t, T)$ dans le composite

$$\begin{aligned}
 \frac{\partial^2 E_x}{\partial y^2} + \frac{\partial^2 E_x}{\partial z^2} &= -\mu\omega^2 \varepsilon E_x & (a) \\
 Q_{micro} &= \pi \cdot f \cdot \varepsilon_0 \cdot \varepsilon'' \cdot |E|^2 & (b) \\
 \rho c_p \frac{\partial T}{\partial t} - k_x \frac{\partial^2 T}{\partial x^2} - k_y \frac{\partial^2 T}{\partial y^2} - k_z \frac{\partial^2 T}{\partial z^2} - Q_{micro} - Q_{chimi} &= 0 & (c) \\
 Q_{chimi} &= \rho \cdot \Delta H_r \cdot \frac{d\alpha}{dt} & (d)
 \end{aligned}
 \quad \left. \vphantom{\begin{aligned} (a) \\ (b) \\ (c) \\ (d) \end{aligned}} \right\} (IV.50)$$

IV.3.1. Hypothèses et conditions aux limites

La modélisation thermique doit être traitée en trois dimensions car suivant l'axe Ox les échanges de chaleur sont très importants aux parois verticales du guide, perpendiculaires à l'axe Ox pour deux raisons :

Premièrement, les échanges par convection naturelle sont les plus importants le long des parois verticales par comparaison aux échanges par des parois horizontales.

Deuxièmement, suivant l'axe Ox , l'éprouvette est faiblement isolée par une couche de 0.01 m d'épaisseur de matériau diélectrique silicone-verre. Par ailleurs, le calcul de la résistance thermique des parois du guide d'onde en aluminium, par analogie à la loi d'Ohm en électricité, montre que cette résistance est faible pour un épaisseur de la paroi du guide de 0.003 m. Pour faciliter le calcul numérique et réduire l'importance du maillage, on néglige l'épaisseur de la paroi métallique du guide d'onde, et nous le remplaçons par un coefficient d'échange équivalent comme le montre la figure IV.12.

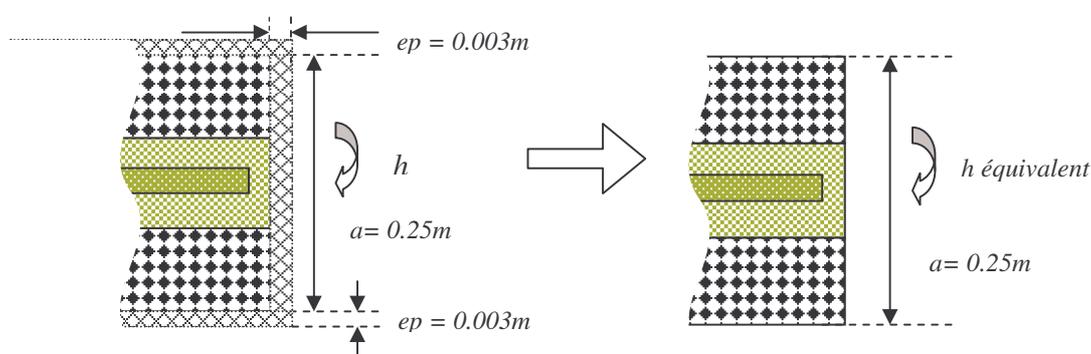


Figure IV.12 : Parois du guide et coefficient d'échange équivalent

La symétrie suivant le plan (Oy, Oz) à l'abscisse $x=0.06$ m permet de réduire le volume maillé.

Les conditions aux limites appliquées pour résoudre l'équation de la chaleur aux parois du guide sont représentées par le tableau IV.3 [IV.31] et par la figure IV.13.

A l'entrée et à la sortie de l'applicateur, les charges à eau qui permettent de protéger le générateur à l'entrée et à la sortie jouent un rôle d'une masse absorbante. Elles sont à la température de l'eau de ville. Cette température est de l'ordre de 20 °C pendant l'été.

Les coefficients d'échanges	$W.m^{-2}K^{-1}$
h_1	7
h_2	10
h_3	3.5

Tableau IV.3: Coefficients des échanges thermiques utilisés dans les conditions aux limites

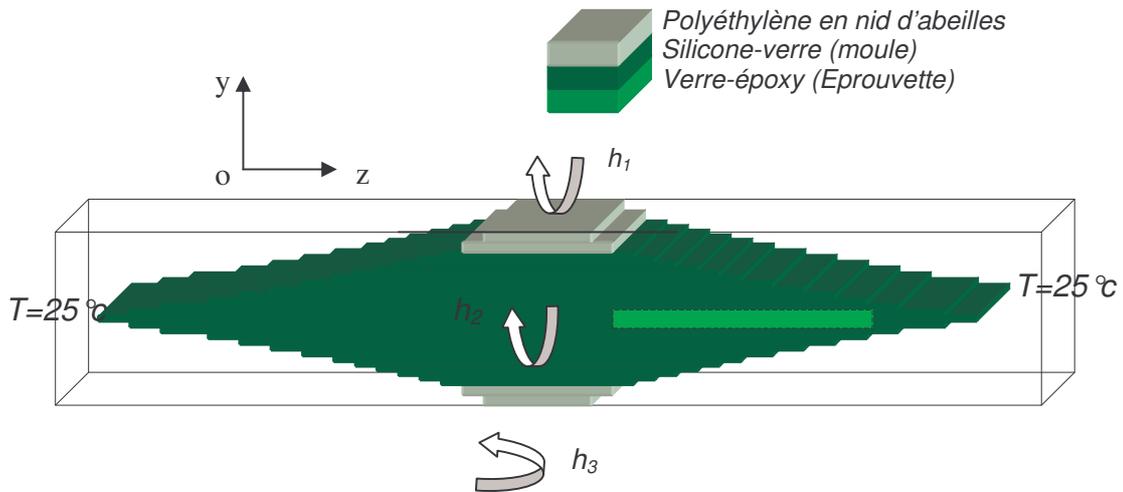


Figure IV.13 : Schéma du montage et les conditions aux limites appliquées

Par manque de données sur les évolutions en fonction de la température des caractéristiques thermiques des matériaux utilisés. Ces dernières sont considérées indépendantes de la température. Elles sont représentées dans le tableau suivant.

	ρ	C_p	k
	Kg.m^{-3}	$\text{J.kg}^{-1}.\text{K}^{-1}$	$\text{W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$
Polyéthylène en nid d'abeilles	100	900	0.03
Silicone-verre	1790	1021	0.4
Verre-époxy	1900	1500	$K_x=0.3$ $K_y=0.3$ $K_z=0.7$
Air	1.2	1000	0.025

Tableau IV.4 : Les caractéristiques thermiques des matériaux utilisées [IV.26]

IV.3.2. Evolution de la température dans le composite avec une source de chaleur constante

Dans le chapitre précédent et dans la dernière expérience d'élaboration, nous avons expliqué que l'élévation forte de la température du point quatre est due à la non uniformité de la capacité calorifique le long du composite.

Dans cette partie d'étude, nous avons imposé une source de chaleur constante le long de la pièce à élaborer. Cette source, nous l'avons évaluée à partir de l'évolution de la puissance absorbée (figure III.32). Nous avons cherché par la suite le champ de température dans le composite. Cette modélisation consiste à résoudre uniquement l'équation de la chaleur donnée par la relation (IV.50-c), avec les conditions et les hypothèses détaillées précédemment.

La figure IV.14, représente la répartition du champ de température dans l'ensemble de l'applicateur (moule+épreuve) à l'instant t égal à 1800 sec. Nous remarquons d'après cette figure que c'est la partie située à proximité de l'interface de sortie de l'éprouvette qui possède la température la plus élevée. Nous avons expliqué cette élévation importante de la température par la capacité calorifique qui entoure l'éprouvette et qui n'est pas constante le long du composite. Cela revient à dire que la quantité de chaleur échangée entre l'éprouvette et son environnement immédiat (le moule diélectrique), dans la direction z (la direction de propagation d'ondes), n'est pas uniforme. En plus, la partie droite de l'éprouvette est entourée par une couche de silicone-verre d'épaisseur égale à 1,33 fois l'épaisseur de l'éprouvette, et l'air qui entoure l'ensemble joue le rôle d'un isolant.

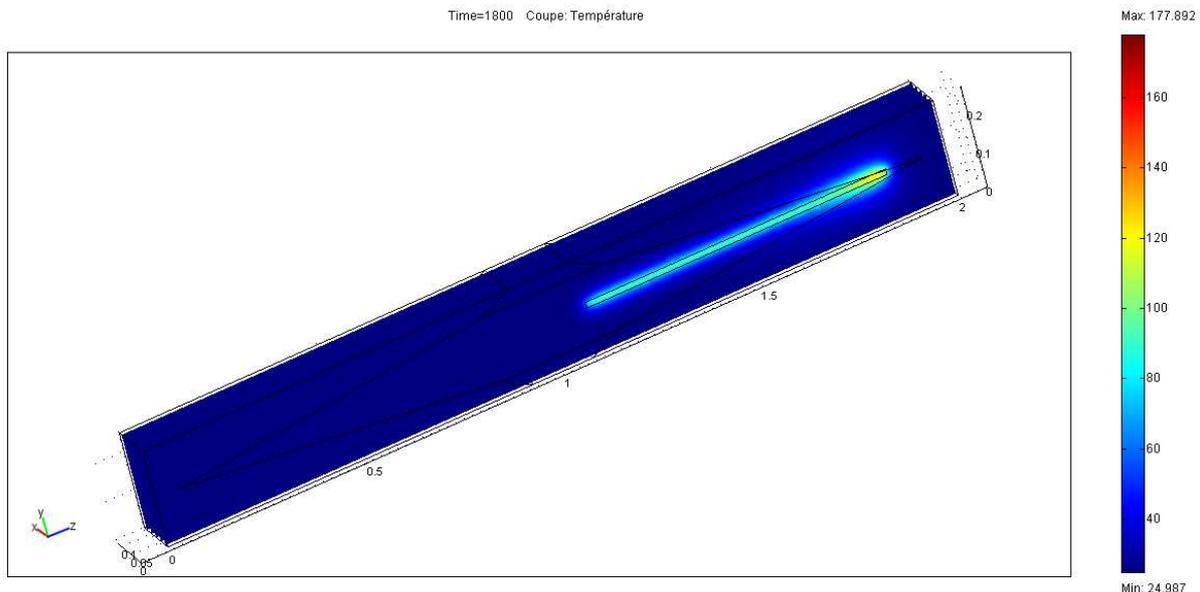


Figure IV.14 : Le champ de la température à 1800sec dans une éprouvette de 15mm et son environnement pour un chauffage uniforme

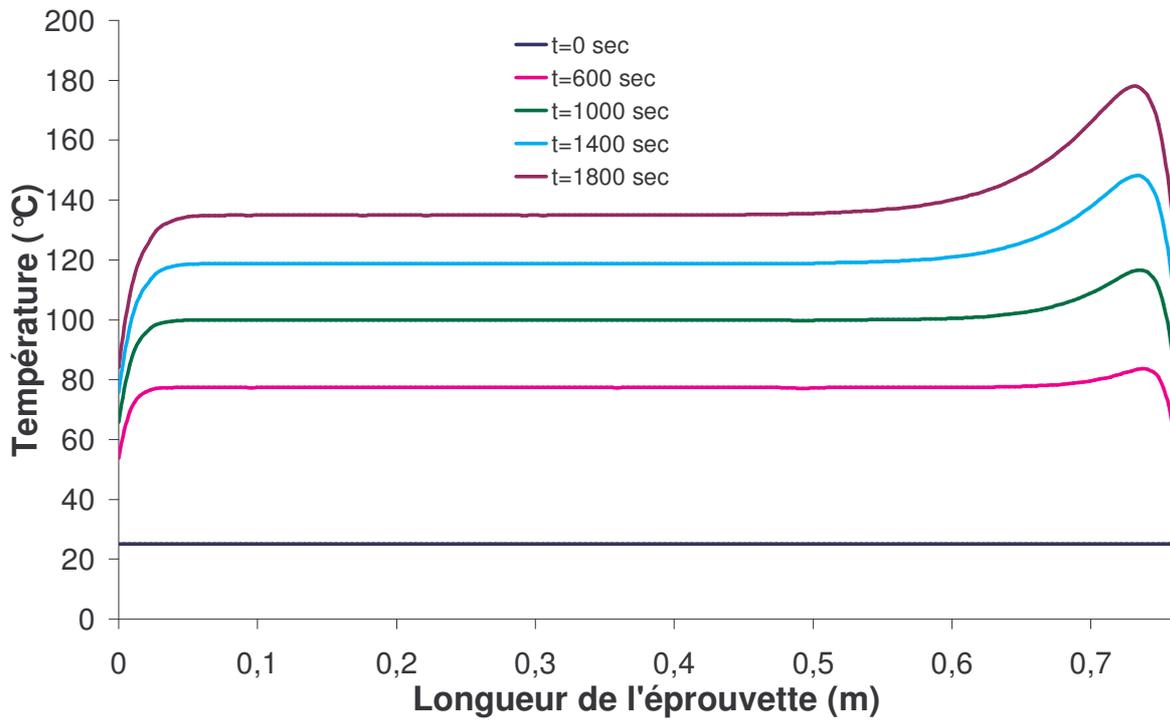


Figure IV. 15 : L'évolution de la température le long du composite en fonction du temps

