

# **ETUDE DE L'INTERACTION LASER MATIÈRE DANS LE CAS DES POLYMÈRES SEMI-TRANSPARENTS: APPLICATION AU SOUDAGE DES POLYMÈRES**

Teză destinată obținerii  
titlului științific de doctor la  
Universitatea "Politehnica" din Timișoara  
în domeniul INGINERIE INDUSTRIALĂ  
de către

**ing. MARIANA ILIE**

Conducător științific:      prof.dr.ing. Alexandru Nichici  
   prof.dr.ing. Simone Mattei  
Referenți științifici:      prof.dr. Nicolae Avram  
   prof.dr.ing. Livius Miloș  
   prof.dr.ing. Dorin Dehelean

Data susținerii tezei: 21.04.2007

Seriile Teze de doctorat ale UPT sunt:

- |                        |   |
|------------------------|---|
| 1. Automatică          | 7. Inginerie Electronică și Telecomunicații |
| 2. Chimie              | 8. Inginerie Industrială                    |
| 3. Energetică          | 9. Inginerie Mecanică                       |
| 4. Ingineria Chimică   | 10. Știința Calculatoarelor                 |
| 5. Inginerie Civilă    | 11. Știința și Ingineria Materialelor       |
| 6. Inginerie Electrică |   |

Universitatea „Politehnica” din Timișoara a inițiat seriile de mai sus în scopul diseminării expertizei, cunoștințelor și rezultatelor cercetărilor întreprinse în cadrul școlii doctorale a universității. Seriile conțin, potrivit H.B.Ex.S Nr. 14 / 14.07.2006, tezele de doctorat susținute în universitate începând cu 1 octombrie 2006.

Copyright © Editura Politehnica – Timișoara, 2007

Această publicație este supusă prevederilor legii dreptului de autor. Multiplicarea acestei publicații, în mod integral sau în parte, traducerea, tipărirea, reutilizarea ilustrațiilor, expunerea, radiodifuzarea, reproducerea pe microfilme sau în orice altă formă este permisă numai cu respectarea prevederilor Legii române a dreptului de autor în vigoare și permisiunea pentru utilizare obținută în scris din partea Universității „Politehnica” din Timișoara. Toate încălcările acestor drepturi vor fi penalizate potrivit Legii române a drepturilor de autor.

România, 300159 Timișoara, Bd. Republicii 9,  
tel. 0256 403823, fax. 0256 403221  
e-mail: editura@edipol.upt.ro

## REMERCIEMENTS

---

Ce doctorat a fait l'objet d'une convention de co-tutelle entre l'Université de Bourgogne, France et Universitatea « Politehnica » Timișoara, Roumanie. Mes remerciements s'adressent dans le même temps aux directeurs de thèse des deux parties :

Je remercie Mme Simone MATTEÏ, Professeur à l'Université de Bourgogne pour m'avoir proposé un sujet qui inclut tant d'aspects multidisciplinaires et pour l'honneur qu'elle m'a fait en dirigeant cette thèse. Je la remercie vivement pour le soutien et la confiance qu'elle m'a témoignée au cours de ce travail.

J'adresse aussi mes remerciements à M. le Professeur Alexandru NICHICI, directeur de thèse côté Roumanie, pour ses conseils professionnels et sa patience qui m'ont aidée tout au long de la thèse. Qu'il trouve ici l'expression de ma profonde gratitude.

Je tiens à remercier à Jean-Christophe KNEIP, co-directeur de la thèse, pour son support, sa disponibilité constante dont j'ai pu parfois abuser et surtout sa bonne humeur.

Je désire aussi exprimer ma gratitude à MM. Claude ROZE et Thierry GIRASOLE du CORIA, Rouen pour m'avoir introduit dans le monde complexe de la diffusion optique.

Je voudrais exprimer mes remerciements à Mme Evelyn GEHIN et M. Didier DELAUNAY qui ont accepté de juger mon travail de doctorat. Leurs conseils et critiques avisés m'ont permis d'élargir ma vision scientifique et d'améliorer le travail finalement présenté dans ce manuscrit.

Je tiens particulièrement à remercier le responsable de l'équipe LTm (Laser et Traitement des matériaux), M. Dominique GREVEY, Professeur à l'Université de Bourgogne, pour m'avoir accueilli au sein du laboratoire et me donner l'opportunité de travailler dans une équipe d'une grande expérience scientifique.

Je remercie M. Eugen CICALĂ, Assistant Professeur de l'Université « Politehnica » de Timisoara, pour m'avoir introduit dans la recherche scientifique ainsi que pour m'avoir initiée dans la méthodologie des plans d'expériences.

A Virginie DURAND et Hervey BORDAIS du ICM Pole Plastique, je les remercie pour leur intérêt scientifique et leur disponibilité.