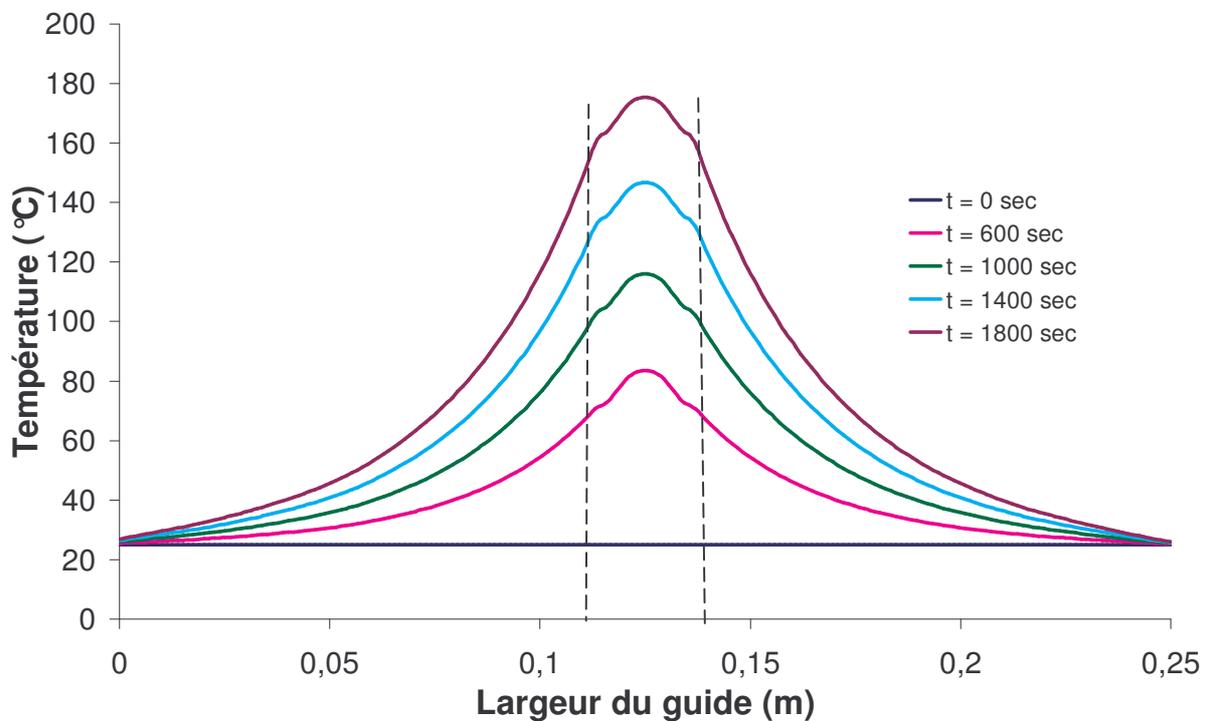


Figure IV.16 : La température transversale du composite au point $z_4 = 0.74$ m en fonction du temps

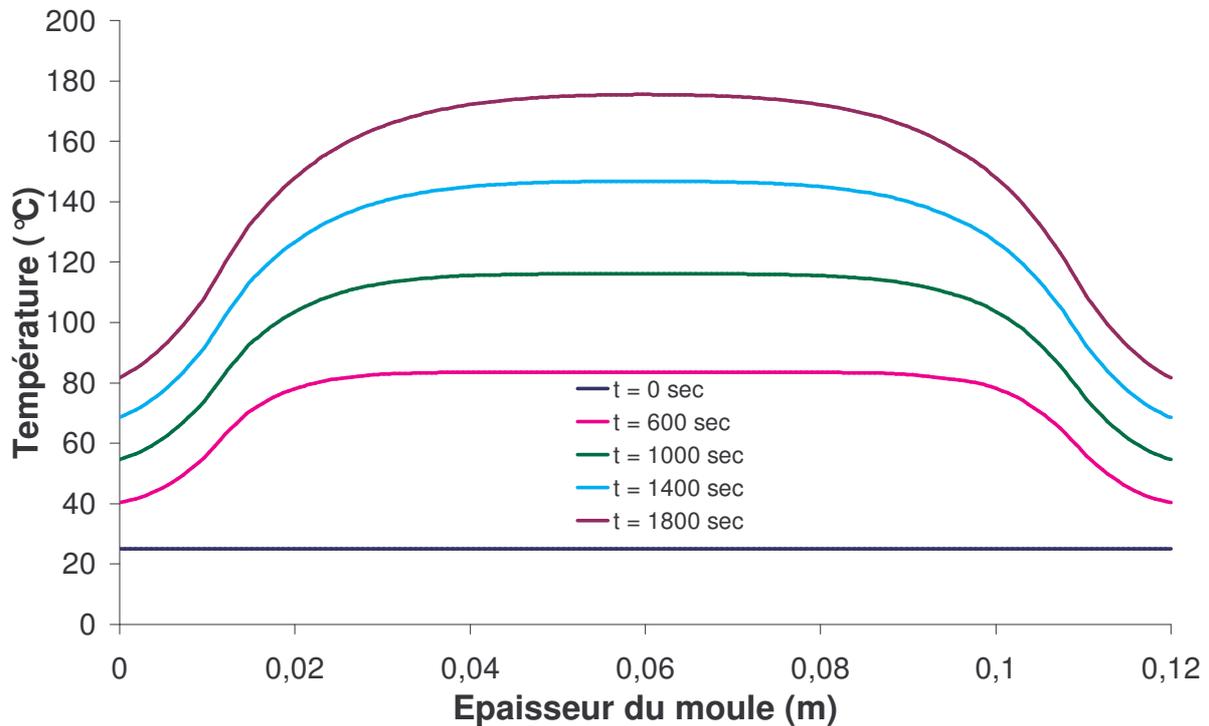


Figure IV.17 : La température suivant x du composite au point $z_4 = 0.74$ m en fonction du temps

IV.3.2. Evolution de la température dans le composite avec une source de chaleur électromagnétique

Dans cette partie d'étude, nous avons imposé une source de chaleur d'origine électromagnétique à un matériau composite dans un moule diélectrique comme le montre la figure IV.13. Cette modélisation consiste à résoudre l'équation de la propagation d'onde et l'équation de la chaleur données respectivement par les relations (IV.50-a et IV.50-c). C'est une modélisation couplée entre l'électromagnétisme et la thermique avec les mêmes conditions et les hypothèses détaillées précédemment, et sans prendre en considération l'évolution des caractéristiques du composite en fonction de la température.

La figure IV.18 représente le champ de la température dans un applicateur rempli de trois diélectriques où l'un représente le matériau composite à traiter de 15mm d'épaisseur, à l'instant $t = 1800$ secondes.

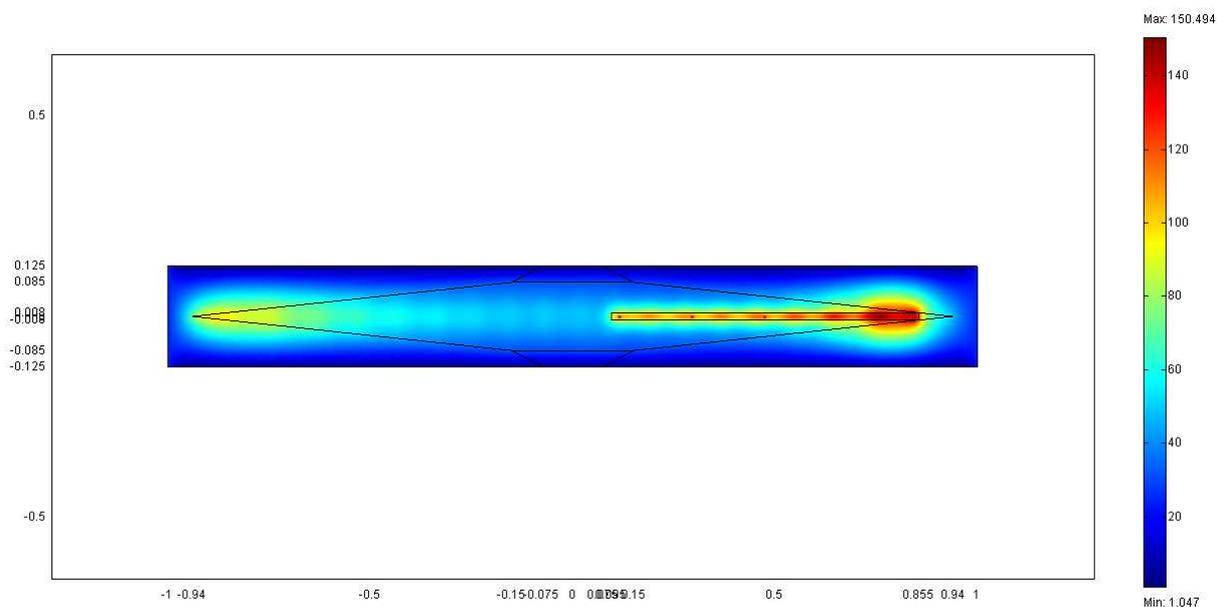


Figure IV.18 : La répartition du champ de température dans l'éprouvette et son environnement

On remarque d'après cette figure (figure IV.18) que la partie située à proximité de l'interface de sortie de l'éprouvette présente la température la plus élevée. Comme dans le cas précédent, le cas d'une absorption constante le long de l'éprouvette, nous avons expliqué cette montée forte de la température par la capacité calorifique qui entoure l'éprouvette et qui n'est pas la même le long du composite. Les résultats de cette modélisation sont confirmés par la thermographie par papier thermosensible réalisée sur une éprouvette déjà réticulée (figure IV. 19).

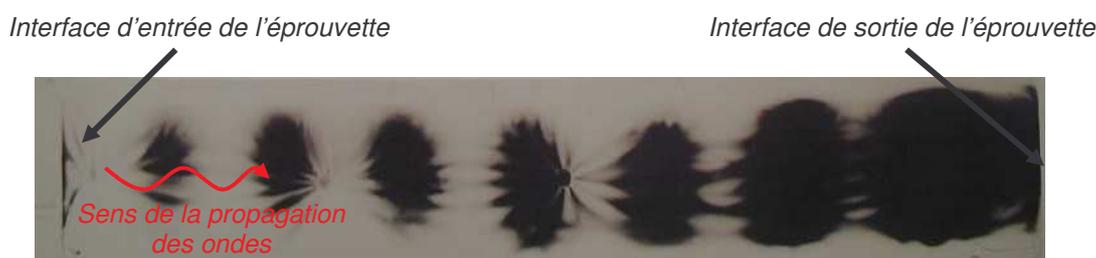


Figure IV.19 : Thermographie qui montre un profil de température résultant de l'effet électromagnétique et des conditions thermiques du point z_4

On remarque d'après la figure IV.19, que la longueur d'onde le long de l'éprouvette varie dans le sens de la propagation. Cette variation a été confirmée par la modélisation

électromagnétique (voir le paragraphe II.6.2). Rappelons que, dans ce paragraphe, nous avons expliqué la variation de λ_g par la variation de l'épaisseur du moule diélectrique dans le sens de la propagation des ondes électromagnétiques. Mais en réalité, cette variation de la longueur d'onde guidée (λ_g) est due aussi à la variation de la température le long du composite également, car, cette élévation de la température dans le sens de la propagation engendre une variation des caractéristiques de l'éprouvette dans ce sens. Cela est justifié par les courbes de la figure IV.20. La première courbe représente la variation de λ_g dans le sens de la propagation obtenue par une modélisation électromagnétique et la deuxième courbe représente la variation de λ_g le long du composite obtenue par la thermographie. On remarque d'après cette figure que plus on s'éloigne de l'interface d'entrée de l'éprouvette et plus l'écart entre les deux courbes augmente, et cela est dû à la variation des caractéristiques diélectriques du composite et du moule.

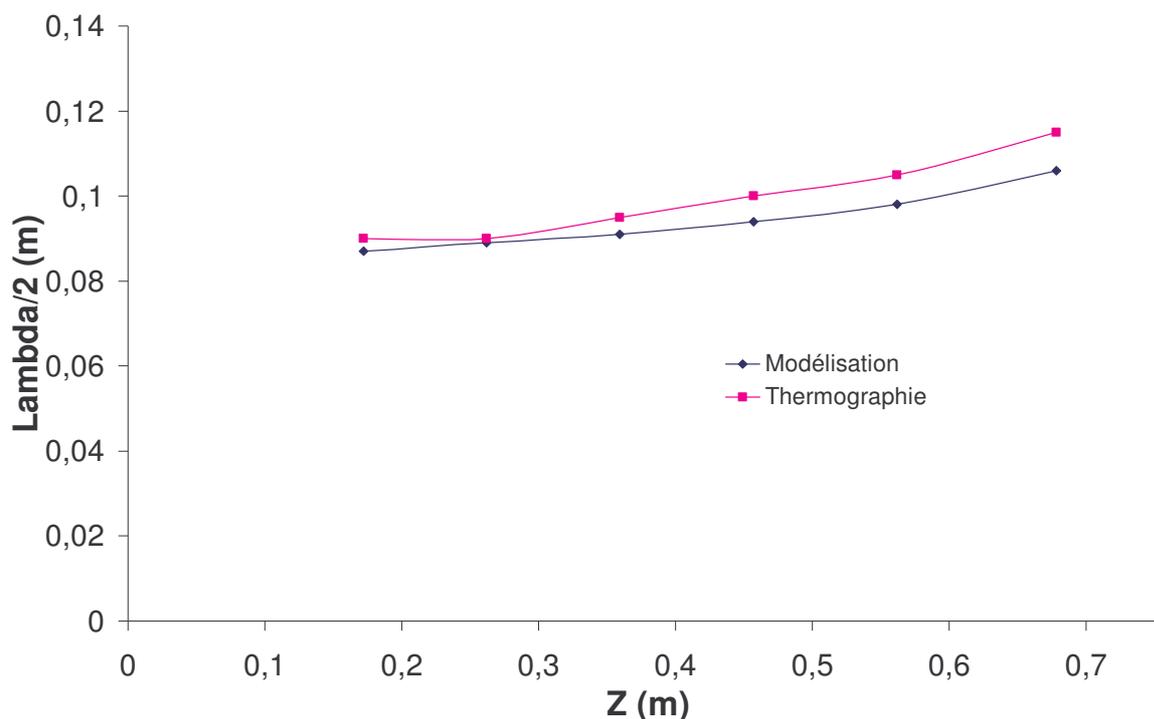


Figure IV.20 : La variation de $\lambda_g/2$ dans le sens de la propagation

IV.3.3. Evolution de la température dans le composite avec une source de chaleur électromagnétique et une source chimique

Dans cette partie, nous avons pris en considération l'évolution temporelle de la puissance électromagnétique absorbée, représentative de la variation des caractéristiques diélectriques du composite en fonction de la température. Nous avons pris aussi en considération la source de chaleur d'origine chimique due à la réaction de la réticulation de la matrice DGEBA. Rappelons que cette source a été déterminée par les mesures de DSC menées sur un échantillon d'un mélange verre-époxy, qui respectent les caractéristiques cinétiques suivantes :

$T \leq 120 \text{ }^\circ\text{C}$, $\alpha = 0$; $\frac{d\alpha}{dt} = 0$, le début de la transformation a lieu vers $120 \text{ }^\circ\text{C}$.

$\frac{d\alpha}{dt}$ (t, $T = 150 \text{ }^\circ\text{C}$); la vitesse est maximale pour une température de $150 \text{ }^\circ\text{C}$.

$T \geq 220 \text{ }^\circ\text{C}$; $\alpha = 1$; $\frac{d\alpha}{dt} = 0$, la transformation est supposée complète vers $200 \text{ }^\circ\text{C}$.

Nous voulons, par cette étude, modéliser l'élévation de la température au sein d'un matériau composite traité par micro-ondes à la fréquence 915 MHz et pour une durée de 1800 secondes .

La figure IV.21, représente l'évolution de la température des quatre points de mesure le long du composite. On constate que les courbes de cette figure présentent toutes une évolution de la température, en trois phases:

- La phase a est une partie à température croissante. C'est une période correspondant à une élévation de la température due au chauffage par micro-ondes jusqu'à environ $120 \text{ }^\circ\text{C}$.
- La phase b est une période qui commence par une autre partie croissante d'une pente plus forte que la partie précédente. Cette partie croissante est le signe de la

manifestation de la réaction chimique. Mais à la différence des expériences, on remarque que cette phase ne se termine pas par un maximum ou un plateau.

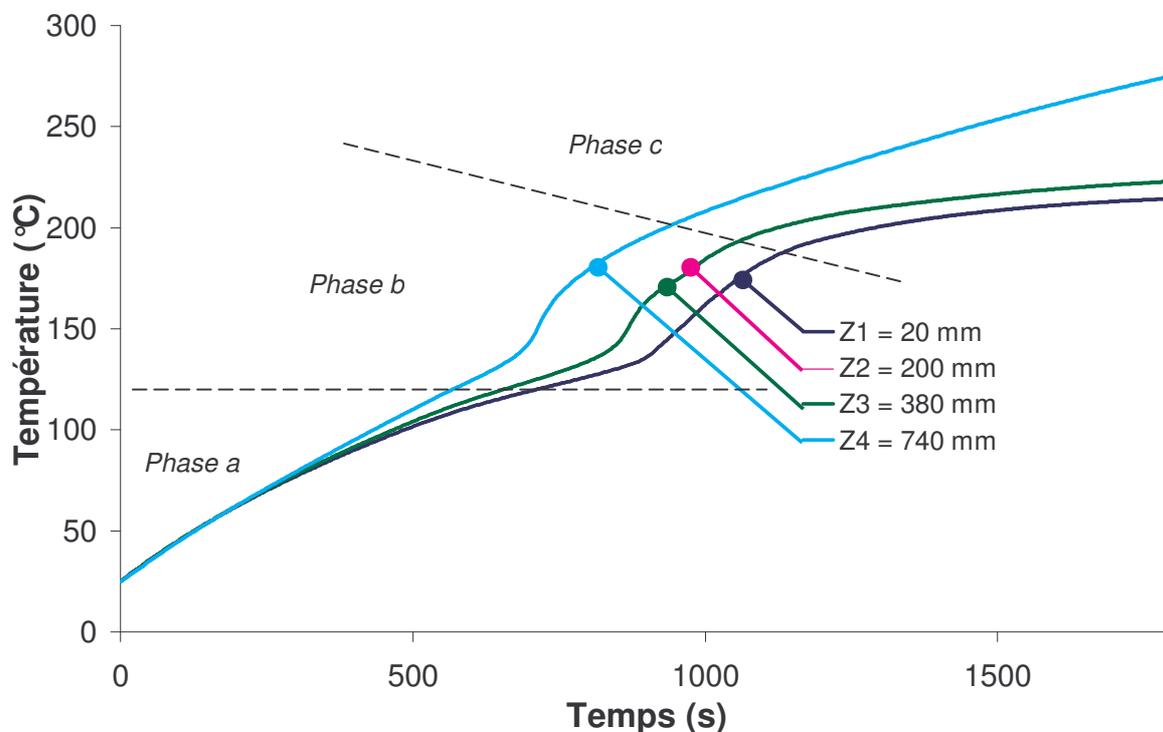


Figure IV.21 : Evolution de la température le long du composite en fonction du temps

Nous remarquons que le modèle de la réaction chimique n'a pas un effet aussi transitoire que ce que les expériences présentent. En revanche cette partie à pente élevée (phase b) se produit pour la même température mais à des temps différents pour chaque point de mesure. Ils correspondent au début de la réaction de réticulation.

Plus particulièrement, l'utilisation de logiciel multiphysique FEMLAB a montré ses limitations (avec les moyens utilisés ; mémoire vive de 1 GB) car les sources thermiques d'origine électromagnétique n'ont pu être dépendantes de la cote z, même en absence de source thermique d'origine chimique. Ainsi nous nous retrouvons dans la situation des figures IV14 à IV.17, qui correspond à une distribution uniforme des sources de chaleur d'origine électromagnétique, c'est-à-dire en respectant les conditions de l'expérience présentée par la figure III.23. On remarque toujours que la réaction de réticulation commence à partir de l'interface de sortie puis la réaction de réticulation se

développe pour les autres points. Cette observation apparaît également sur la figure IV.22 qui donne le détail des sources de chaleurs en fonction du temps.

- La phase c commence après la fin de la réaction de la réticulation. Elle correspond à une évolution due uniquement au chauffage par micro-ondes. Contrairement aux expériences, on observe une augmentation de la température.

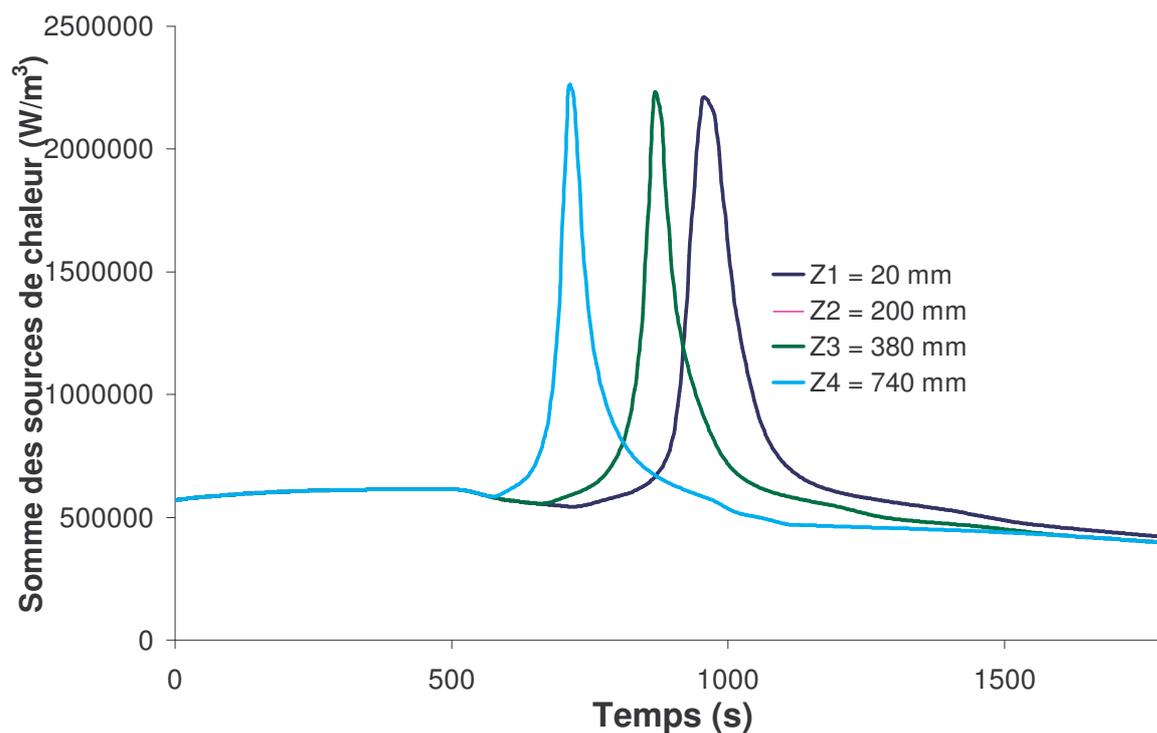


Figure IV.22 : Evolutions des sources de chaleur d'origines chimique et électromagnétique en fonction du temps

Conclusion

Ce chapitre traite de l'aspect thermique du procédé micro-ondes. Nous nous sommes intéressés, dans un premier temps à la description des deux sources thermiques (d'origine électromagnétique et chimique) existant lors d'un chauffage par micro-ondes d'un matériau thermodurcissable.

La source électromagnétique est caractérisée par la distribution du champ électrique ainsi que par la distribution de la variation du facteur d'absorption du matériau à

élaborer. Pour cette raison nous avons cherché à écrire l'équation de la propagation de l'onde déduite des équations de Maxwell. Cette partie d'étude est un préalable à la modélisation électromagnétique. Puisque la source électromagnétique est une fonction des caractéristiques des matériaux et que ces derniers sont très dépendants de la température, nous avons présenté les résultats des trois méthodes de caractérisation utilisées. Les deux premières méthodes nous ont permis de connaître l'ordre de grandeur des deux facteurs (absorption et permittivité). Ces deux méthodes ne prennent pas en considération la variation de l'absorption et de la permittivité en fonction de la température, d'où la nécessité d'une troisième méthode de caractérisation qui prenne en considération l'évolution des deux facteurs en fonction de la température et dans des conditions cinétiques les plus proches du procédé.

La deuxième source est une source de chaleur d'origine chimique. Elle intervient lorsque le matériau thermodurcissable atteint une certaine température. Nous nous sommes intéressés en un deuxième temps à modéliser cette source d'origine chimique par deux méthodes: une méthode analytique qui utilise l'équation de KAMAL et SOUROUR et l'autre méthode, expérimentale, par DSC. La méthode analytique ne prend pas en considération la variation des énergies d'activations E_i en fonction de la température, et c'est la raison pour laquelle nous avons gardé les résultats de la deuxième méthode

Dans la deuxième partie de ce chapitre nous nous sommes intéressés à modéliser l'équation générale de la chaleur et toutes les caractéristiques thermiques du composite, qui rentrent dans cette dernière, en fonction de l'avancement de la réaction chimique de réticulation. Nous avons donc présenté la variation de la conductivité thermique, la capacité calorifique et la masse volumique en fonction de l'avancement de réaction de la réticulation de la matrice DGEBA. Nous avons vu ainsi les difficultés de la modélisation des paramètres.

La dernière partie s'est intéressée à la modélisation thermique du procédé micro-ondes. Les premiers résultats de cette modélisation n'ont permis de mettre en évidence que

l'élévation forte de la température du point quatre, qui est due à la non uniformité de la capacité calorifique le long du composite à élaborer. Le profil de température suivant x montre que le composite est refroidi par les deux flancs de l'applicateur. Une modélisation couplée électromagnétique et thermique a confirmé que les mesures de la thermographie correspondent à un profil thermique et non pas à un profil du champ électrique. Au vu des limitations du logiciel pour obtenir une modélisation couplée, nous nous sommes contentés d'un calcul en deux dimensions pour les sources électromagnétiques. Comme les mesures thermiques expérimentales, nous avons vu trois phases.

Ces dernières ne donnent pas exactement l'aspect transitoire de la phase b et les pertes thermiques de la phase c. Ces différences sont dues principalement au fait que le modèle numérique ne prend pas en considération l'évolution des caractéristiques thermiques des matériaux en fonction de l'avancement de la réaction et que le modèle chimique n'est valable que pour une certaine vitesse de la réaction, trop faible par rapport à la vitesse de réaction effectivement réalisée pendant nos expériences.

Références bibliographiques IV

- [IV.1] P. GAILLARD, *Des trajectoires thermiques et du concept de synthèses anisothermes aux oscillations thermiques*. Thèse. Université de Bourgogne, 1996.
- [IV.2] A. PRIOU, *Technique de l'ingénieur, Traité Sciences fondamentale AF3 370*
- [IV.3] F. L. PAULAUSKAS, T. L. WHITE *Temperature- dependent dielectric measurements of Polyacrylonitrile fibres during air oxidation, SAMPE 2004 - Long Beach, CA May 16 - 20, 2004*
- [IV.4] R. E. MUDGETT, *Dielectric Properties Food*. In: Decareau RV. Editor. *Microwave in the Food Processing Industry*. Academic Press. Inc., New York. pp 14-57. 1985.
- [IV.5] E. MARAND, K. R. BAKER, J. D. GRAYBEAL, «*Comparison of reaction mechanisms of epoxy resins undergoing thermal and microwave cure from in situ measurements of microwave dielectric properties and infrared spectroscopy*», *Macromolecules*, vol. 25, 2243 (1992).
- [IV.6] Y. DENG, G. C. MARTIN, *Analysis of the cure dependant dielectric relaxation behavior of an epoxy resin*, *J. Polym. Sci.: Part B : Polymer Physics*, vol. 32, 2115 (1994).
- [IV.7] V. K. SMITH, J. F. POLLARD, T. C. WARD, J. D. GRAYBEAL, *Dielectric properties of polymers at microwave frequencies*, *Polymer Preprints, American Chemical Society, Division of Polymer Chemistry*, vol. 31, 278 (1990).
- [IV.8] M. DELMOTTE, H. JULLIEN, M. OLLIVON, *Variations of the dielectric properties of epoxy resins during microwave curing*, *Eur. Polym. J.*, vol. 27, n°4/5, 371 (1991).
- [IV.9] E. MARAND, K. R. BAKER, J. D. GRAYBEAL, «*Dielectric properties at microwave frequencies of epoxy undergoing cure*», *Polymer Preprints, American Chemical Society, Division of Polymer Chemistry*, vol. 31, n°2, 397 (1990).
- [IV.10] C. HEDREUL, J. GALY, J. DUPUY, M. DELMOTTE, C. MORE, *Kinetics modeling of a modified epoxy-amine formulation cured by thermal and microwave energy*, *J. Appl. Polym. Sci.*, vol. 64, 179 (1997).
- [IV.11] A. LIVI, G. LEVITA, P. A. ROLLA, *Dielectric behavior at microwave frequencies of an epoxy resin during crosslinking*, *J. Appl. Polym. Sci.*, vol. 50, 1583 (1993).