J'ai consacré la moitié de mon temps au sein de l'IUT Chalon sur Saône et je voudrais remercier l'ensemble du personnel pour l'accueil chaleureux et agréable.

Mille mercis à François LEMOINE pour sa disponibilité constante, son esprit combatif avec les fournisseurs et son intérêt scientifique. A Laurent HUREZ, un grand merci pour sa gentillesse. Grâce à sa passion cinéaste j'ai découvert le vrai film français. Aussi, un grand merci à Eddy BARILE, le visage calme et souriant, qui m'a permis de rester en liaison avec la famille.

Enfin, je voudrais également remercier les collègues du département G.D.D.G.C, de l'Université « Politehnica » de Timisoara pour leur soutien qui m'a aidé à dépasser les moments difficiles survenus pendant la deuxième année de la thèse.

A Virgil

Ilie, Mariana

**Etude de l'interaction laser matière dans le cas des polymères semi-transparents: Application au soudage des polymères**

Teze de doctorat ale UPT, Seria 8, Nr. 2, Editura Politehnica, 2007, 142 pagini, 99 figuri, 19 tabele.

ISSN: 1842-8967

ISBN : 978-973-625-499-9

Mots clé: soudage, laser, polymères, thermoplastiques, diffusion, modélisation optique, modélisation thermique

**Résumé**

L'objectif de cette recherche doctorale a été d'estimer la soudabilité par laser des matériaux polymériques en fonction de leurs propriétés thermo-physiques.

La première tâche, dans la recherche de cet objectif, a été de quantifier l'atténuation de la radiation dans les polymères semi-transparents en établissant la corrélation entre les propriétés optiques des inclusions et de la matrice du polymère, et la distribution spatiale de l'intensité laser les traversant, c'est à dire, en effectuant une modélisation des phénomènes optiques qui permet d'estimer la forme de la distribution du faisceau laser à l'interface des deux matériaux. Cette modélisation a permis aussi de découpler les facteurs influents et d'explorer leurs effets sur l'atténuation et l'élargissement du faisceau laser à travers un milieu semi transparent. L'étape suivante consiste à réaliser le couplage entre le modèle optique et le modèle thermique, fondé sur l'équation de la diffusion de la chaleur, afin de déterminer les champs de températures dans le volume des composants.

Cette étude constitue une ouverture vers l'approche scientifique des processus de soudage par laser des thermoplastiques en offrant des méthodes et des techniques pour l'optimisation globale de ceux-ci.

# TABLE DE MATIERE

---

<b>Remerciements</b> .....	Error! Bookmark not defined.
<b>Table de matière</b> .....	<b>5</b>
<b>Notations</b> .....	<b>7</b>
<b>Figures</b> .....	<b>9</b>
<b>Introduction</b> .....	<b>14</b>
<b>1. Les polymères</b> .....	<b>17</b>
1.1. Généralités sur les polymères thermoplastiques.....	17
1.1.1. Les polymères amorphes.....	18
1.1.2. Les polymères semi-cristallins.....	18
1.1.3. Les additifs.....	20
1.1.4. Propriétés optiques des polymères.....	20
1.2. Contexte industriel: état de l'art sur le soudage des polymères.....	22
1.3. Soudage laser des polymères.....	27
1.3.1. Les matériaux.....	27
1.3.2. Les colorants.....	28
1.3.3. Les lasers utilisés.....	29
1.3.4. Les configurations.....	30
1.4. Conclusions.....	34
<b>2. L'interaction laser - polymères semi-transparents - le phénomène de diffusion</b> .....	<b>35</b>
2.1. Aspects théoriques.....	35
2.1.1. Diffusion de la lumière sur une particule : la théorie de Mie.....	36
2.1.2. La méthode de Monte Carlo.....	40
2.1.3. Les régimes de diffusion (simple, multiple).....	40
2.2. Modélisation numérique de la diffusion dans les milieux hétérogènes.....	43
2.2.1. Les hypothèses.....	43
2.2.2. Détermination des paramètres propres à la nature de la particule ..	45
2.2.3. Calcul statistique pour un ensemble de diffuseurs.....	45
2.2.4. Limite de validité du modèle.....	67
2.3. Validation du calcul de l'intensité diffusée par des mesures.....	68
2.3.1. Matériaux utilisés.....	68
2.3.2. Dispositif expérimental.....	70
2.3.3. Comparaison théorie - expérience.....	73
2.4. Etude de sensibilité des facteurs influençant le phénomène de diffusion....	75
2.5. Conclusions.....	86
<b>3. L'interaction laser – polymères opaques</b> .....	<b>87</b>
3.1. Aspects théoriques.....	87
3.1.1. Modélisation thermique.....	87
3.1.2. Résultats numériques.....	91
3.2. Aspects expérimentaux.....	97
3.2.1. Caractéristiques thermiques des matériaux utilisés.....	97
3.2.2. Le dispositif expérimental.....	99
3.2.3. Mesures des températures de surface par thermographie infrarouge.....	100