- [IV.12] Transfert de l'énergie des micro-ondes dans les matériaux diélectriques, CNRS Formation Thiais, 25 au 29 avril (1988).
- [IV.13] M. DELMOTTE, H. JULLIEN, M. OLLIVON, Variations of the Dielectric Properties of Epoxy Resins During Microwave Curing, *Eur. Polym. J.*, 27, No. 4/5, pp.371-376. 1991
- [IV.14] M. OLLIVON, S. QUINQUENET, M. SERAS, M. DELMOTTE, C. MORE, Microwave dielectric measurements during thermal analysis, *Thermochimica Acta*, vol. 125, 141 (1988).
- [IV.15] P. DEBYE, *Polar molecules*. New York: Dover; 1945.
- [IV.16] L. ZONG, , C. KEMPEL, C. M. HAWLEY, Dielectric studies of three epoxy resin systems during microwave cure Liming, *Polymer* 46 (2005) 2638–2645
- [IV.17] KS. COLE and RHJ COLE. *Chem. Phys* 1941; 9: 341.
- [IV.18] ADVANI S. G., BRUSCHKE M. V., PARNAS R. S., Resin transfert molding flow phenomena polymeric composites. *Flow and rheology in polymer composites manufacturing*. Edited by S. G. advani. Amsterdam : Elsevier, 1994, P. 465-515
- [IV.19] YOUSEFI A. LAFLEUR P. G., GAUVIN R., Kinetic studies of thermoset cure reactions : A review. *Polymer composites*, 1996, Vol 18, N°2, P. 157-168
- [IV.20] KAMAL M. R., SOUROUR S., Kinetic modelling of epoxy-amine cure process. *Polymer engineering and science*, 1973, vol.13, P.59-64.
- [IV.21] GUYONVARCH G., Analyse et optimisation des transferts thermiques couplés lors du moulage de matériaux composites par transfert de résine (Procédé RTM). Thèse. Université de Nantes, 1995, P. 211
- [IV.22] J.P. ELOUNDOU, Etude diélectrique de systèmes époxy-anime.1.conductivité et gélification, *Eur. Polym. J.*, 35 (1999), 1473-1480.
- [IV.23] F. DANÈS, B. GANIER, Estimating heat transfer bias of kinetic measurement for polymers by differential scanning calorimetry with isothermal mode, *Int. Jour. Therm. Scien.*, 42 (2003), 583-590.
- [IV.24] M. LEGRAND, V. BELLENGER, Estimation of the cross-linking ration and glass transition temperature during curing of amine-cross-linked epoxies, *Comp. Scien. and Tech.*, 61 (2001), 1485-1489

[IV.25] A. CHERDOUD, M. MOUZALI et M.J.M. ABADIE, *Etude de la réticulation DGEBA -Poly (Styrène -ALT- Anhydride Maléique) par DSC isotherme*, Eur. Poly. J. 33, N°9 (1997), 1415-1422.

[IV.26] E. JAO JULES, *Couplages entre propriétés thermiques, réactivité chimique et viscosité des matériaux composites thermodurcissables en relation avec les conditions de leur élaboration fondée sur l'hystérésis diélectrique*. Thèse. Décembre 2001

[IV.27] C.L. TUCKER, R. B. DESSENBERGER, *Governing equations for flow and heat transfert in stationary fiber beds. Flow and rheolgy in polymer composites manufacturing*. Edited by S. G. advani. Amsterdam : Elsevier, 1994, P. 257-323

[IV.28] J-L BAILLEUL. *Optimisation du cycle de cuisson de pièces épaisses en matériau composite. Application à un préimprégné résine époxyde/fibres de verre*. Thèse. Université de Nantes

[IV.29] J. L. BAILLEUL, D. DELAUNAY and Y. JARNAY, *Determination of temperature variable properties of composite materials : Methodology and experimental results*, Journal of reinforced plastics and composites, Vol.15 mai 1996

[IV.30] J. M. GONNET, J. GUILLET, I. SIRAKOV, R. FULCHIRON, and G. SEYTRE, *In-situ monitoring of the non-isothermal crystallization of polymers by dielectric spectroscopy*, polymer engineering and science, June 2002, Vol. 42, No. 6, 1159-1170.

[IV.31] R. GIBLIN, *Transmission de la chaleur par convection naturelle*. Eyrolles. 1974

Conclusion générale

Conclusion générale

Les travaux présentés dans cette thèse concernent la compensation de l'atténuation de l'intensité des sources de chaleur d'origine électromagnétique, dans le contexte du chauffage par hystérésis diélectrique (chauffage par micro-ondes). Les développements de ces travaux sont réalisés lors de l'élaboration d'un matériau composite verre-époxy, par mise en œuvre du chauffage micro-ondes à la fréquence 915 MHz. Pour cela nous avons mené cette étude en quatre parties. La première comporte une recherche bibliographique sur les matériaux thermodurcissables et les micro-ondes et des brèves analyses des bases du procédé micro-ondes. La deuxième partie traite de la modélisation électromagnétique de ce procédé et la modélisation des solutions pour un traitement uniforme, aspect sur lequel nous reviendrons. La troisième partie est une validation expérimentale de la modélisation électromagnétique. La dernière partie représente les interprétations thermiques des résultats obtenus dans les deux parties précédentes.

En effet, l'élaboration du matériau concerné est sous-tendue par l'obtention d'une uniformité spatiale des sources de chaleur d'origine électromagnétique, conduisant, sous certaines conditions à une distribution spatiale uniforme de la température au cours du temps. Dans le cas d'un composite à matrice thermodurcissable, et dans les conditions précédemment décrites, des sources de chaleur d'origine chimique peuvent présenter la même uniformité spatiale sans modifier la distribution spatiale uniforme de la température au cours du temps. Enfin, cette uniformité doit être considérée comme la base de la transformation uniforme du matériau conduisant à des propriétés mécaniques améliorées. Cet avantage apparaît encore plus accentué lorsqu'il s'agit d'objet de forte épaisseur pour lesquels l'uniformité de la distribution spatiale de la température est plus difficile à obtenir par diffusion de la chaleur.

Outre ce défi, l'originalité de ce travail réside plus particulièrement dans la confrontation de l'utilisation de la modélisation électromagnétique complète pour résoudre le problème de l'atténuation des sources de chaleur du procédé micro-ondes et de l'obtention des résultats expérimentaux relevant de la calorimétrie, puisque basés essentiellement sur des relevés de l'évolution de la température en plusieurs points d'une éprouvette. De plus, cette validation expérimentale a été

obtenue en réalisant des éprouvettes en composite verre-époxy de 15 mm d'épaisseur, de 100 mm de largeur et de 760 mm de longueur.

Au niveau le plus général, cette étude a permis d'aboutir aux quatre conclusions suivantes :

- Les résultats de la modélisation thermique et les expériences ont répondu négativement à la question : Est-ce qu'une source de chaleur d'origine électromagnétique uniforme conduit à une distribution spatiale uniforme de la température? Ces résultats nous ont permis de comprendre que le traitement d'un matériau composite par un procédé micro-ondes est un problème fortement couplé entre l'électromagnétisme et la thermique. La séparation de ces deux domaines pour résoudre le problème de l'uniformité du traitement n'est pas possible.
- L'ensemble des travaux a permis de mettre en évidence la compensation de l'atténuation de la source de chaleur d'origine électromagnétique par un chargement diélectrique d'épaisseur variable dans le sens de la propagation des ondes. Les résultats de la modélisation électromagnétique et les résultats expérimentaux ont montré que pour des dimensions convenables du moule diélectrique, dans notre cas en silicone-verre, l'atténuation des sources de chaleur s'inverse dans le sens opposé à la propagation des ondes électromagnétiques. Nous avons appelé cette situation "**l'effet diélectrique d'inversion de l'atténuation des ondes électromagnétiques**". Ce phénomène est une des bases indiscutables des moyens nécessaires à l'uniformité du traitement des matériaux diélectriques, généralement mauvais conducteurs de la chaleur, car, il permet de compenser l'atténuation des sources de chaleur d'origine électromagnétique.
- L'étude de la longueur d'onde guidée et de l'atténuation, dans les cas où l'inversion est atteinte ou non, ont montré que les paramètres de la propagation dans l'applicateur spécialement conçu dépendent de l'ensemble des caractéristiques diélectriques et dimensionnelles des charges diélectriques utilisées et non pas seulement de la caractéristique diélectrique d'absorption.

- *Enfin, contrairement à ce qui a été dit dans l'Introduction, le problème des ondes stationnaires ne peut pas être considéré comme suffisamment résolu par l'utilisation d'adaptations aux interfaces des objets à traiter. Notre étude montre que l'utilisation d'une adaptation non dimensionnée n'est pas suffisante, mais qu'il est toujours nécessaire d'associer la longueur des adaptateurs aux dimensions des charges diélectriques un travail reste à faire pour résoudre ce problème. En effet, comme le montrent les résultats de la modélisation électromagnétique, la répartition de la source de chaleur d'origine électromagnétique dépend fortement des deux biseaux.*

En ce qui concerne les perspectives de ce travail qu'il faut distinguer des quatre conclusions générales, nous pouvons proposer cinq voies de recherche, mais aussi de développement.

- *Le développement d'un modèle numérique, et des outils numériques associés, qui puisse prendre en compte un couplage complet entre l'électromagnétisme, la thermique et la cinétique chimique de la réticulation et qui, en plus, prendrait en considération les variations des propriétés diélectriques et thermiques de l'ensemble des matériaux utilisés en fonction de la température,*
- *La conception d'applicateurs multimatériaux de géométrie complexe adaptée à la forme et aux dimensions des éprouvettes à traiter,*
- *L'utilisation, à l'échelle du laboratoire de ces conditions opératoires, associées aux autres conditions physiques, notamment la contrainte de pression hydrostatique de façon à obtenir une densification convenable de la matrice,*
- *La détermination d'un modèle analytique de la source d'origine chimique qui puisse prendre en compte la vitesse réelle de montée en température et la variation des énergies d'activation en fonction de la température, car l'utilisation d'un modèle expérimental est limitée à des élévations de la température constantes en fonction du temps,*
- *d'expertiser et d'appliquer ce phénomène diélectrique d'inversion de l'atténuation dans des situations de productions industrielles utilisant les micro-ondes comme moyen de chauffage et de traitement, comme dans le*

domaine de la vulcanisation des caoutchoucs et dans les domaines de l'industrie agroalimentaire.

Annexes

A.II.1. Etude de l'influence de la longueur des deux biseaux sur le profil longitudinal du champ électrique.

Le but de cette étude comme a été précisé dans le paragraphe II.5.1, est de connaître l'influence de la longueur des deux biseaux sur l'évolution de la norme du champ électrique le long du composite à élaborer. Les figures 1, 2 et 3 représentent l'évolution de la norme du champ électrique le long d'une éprouvette de 15 mm d'épaisseur, en fonction de la longueur des deux biseaux. Pour cela un programme informatique a été développé à l'aide de MATLAB (voir plus loin)

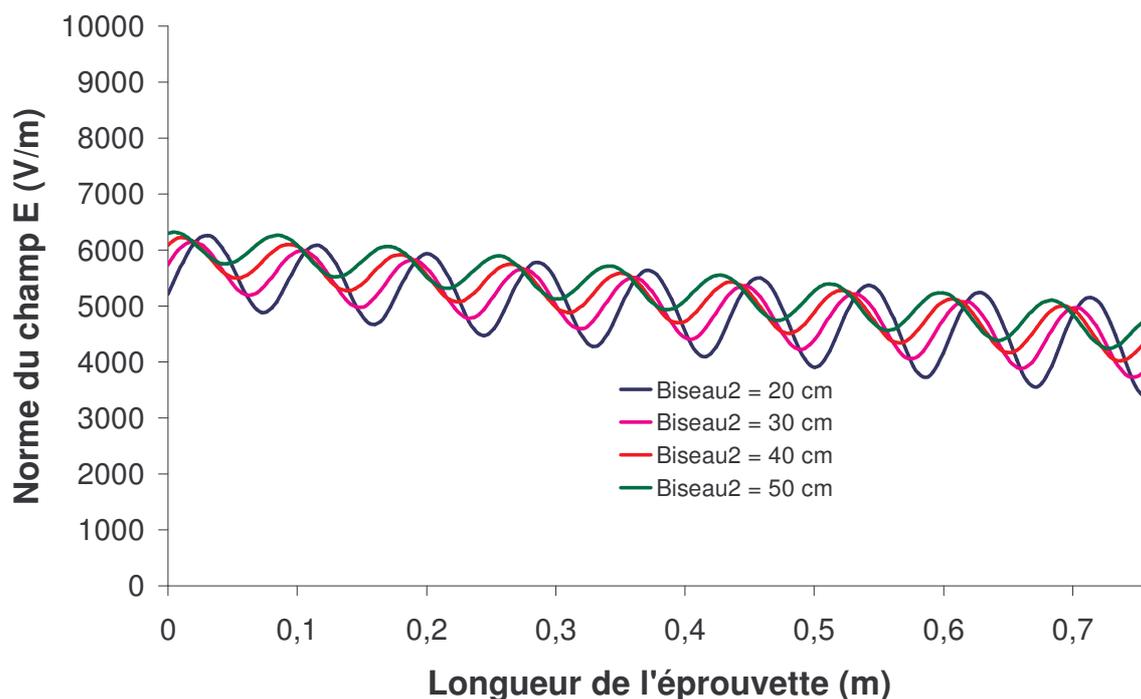


Figure A.II.1: L'évolution de la norme du champ électrique dans une éprouvette de 15 mm d'épaisseur en fonction de la longueur de deuxième biseau, et pour 30cm de longueur du premier

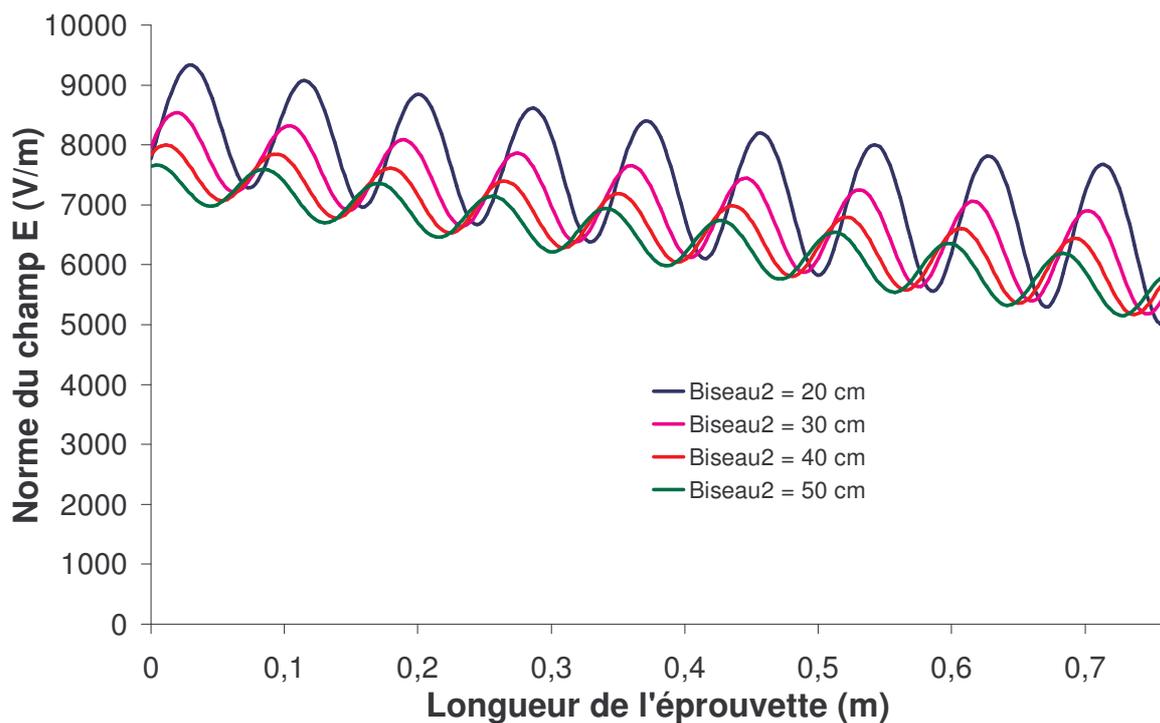


Figure A.II.2: L'évolution de la norme du champ électrique dans une éprouvette de 15 mm d'épaisseur en fonction de la longueur de deuxième biseau, et pour 40cm de longueur du premier

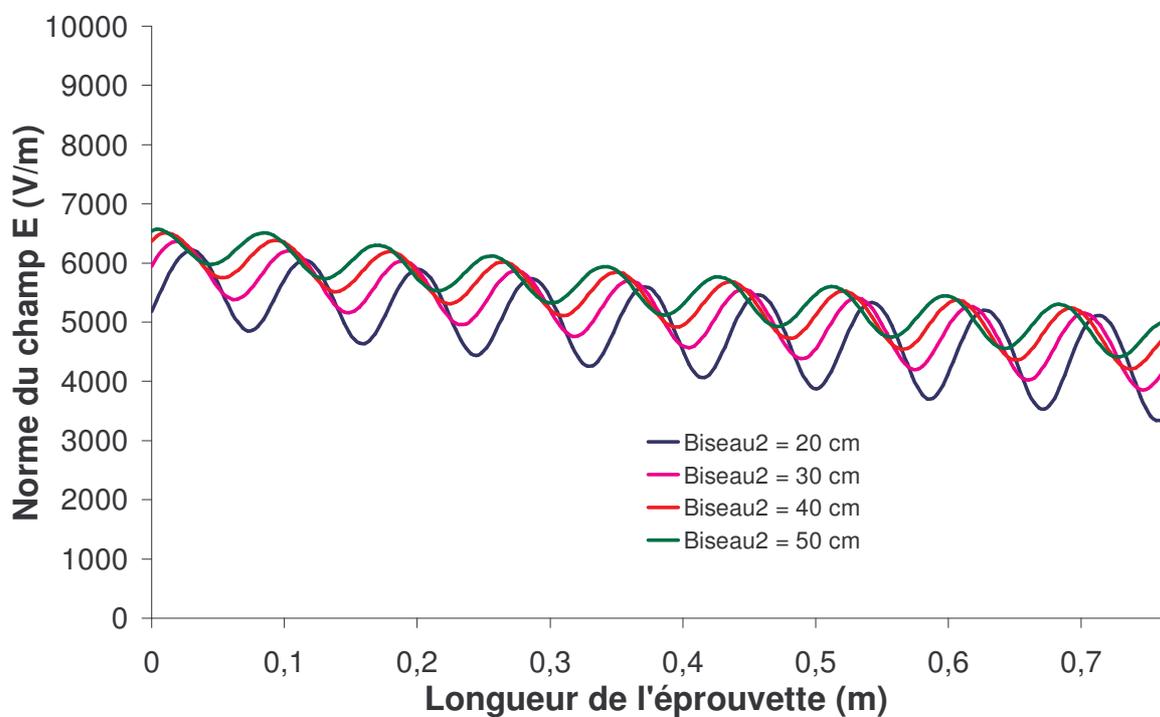


Figure A.II.3: L'évolution de la norme du champ électrique dans une éprouvette de 15 mm d'épaisseur en fonction de la longueur de deuxième biseau, et pour 50cm de longueur du premier

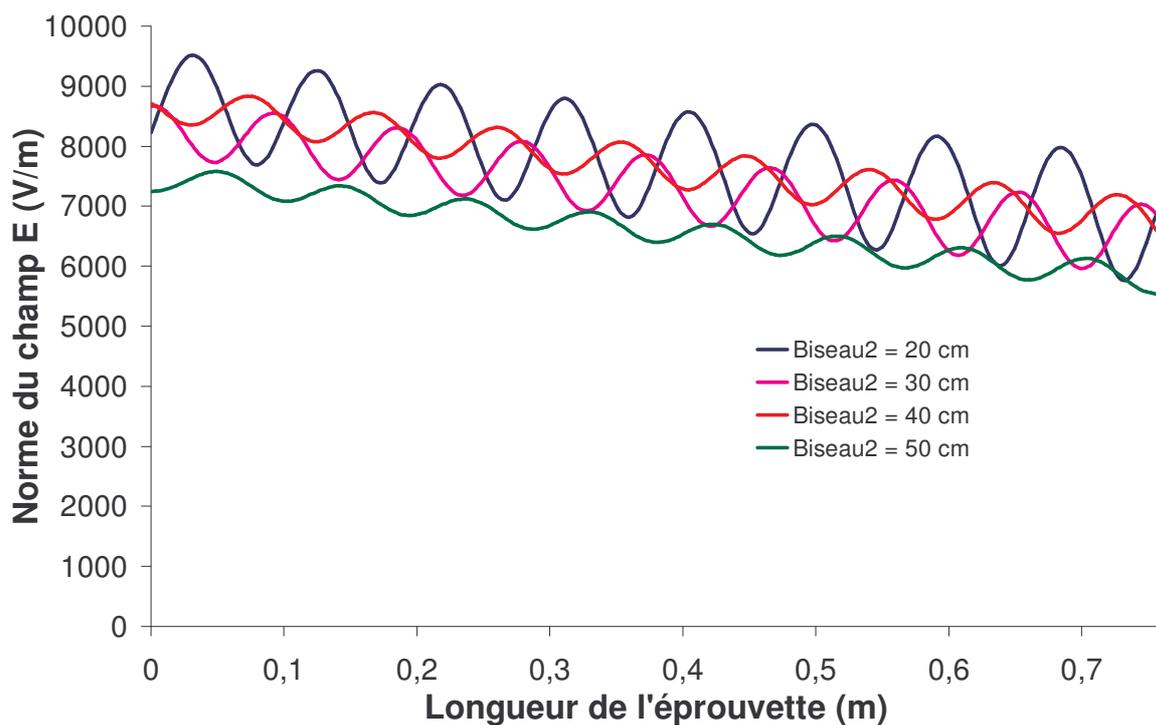


Figure A.II.4: L'évolution de la norme du champ électrique dans une éprouvette de 10 mm d'épaisseur en fonction de la longueur de deuxième biseau, et pour 20cm de longueur du premier

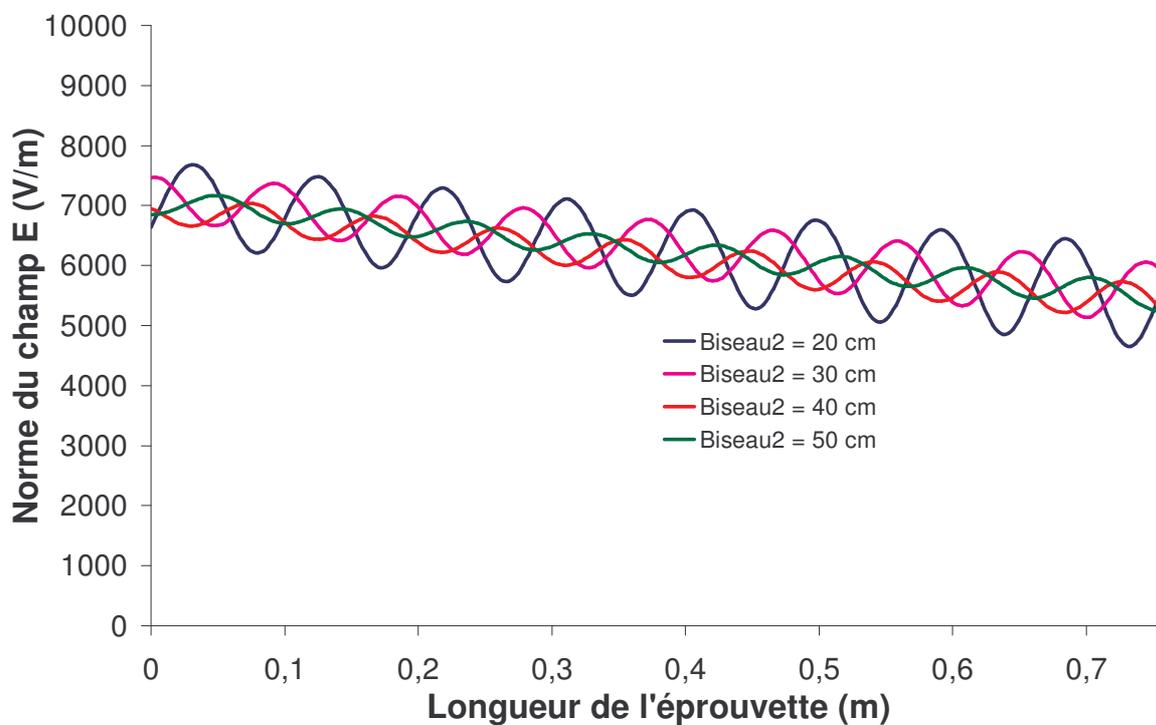


Figure A.II.5: L'évolution de la norme du champ électrique dans une éprouvette de 10 mm d'épaisseur en fonction de la longueur de deuxième biseau, et pour 30cm de longueur du premier

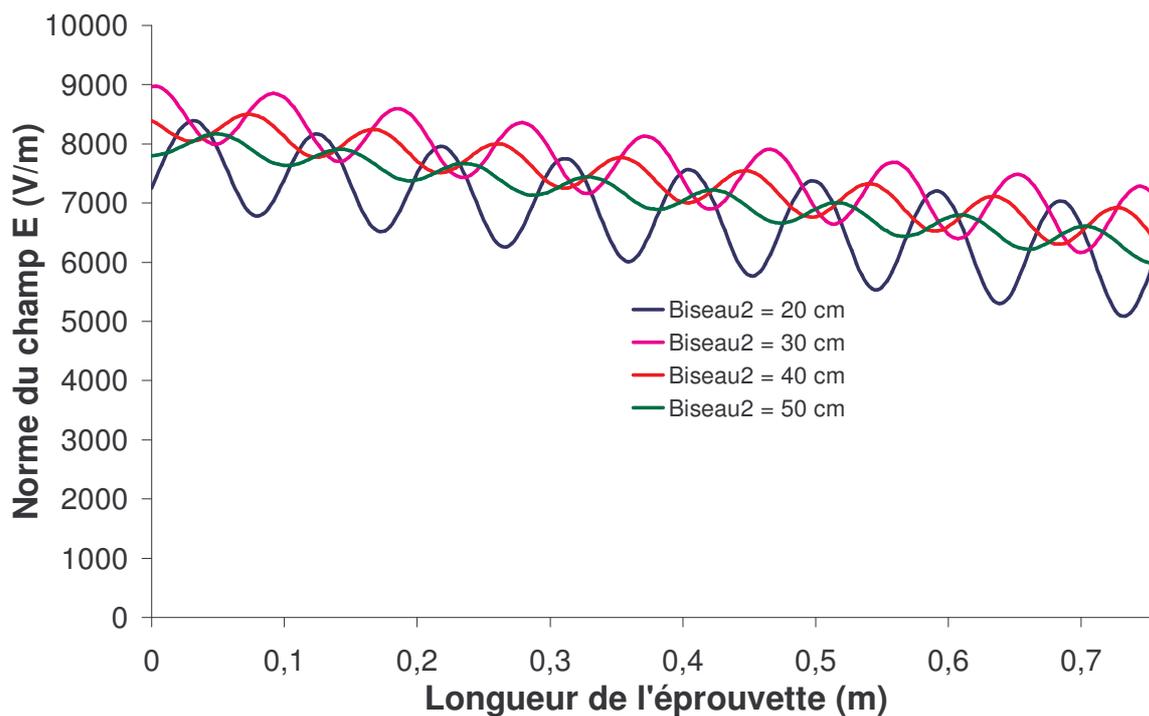


Figure A.II.6: L'évolution de la norme du champ électrique dans une éprouvette de 10 mm d'épaisseur en fonction de la longueur de deuxième biseau, et pour 40cm de longueur du premier

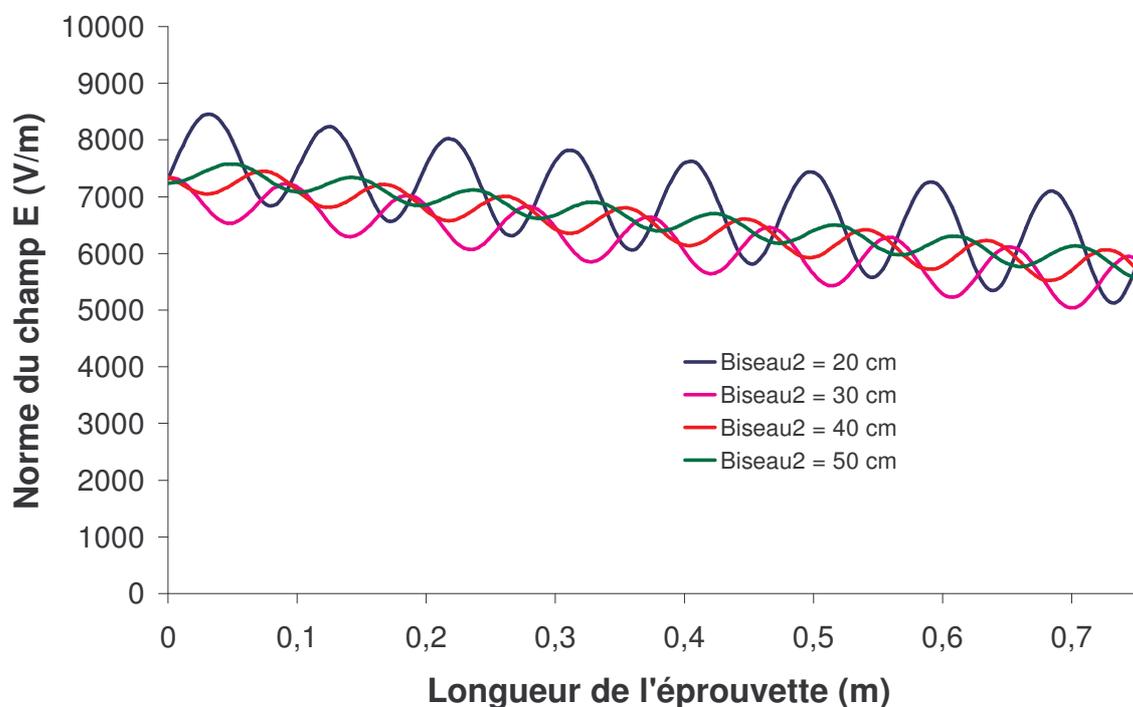


Figure A.II.7: L'évolution de la norme du champ électrique dans une éprouvette de 10 mm d'épaisseur en fonction de la longueur de deuxième biseau, et pour 50cm de longueur du premier

A.II.2. Le programme

Ce programme permet de étudier l'influence de la longueur des adaptations (biseaux) sur la distribution du champ dans le composite à élaborer, en faisant varier les longueurs des deux biseaux.