---

3.3. Comparaison expérience - théorie.....	101
3.4. Assemblage de deux polymères non diffusants avec déplacement du faisceau .....	103
3.4.1. Montage expérimental et caractéristiques des matériaux choisis ..	103
3.4.2. Comparaison mesures - modèle.....	103
3.5. Conclusion de l'étude des polymères absorbants.....	108
<b>4. Application a l'étude d'un assemblage d'un polymere diffusants et d'un polymere absorbant .....</b>	<b>109</b>
4.1. Couplage modèle optique – modèle thermique.....	109
4.2. Validation du modèle par des mesures.....	110
4.3. Détermination d'un modèle empirique pour l'évolution de l'atténuation induite par diffusion dans le domaine exploré .....	113
4.4. La méthode inverse utilisée.....	116
4.5. Conclusions.....	122
<b>5. Conclusions générales .....</b>	<b>124</b>
<b>Références.....</b>	<b>126</b>
<b>Publications .....</b>	<b>132</b>
<b>Annexes.....</b>	<b>133</b>

## NOTATIONS

---

<b>A</b>		- paramètre
<b><math>b_{i,j}</math></b>		- coefficients
<b><math>C_{abs}</math></b>	$[m^2]$	- section transversale d'absorption
<b><math>C_{sca}</math></b>	$[m^2]$	- section transversale de diffusion
<b><math>C_{ext}</math></b>	$[m^2]$	- section transversale d'extinction
<b>c</b>	$[Jkg^{-1} K^{-1}]$	- capacité thermique massique
<b>D</b>	$[-]$	- fonction de répartition
<b>d</b>	$[m]$	- diamètre particule
<b>DW</b>		- test Durbin Watson
<b>E</b>	$[Jm^{-2}]$	- densité d'énergie
<b><math>E_l</math></b>	$[Jm^{-1}]$	- énergie linéaire
<b>e</b>		- erreur
<b>g</b>		- facteur d'anisotropie
<b><math>f_v</math></b>	$[-]$	- fraction volumique
<b>F</b>	$[Jm^{-2}]$	- fluence laser
<b>h</b>	$[m]$	- épaisseur du matériau fondu
<b>h</b>	$[Wm^{-2}K^{-1}]$	- coefficient d'échange de chaleur
<b>I</b>	$[Wm^{-2}]$	- intensité
<b>i, j, k</b>		- verseurs
<b><math>k_{sca}</math></b>	$[m^{-1}]$	- coefficient de diffusion
<b>k</b>	$[Wm^{-1}K^{-1}]$	- conductivité thermique
<b><math>l_{sca}, l_{abs}, l_{ext}</math></b>	$[m]$	- parcours libre moyen de diffusion, d'absorption et d'extinction
<b>L</b>	$[m]$	- épaisseur
<b>M</b>	$[g mol^{-1}]$	- masse moléculaire
<b>N</b>	$[m^{-3}]$	- nombre de particules
	$[-]$	- nombre de photons
<b>n</b>	$[-]$	- indice de réfraction
	$[-]$	- nombre d'observation

---

		- verseur normal à la surface
		- nombre de molécules de degré de polymérisation $i$
<b>P</b>	[W]	- puissance laser
	[m <sup>-1</sup> ]	- densité de probabilité
<b>p</b>	[-]	- fonction de phase
	[-]	- nombre de variable indépendante
	[W m <sup>-2</sup> ]	- densité de puissance
	[N m <sup>-2</sup> ]	- pression
<b>Q</b>	[-]	- efficacité
<b>q<sub>v</sub></b>	[W.m <sup>-3</sup> ]	- source thermique
<b>r</b>	[m]	- rayon de la particule
	[m]	- rayon faisceau laser à 1/e, 1/e <sup>2</sup>
<b>r<sub>t</sub>, r<sub>i</sub></b>	[m]	- rayon faisceau transmis, rayon faisceau incident
<b>R</b>	[-]	- facteur de réflexion
<b>R<sup>2</sup></b>	[-]	- coefficient de corrélation
<b>RMSE</b>		- racine de l'erreur quadratique moyenne
<b>rnd</b>	[-]	- nombre aléatoire
<b>S</b>	[-]	- paramètres de Stokes
<b>T</b>	[-]	- transmission
<b>T<sub>v</sub>, T<sub>f</sub>, T<sub>ec</sub>, T</b>	[K][°C]	- températures de transition vitreuse, de fusion, d'écoulement, température
<b>t</b>	[s]	- temps
<b>u, v</b>		- coefficients
<b>W</b>	[J]	- énergie
<b>x</b>		- paramètre de taille
<b>x, y, z</b>		- coordonnées cartésiennes
$\hat{y}$		- valeurs prédites
<b>y</b>		- valeurs mesurées