% Le profil du la norme du champ électrique en fonction de la longueur des deux biseaux

```

flclear fem
% X_bis1= -0.94
% X_bis2 = 0.94
% Femlab version
clear vrsn
vrsn.name = 'FEMLAB 3.1';
vrsn.ext = '';
vrsn.major = 0;
vrsn.build = 157;
vrsn.rcs = '$Name: $';
vrsn.date = '$Date: 2004/11/12 07:39:54 $';
fem.version = vrsn;
for X_bis2=0.94:-0.10:0.64
    for X_bis1=0.94:-0.10:0.64
% Geometry
g1=rect2(2.6,0.4,'base','corner','pos',[-1.6,-0.2]);
g2=rect2(2,0.4,'base','corner','pos',[-1,-0.2]);
g3=rect2(2,0.325,'base','corner','pos',[-1,-0.2]);
g4=rect2(2,0.25,'base','corner','pos',[-1,-0.125]);
carr={ curve2([-0.38,-0.38],[0.035,-0.0050],[1,1])};
g5=geomcoerce('curve',carr);
clear g5
g6=rect2(0.76,0.04,'base','corner','pos',[-0.38,-0.035]);
g7=rect2('0.76','0.04','base','corner','pos',{'-0.38','-0.005'},'rot','0');
g8=rect2('0.76','0.005','base','corner','pos',{'-0.38','-0.005'},'rot','0');
g9=rect2(0.76,0.01,'base','corner','pos',[-0.38,-0.0050]);
g10=rect2(0.88,0.07,'base','corner','pos',[-0.44,-0.035]);
carr={ curve2([-X_bis1,-0.44],[0,0.035],[1,1]), ...
    curve2([-0.44,-0.44],[0.035,-0.035],[1,1]), ...
    curve2([-0.44,-X_bis1],[-0.035,0],[1,1])};
g11=geomcoerce('solid',carr);
carr={ curve2([X_bis2,0.44],[0,0.035],[1,1]), ...
    curve2([0.44,0.44],[0.035,-0.035],[1,1]), ...
    curve2([0.44,X_bis2],[-0.035,0],[1,1])};
g12=geomcoerce('solid',carr);
carr={ curve2([-0.44,-0.4],[0.035,0.125],[1,1]), ...
    curve2([-0.4,0.4],[0.125,0.125],[1,1]), ...
    curve2([0.4,0.44],[0.125,0.035],[1,1]), ...
    curve2([0.44,-0.44],[0.035,0.035],[1,1])};
g13=geomcoerce('solid',carr);
carr={ curve2([-0.44,-0.4],[-0.035,-0.125],[1,1]), ...
    curve2([-0.4,0.4],[-0.125,-0.125],[1,1]), ...
    curve2([0.4,0.44],[-0.125,-0.035],[1,1]), ...

```

```

    curve2([0.44,-0.44],[-0.035,-0.035],[1,1]);
g14=geomcoerce('solid',carr);
clear s
s.objs={g4,g9,g10,g11,g12,g13,g14};
s.name={'R1','R2','R3','CO1','CO2','CO3','CO4'};
s.tags={'g4','g9','g10','g11','g12','g13','g14'};

fem.draw=struct('s',s);
fem.geom=geomcsg(fem);

% Initialize mesh
fem.mesh=meshinit(fem);

% Refine mesh
fem.mesh=meshrefine(fem, ...
    'mcase',0, ...
    'rmethod','regular');

% (Default values are not included)

% Application mode 1
clear appl
appl.mode.class = 'InPlaneWaves';
appl.module = 'CEM';
appl.assignsuffix = '_we';
clear bnd
bnd.E0 = {{0;0;0},{0;0;0},{0;0;'9120*cos(pi*y/0.25)'},{0;0;0}};
bnd.betaTE = {0,0,0,14.48};
bnd.type = {'E0','cont','E','M'};
bnd.ind = [3,1,1,2,2,2,2,2,2,1,1,2,2,2,2,1,2,1,2,2,2,4];
appl.bnd = bnd;
clear equ
equ.epsilonr = {1,'4.5-j*0.03','1.1-j*0.001','5.5-j*0.25'};
equ.ind = [1,2,2,3,3,4,1,2];
appl.equ = equ;
appl.var = {'nu','915e6'};
fem.appl{1} = appl;
fem.border = 1;

% Multiphysics
fem=multiphysics(fem);

% Extend mesh
fem.xmesh=mesnextend(fem);

% Solve problem
fem.sol=femlin(fem, ...
    'solcomp',{'Ez'}, ...
    'outcomp',{'Ez'});

```

```

% Save current fem structure for restart purposes
fem0=fem;
figure
% Plot solution
postplot(fem, ...
    'tridata',{'normE_we','cont','internal'}, ...
    'trimap','jet(1024)', ...
    'title','Surface: Electric field, norm', ...
    'refine',3, ...
    'axis',[-1.1,1.1,-0.520177777777778,0.520177777777778,-1,1]);
figure
% Plot in cross-section or along domain
postcrossplot(fem,1,[-0.38 0.38;0 0], ...
    'lindata','Ez', ...
    'linstyle','- ', ...
    'title','Electric field, z component', ...
    'axislabel',{'Arc-length','Electric field','z component'}, ...
    'geomnum',[1]);

end
end

```

A.II.3. Etude de l'influence de l'épaisseur du moule sur la distribution du champ électrique dans le composite :

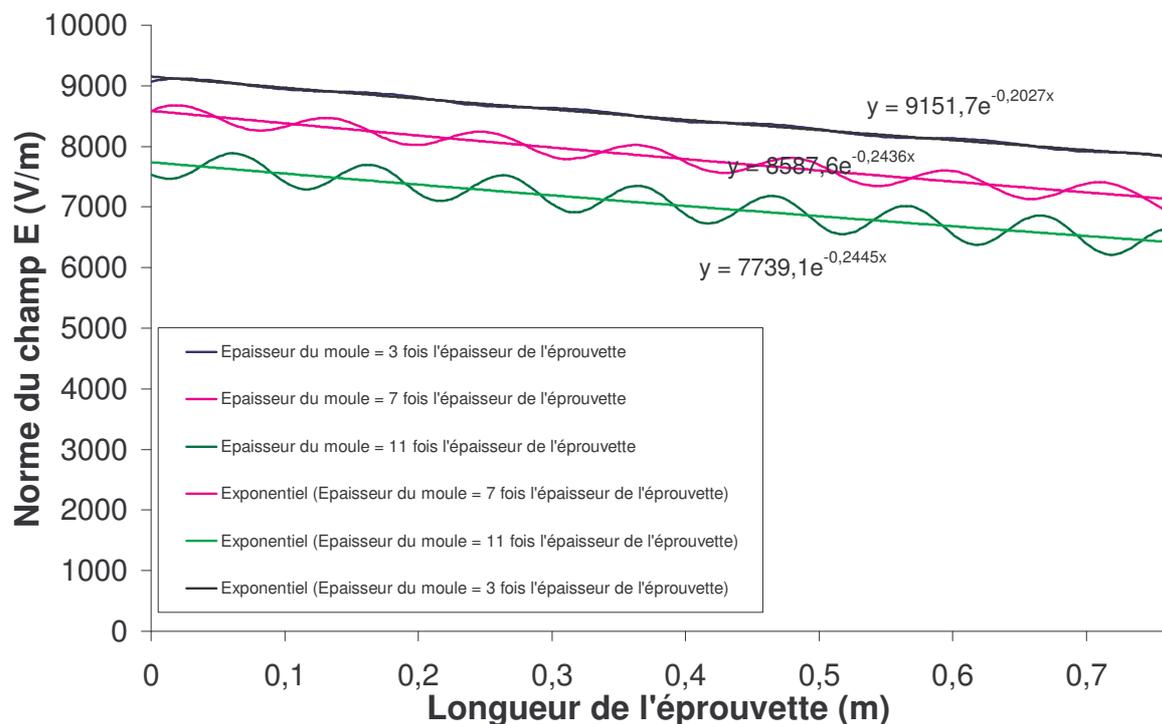


Figure A.II.8: L'évolution de la norme du champ électrique dans une éprouvette de 5 mm en fonction de l'épaisseur du moule, ainsi l'atténuation associée à chaque cas.

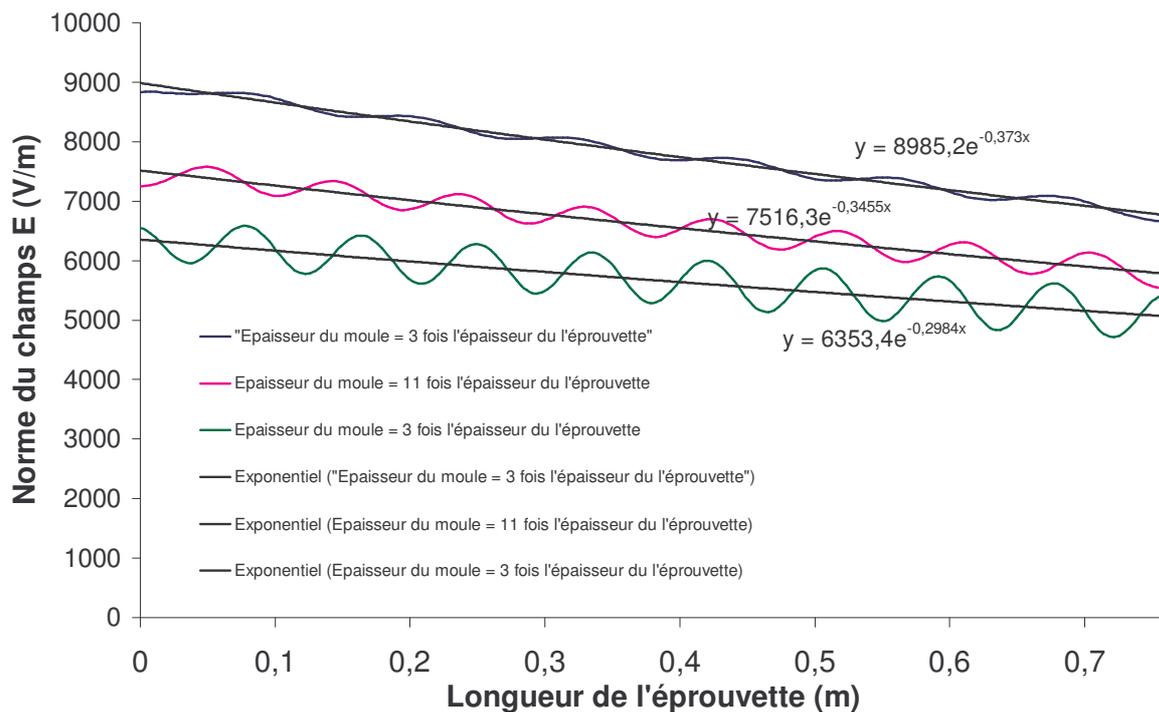


Figure A.II.9: L'évolution de la norme du champ électrique dans une éprouvette de 10 mm en fonction de l'épaisseur du moule, ainsi l'atténuation associée à chaque cas.

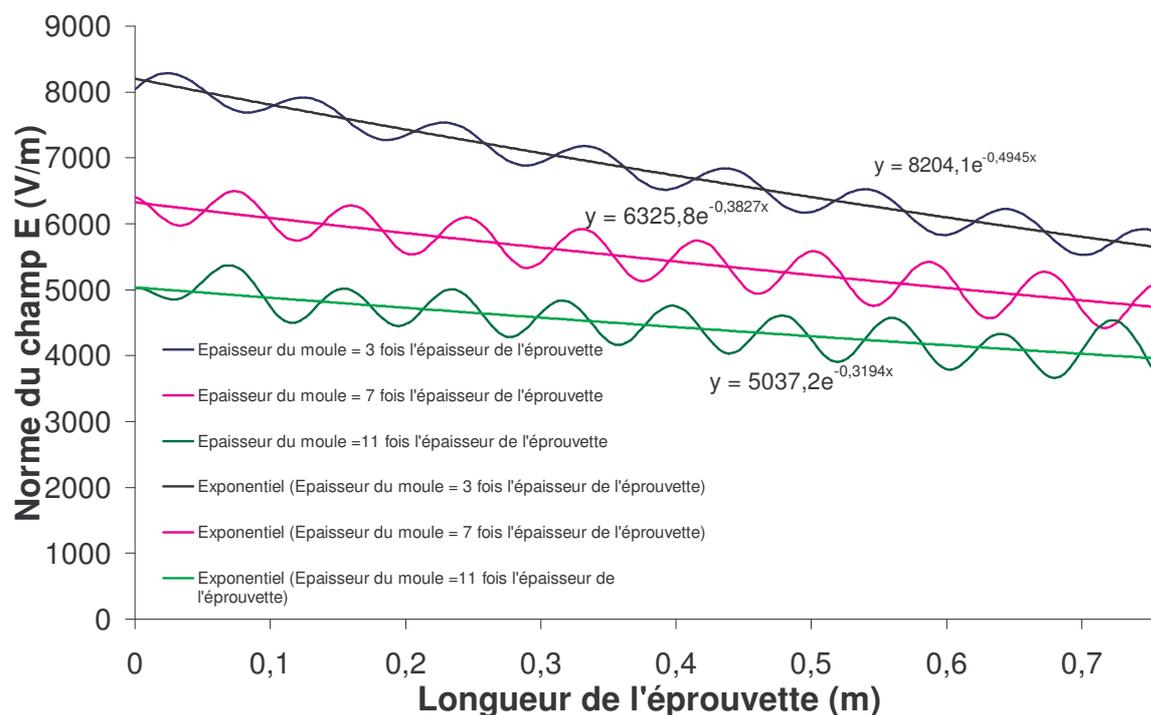


Figure A.II.10: L'évolution de la norme du champ électrique dans une éprouvette de 15 mm en fonction de l'épaisseur du moule, ainsi l'atténuation associée à chaque cas.

A.II.3. Modélisation de longueur d'onde et TOS dans le composite à élaborer

Le programme suivant a été développé pour la modélisation du champ électrique dans un guide d'onde rempli de plusieurs diélectriques, l'un représente le composite

à élaborer. Il permet aussi de sortir la norme du champ électrique le long de l'éprouvette, ainsi que la longueur d'onde et le TOS.

```
% FEMLAB Model M-file
% Generated by FEMLAB 3.1 (FEMLAB 3.1.0.157, $Date: 2005/11/12 17:39:54 $)

fclear fem

% Femlab version
clear vrsn
vrsn.name = 'FEMLAB 3.1';
vrsn.ext = '';
vrsn.major = 0;
vrsn.build = 157;
vrsn.rcs = '$Name: $';
vrsn.date = '$Date: 2004/11/12 07:39:54 $';
fem.version = vrsn;

% Geometry
g1=rect2(2,0.4,'base','corner','pos',[-1,-0.2]);
g2=rect2(2,0.325,'base','corner','pos',[-1,-0.2]);
g3=rect2(2,0.25,'base','corner','pos',[-1,-0.125]);
carr={curve2([-0.94,-0.15],[0,0.085],[1,1]), ...
      curve2([-0.15,0.15],[0.085,0.085],[1,1]), ...
      curve2([0.15,0.94],[0.085,0],[1,1]), ...
      curve2([0.94,0.15],[0,-0.085],[1,1]), ...
      curve2([0.15,-0.15],[-0.085,-0.085],[1,1]), ...
      curve2([-0.15,-0.94],[-0.085,0],[1,1])};
g4=geomcoerce('solid',carr);
carr={curve2([-0.075,-0.15],[0.125,0.085],[1,1]), ...
      curve2([-0.15,0.15],[0.085,0.085],[1,1]), ...
      curve2([0.15,0.075],[0.085,0.125],[1,1]), ...
      curve2([0.075,-0.075],[0.125,0.125],[1,1])};
g5=geomcoerce('solid',carr);
carr={curve2([-0.075,-0.15],[-0.125,-0.085],[1,1]), ...
      curve2([-0.15,0.15],[-0.085,-0.085],[1,1]), ...
      curve2([0.15,0.075],[-0.085,-0.125],[1,1]), ...
      curve2([0.075,-0.075],[-0.125,-0.125],[1,1])};
g6=geomcoerce('solid',carr);
g7=rect2(0.76,0.015,'base','corner','pos',[0.095,-0.0075]);
clear s
s.objs={g3,g4,g5,g6,g7};
s.name={'R1','CO1','CO2','CO3','R2'};
s.tags={'g3','g4','g5','g6','g7'};

fem.draw=struct('s',s);
fem.geom=geomcsg(fem);

% Constants
fem.const={'OMEGA','2*pi*915e6','BETA','sqrt(3.5416751268e-018*OMEGA^2*pi-(4*pi)^2)'};

% Initialize mesh
fem.mesh=meshinit(fem);

% Refine mesh
fem.mesh=meshrefine(fem, ...
                    'mcase',0, ...
                    'rmethod','regular');

% (Default values are not included)
```

```

% Application mode 1
clear appl
appl.mode.class = 'InPlaneWaves';
appl.module = 'CEM';
appl.assignsuffix = '_we';
clear bnd
bnd.E0 = {{0;0;0},{0;0;0},{0;0;'9120*cos(pi*y/0.25)'},{0;0;0}};
bnd.betaTE = {0,0,0,'BETA'};
bnd.type = {'E0','cont','E','M'};
bnd.ind = [3,1,1,2,2,2,2,2,1,1,2,1,2,1,2,2,2,2,2,4];
appl.bnd = bnd;
clear equ
equ.epsilonr = {1,'3.94-j*0.03','1.1-j*0.001','5.5-j*0.25'};
equ.ind = [1,2,3,3,1,4];
appl.equ = equ;
appl.var = {'nu','915e6'};
fem.appl{1} = appl;
fem.border = 1;

% Multiphysics
fem=multiphysics(fem);

% Extend mesh
fem.xmesh=meshextend(fem);

% Solve problem
fem.sol=femlin(fem, ...
    'solcomp',{'Ez'}, ...
    'outcomp',{'Ez'});

% Save current fem structure for restart purposes
fem0=fem;

% Plot solution
postplot(fem, ...
    'tridata',{'Ez','cont','internal'}, ...
    'trimap','jet(1024)', ...
    'title','Surface: Champ électrique, composante z', ...
    'refine',2, ...
    'axis',[-1.1,1.1,-0.520177777777778,0.520177777777778,-1,1]);

figure
% Plot in cross-section or along domain
postcrossplot(fem,1,[0.095 0.855;0 0], ...
    'lindata','normE_we', ...
    'linstyle','- ', ...
    'title','Champ électrique, composante z', ...
    'axislabel',{'Arc-length','Champ électrique',' composante z'}, ...
    'geomnum',[1]);

% CALCUL DE TOS

k=1;
% extraction des valeurs de Ez
for x=0.095:0.002:0.855;
    y(k)= x;
    normE= postinterp(fem,'normE_we',[x;0]);
    MZ(k)=normE;
    k=k+1;

```

```

end
% CALCUL DE LAMDA_G
j=1;
n=k-1;
for k=1:1:n-2;

    pont(k) = (MZ(k+1)-MZ(k))/0.002;
    pont(k+1)= (MZ(k+2)-MZ(k+1))/0.002;

    if (pont(k)*pont(k+1))<0;

        b(j)= MZ(k); % les valeurs des Emax et des Emin
        a(j)= y(k); % les coordonneés des Emax et des Emin
        j=j+1;
    end

end

end
m =j-1;
M=m-1;
w=1;
% calcul de Lamda dans l'éprouvette;
for j=1:2:M-2;
    dif(j)= a(j+2)-a(j);
    Lamda(w)= dif(j);
    w=w+1;
end
Lamda
l=1;
% Le taux d'onde stationnaire
for j=1:2:M;
    Rap(j)= b(j)/b(j+1);
    TOS(l)= Rap(j);
    l=l+1;
end
TOS.

```

C.1. Dispositif des bandes :

Le tableau suivant représente les nombres des bandes disposées de la manière présentée sur la figure III.7, (chapitre III) pour obtenir une éprouvette de largeur de 100 mm, de 760mm de longueur et d'un épaisseur donnée.

Épaisseur	Nombres des bandes
5 mm	12
10 mm	23
15 mm	35

Tableau B.1: Le nombre de la bandes en fonction de l'épaisseur nominal du composite

B.2. Le choix de l'épaisseur du moule :

Le tableau B.2 représente les épaisseurs des éprouvettes réalisées dans notre Laboratoire, ainsi que les épaisseurs des moules diélectriques et la puissance utilisées.

dimensions	1000w	1100w	1250w	1500w	2500w
5x120x760	Remplissage: PE marron entourant l'éprouvette	Remplissage : 3e Remplissage: 7e Remplissage : PE marron entourant l'éprouvette Remplissage : Non uniforme			
5x100x760			Remplissage : 7e		
15x120x760		Remplissage: Non uniforme	Remplissage : 7e	Remplissage : 7e	Remplissage : 7
15x100x760			Remplissage : 7e		

Tableau B.2 : Tableau récapitulatif des travaux du Laboratoire

e: représente l'épaisseur du composite.

B.3. Résultats d'étalonnage des 4 sondes :

Les figures B.1 jusqu'à B.4 représentent les températures relevées en degré Celsius (°C) à partir des valeurs en millivolts (mV) des signaux électriques provenant des photodiodes pour chaque sonde.

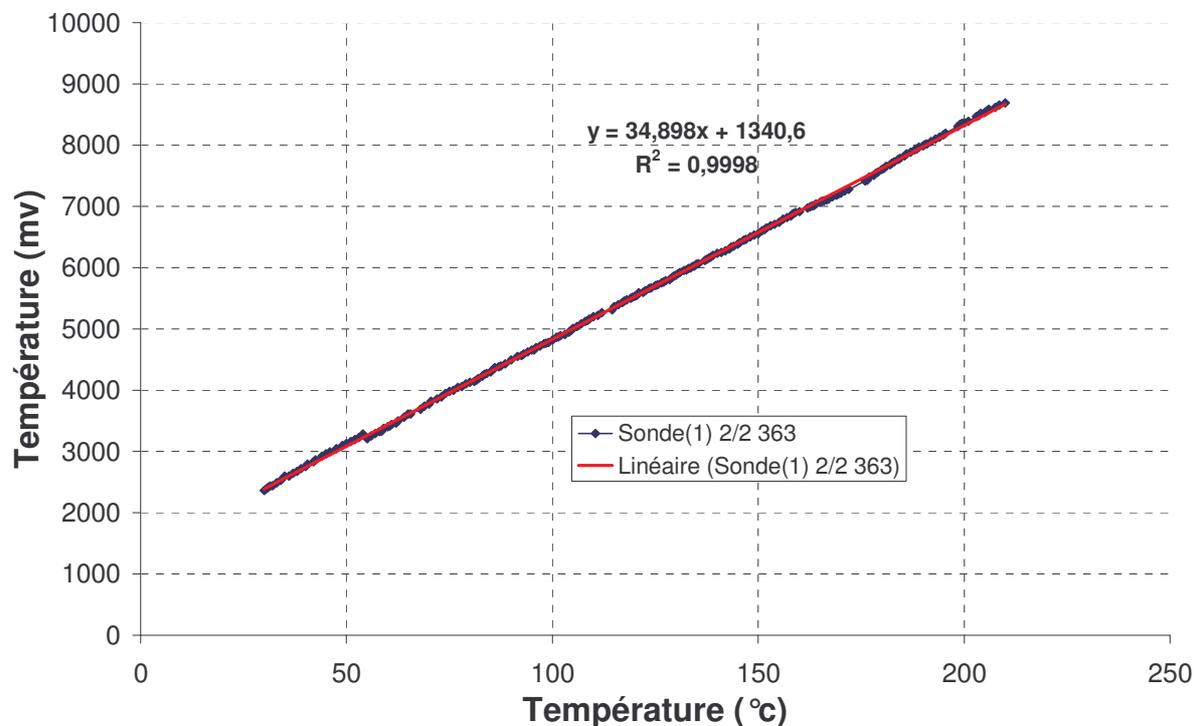


Figure B.1 : La courbe d'étalonnage de la sonde 1

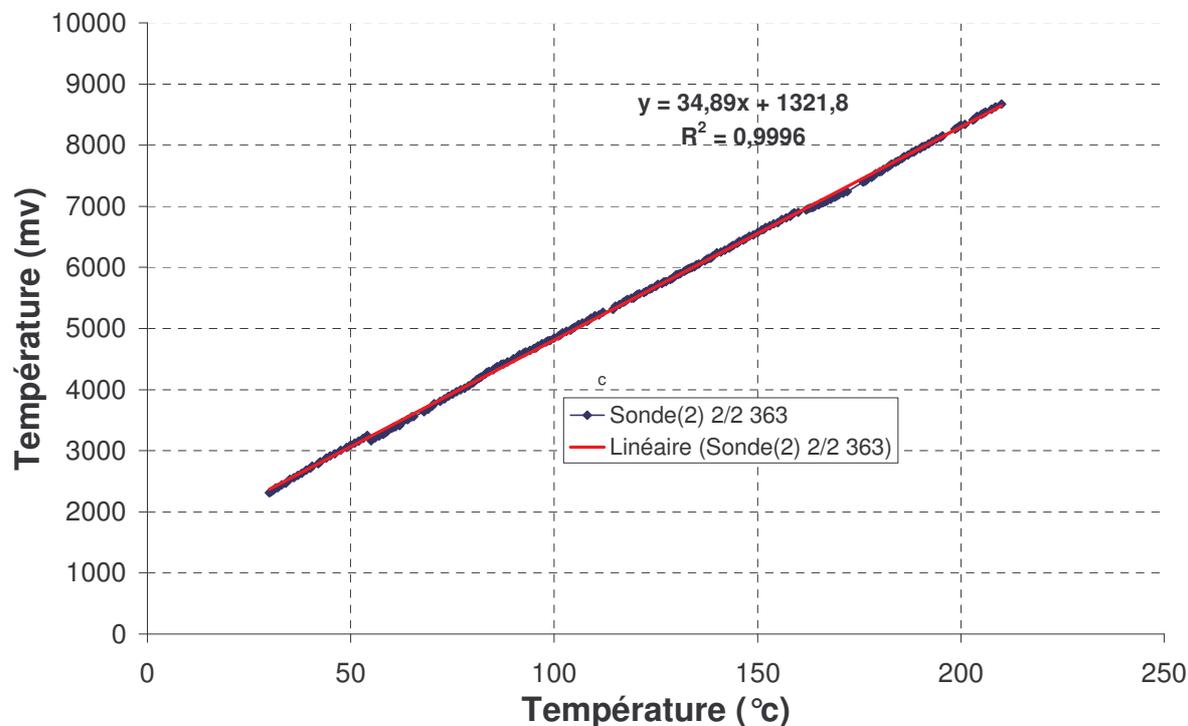


Figure B.2 : La courbe d'étalonnage de la sonde 2

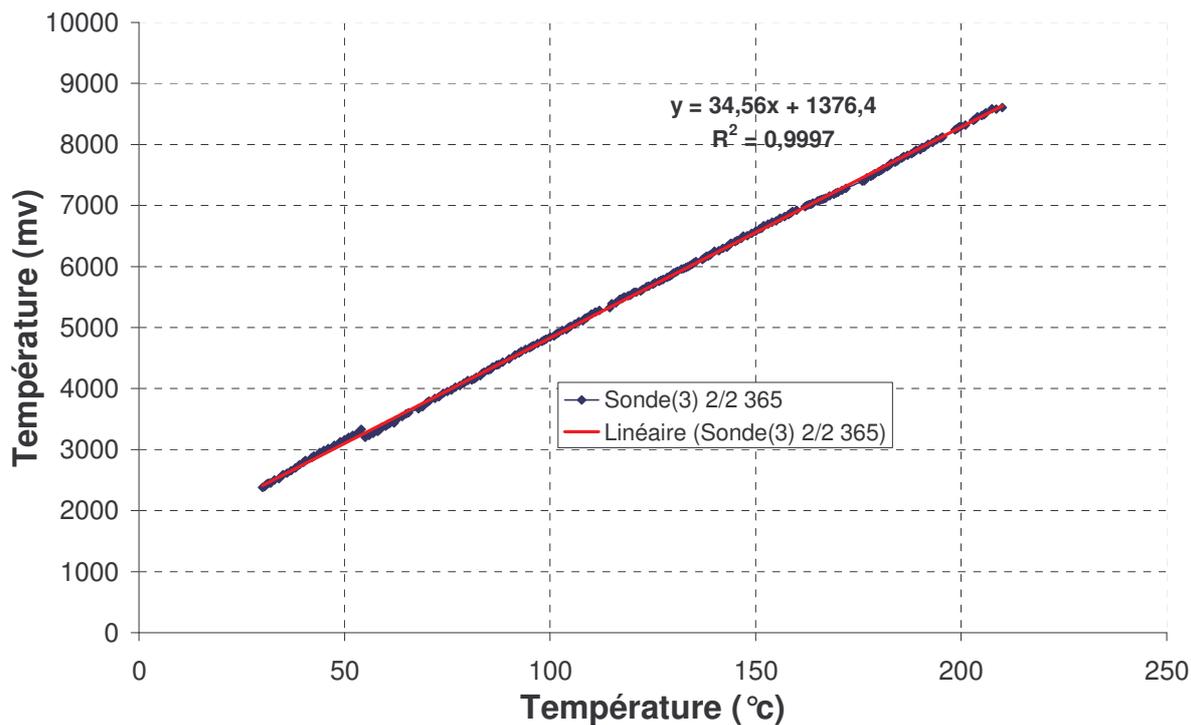


Figure B.3 : La courbe d'étalonnage de la sonde 3

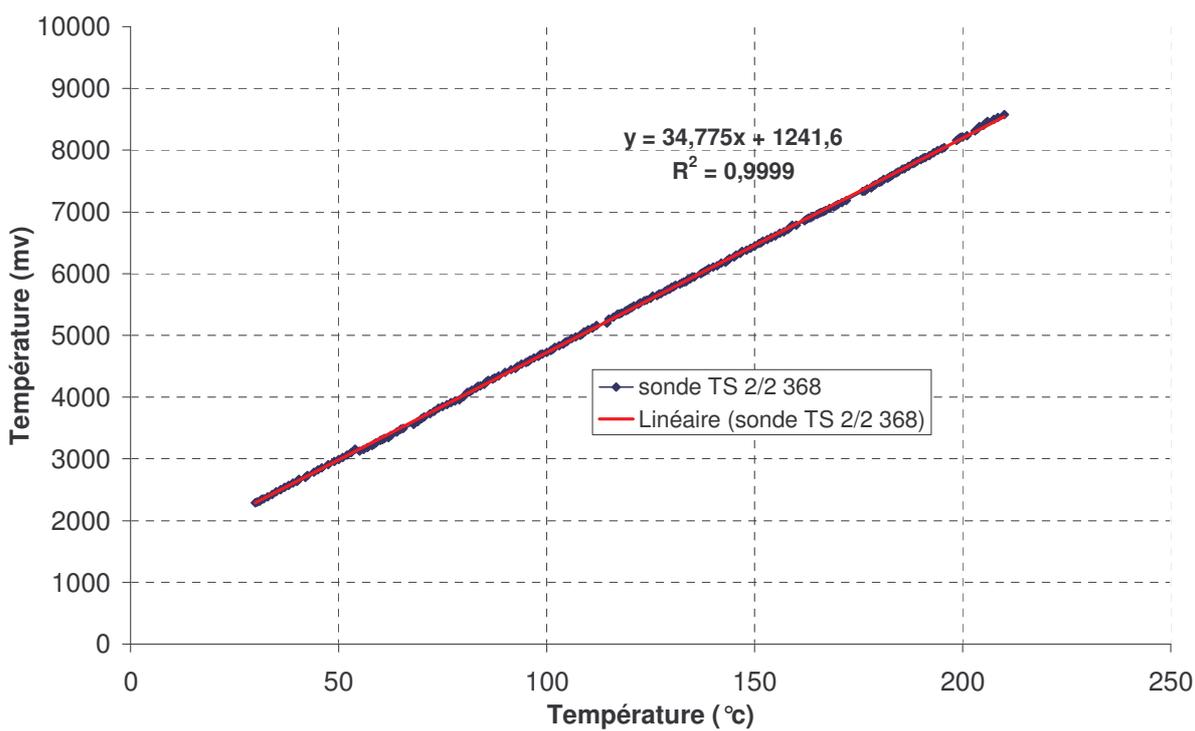


Figure B.4 : La courbe d'étalonnage de la sonde 4

B.4. Les constantes de conversion

N° de sonde	Notation sur la sonde	a	b	R ²
Sonde 1	TS 2/2 363	34.898	1340.6	0.9998
Sonde 2	TS 2/2 364	34.89	1321.8	0.9996
Sonde 3	TS 2/2 365	34.56	1376.4	0.9997
Sonde 4	TS 2/2 368	34.775	1241.6	0.9999

Tableau B.3 : Les constantes de conversion de millivolts en °C

a, b ; sont des constants qui représente respectivement les pentes et les ordonnées des figures B.1-B.4.

R² : coefficient de détermination

C. Les résultats des expériences

Afin d'observer la reproductibilité du phénomène de l'effet diélectrique d'inversion de l'atténuation des ondes électromagnétiques, pour chaque moule sans atténuation (figures III.16, III.22) nous avons réalisé deux expériences on élaborant des éprouvette de 15 mm d'épaisseur. Les résultats des secondes expériences sont représentés par les figures A.III.1 et A.III.2.

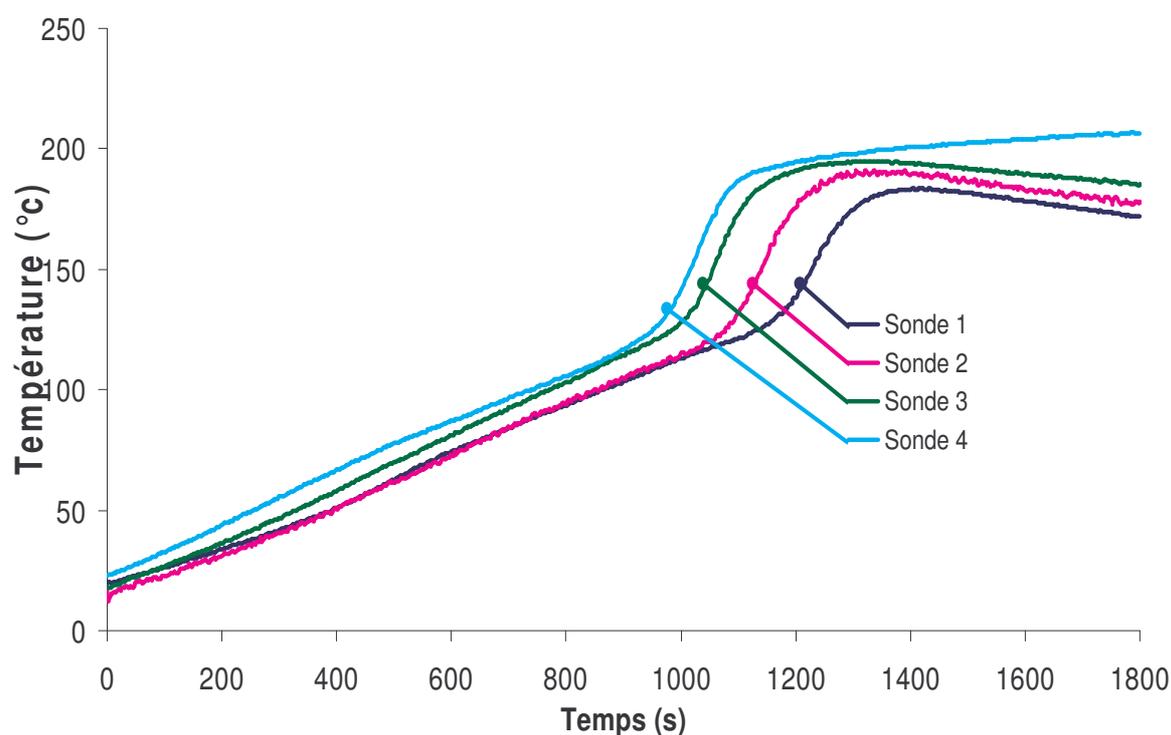


Figure B.III.1 : Evolution des températures le long de la deuxième éprouvette obtenue avec le premier moule sans atténuation (EDIA)

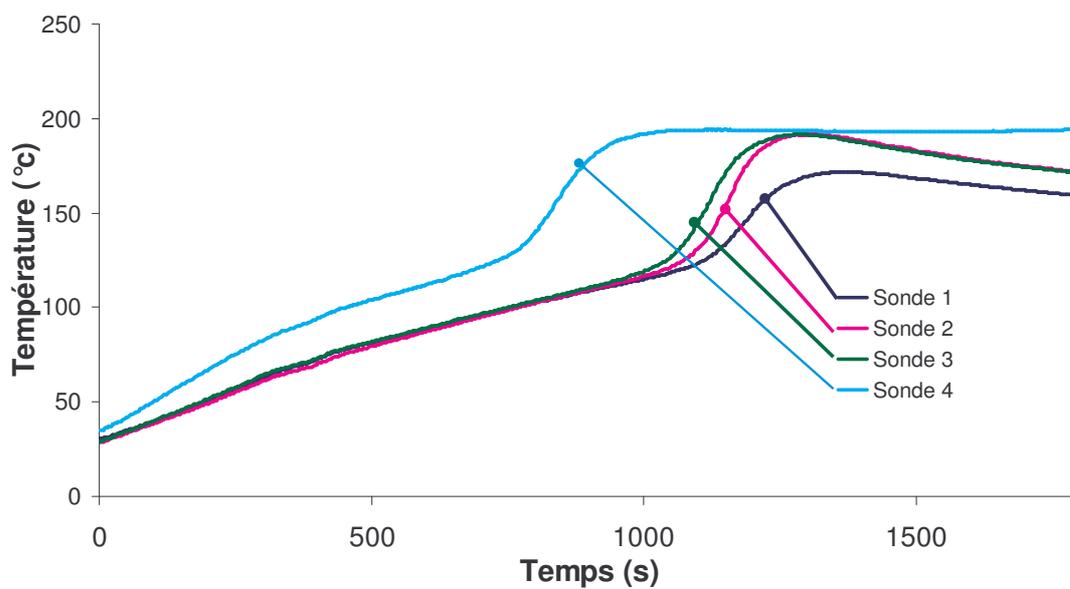


Figure B.III.2 : Evolution des températures le long de la deuxième éprouvette obtenue avec le deuxième moule sans atténuation (EDIA)

TRAITEMENT THERMIQUE UNIFORME DES COMPOSITES NON METALLIQUES AU MOYEN DE L'EFFET DIELECTRIQUE DE L'INVERSION DE L'ATTENUATION DES ONDES ELECTROMAGNETIQUES

Résumé: Le travail de ma thèse s'inscrit dans le contexte général de l'amélioration des procédés de traitement thermique des pièces massives en composites à matrice thermoset. Parmi les techniques utilisées, le chauffage par micro-onde est sûrement l'une des plus séduisantes. Cependant le traitement homogène de pièces de dimensions importantes n'est pas sans poser des problèmes. Ces problèmes sont liés à l'existence possible d'ondes stationnaires, et à l'atténuation des ondes électromagnétique. Ce travail a pour but l'amélioration de la technique par la mise au point d'une optimisation des moules permettant d'atteindre cette meilleure homogénéité grâce à l'effet diélectrique d'inversion de l'atténuation des ondes électromagnétiques.

Le sujet traité nécessite une approche multidisciplinaire puisque traitant de la création de sources thermiques dont il faut maîtriser la distribution spatiale et temporelle, sources créées par un champ électromagnétique et régissant la cinétique des réactions chimiques. La solution proposée nécessite donc de maîtriser les trois domaines thermique, électromagnétique et chimique qui interviennent ici d'une façon fortement couplée.

Mots-clés : *traitement thermique uniforme, modélisation électromagnétique, thermique et chimique, composite verre-époxy, caractérisations diélectriques, caractérisations thermiques*

UNIFORM HEAT TREATMENT OF THE NON METAL COMPOSITES BY MEANS OF THE DIELECTRIC EFFECT OF ATTENUATION OF ELECTROMAGNETIC WAVES

Abstract: The objective of my thesis is the improvement of the heat treatment processes of the massive parts in composite materials with a thermoset matrix. From all the techniques available, heating by microwave is the technique which is the most attractive and therefore it was the one implemented. However the homogeneous treatment of parts of significant size by this technique poses certain problems. These problems are related to the possible existence of standing waves and to the attenuation of electromagnetic waves. The objective of this work is the improvement of this technique by optimizing the mold geometry and dimensions which makes it possible to reach a better homogeneity thanks to the dielectric effect of attenuation inversion of electromagnetic waves.

The present subject requires a multidisciplinary approach, because it treats the creation of thermal sources. These sources are created by an electromagnetic field and that governs the chemical reactions kinetics. The solution suggested thus requires controlling the three areas, thermal, electromagnetic and chemical which happen here in a strongly coupled way.

Keywords: *Uniform heat treatment, electromagnetic and thermal and chemical modelling, glass-epoxy, dielectric characterisations, thermal characterisations.*