## FIGURES

---

Figure 1.1 Masse moléculaire en nombre et en poids.....	17
Figure 1.2 Etats physiques des polymères amorphes en fonction de la température et de la masse moléculaire (I- oligomère; II- polymère; III- haut polymère)[Vasiliu 86] .....	18
Figure 1.3 Etats physiques des polymères semi-cristallins en fonction de la température et de la masse moléculaire (I- oligomère; II- polymère; III- haut polymère)[Vasiliu 86] .....	19
Figure 1.4 Structures cristallines : lamelles (a), (b) sphérolites (c) (d) .....	19
Figure 1.5 Dimensions comparées des colorants, des pigments et des charges [Defosse 91].....	20
Figure 1.6 Facteur de transmission en fonction de la longueur d'onde du laser [Kagan 01] .....	21
Figure 1.7 L'influence de pigments sur les propriétés optiques de polymères [Kagan 02].....	22
Figure 1.8: L'influence de fibres de verre et charges minérales sur la transmission de polymères [Kagan 00] .....	22
Figure 1.9 : Influence de colorants sur la transmission pour deux longueurs d'onde (Nd-YAG et diode) dans le cas d'une matrice en PA [Kagan 01].....	28
Figure 1.10: Etapes du soudage .....	30
Figure 1.11: Courbe caractéristique – résistance en fonction de l'énergie linéaire [Russek 01].....	31
Figure 1.12: Sections transversales du cordon pour différentes valeurs de l'énergie linéaire [Russek 01] .....	32
Figure 1.13: Influence de la concentration de l'absorbant sur la symétrie du cordon (polymère - PP, I = 2,8 Wmm <sup>-2</sup> , t = 4s) [Abed 01] .....	33
Figure 1.14: Evolution du rapport substrat transparent fondu, substrat absorbant fondu en fonction de la concentration de l'absorbant [Abed 01].....	33
Figure 1.15: Le soudage bord a bord [Kagan 02] .....	34
Figure 2.1: Les théories de diffusion et leur domaine de validité .....	36
Figure 2.2: Diagramme de diffusion dans le domaine Rayleigh .....	39
Figure 2.3: L'influence de la taille de particule (a) et de l'orientation (b) [Bohren 96] .....	39
Figure 2.4: Diffusion multiple dans un milieu hétérogène [Mishchenko 04].....	41
Figure 2.5: Graphe montrant les régimes de diffusion dépendante et indépendante [Cartigny'86] .....	42
Figure 2.6: Lois et paramètres associés à l'interaction radiation électromagnétique – milieu hétérogène .....	43
Figure 2.7 Le système considéré .....	44
Figure 2.8 L'organigramme pour le code de calcul .....	45
Figure 2.9: Densité d'énergie normalisée dans un faisceau gaussien .....	46
Figure 2.10 : Distribution de la densité de photons normalisée dans un faisceau gaussien .....	47
Figure 2.11 : La densité de probabilité.....	47
Figure 2.12: La fonction de répartition.....	48

Figure 2.13: Densité d'énergie normalisée dans un faisceau collimaté avec un profil .....	49
Figure 2.14: Distribution de la densité de photons normalisée dans un faisceau trapézoïdal .....	49
Figure 2.15 : La densité de probabilité.....	50
Figure 2.16: La fonction de répartition.....	50
Figure 2.17 : Système utilisé pour décrire la propagation du photon .....	53
Figure 2.18 : La rotation du system .....	54
Figure 2.19 : La réflexion spéculaire et la réfraction à l'interface.....	56
Figure 2.20: Facteurs de réflexion pour une interface air – polymère (a) et polymère – air (b).....	57
Figure 2.21 : Le profil du faisceau incident, diffusé et rétro -diffusé exprimé en pourcentage du faisceau incident pour une plaque de 2mm épaisseur ( $d = 0,25 \mu\text{m}$ , $n_p=1,8$ , $n_h= 1,49$ , $\lambda = 808 \text{ nm}$ , $f_v = 0,001$ ).....	58
Figure 2.22 : Evolution du profil du faisceau sur l'épaisseur de la plaque en fonction du diamètre de la particule ( $n_p=1,8$ , $n_h= 1,49$ , $\lambda = 808 \text{ nm}$ , $f_v = 0,001$ ).....	59
Figure 2.23 : Densité de particules pour une distribution normale centrée sur un diamètre de 100 nm et un écart type $\sigma = 50$ (en % du $r_0$ ) ( $n_p=1,8$ , $n_h= 1,49$ , $\lambda = 808 \text{ nm}$ , $f_v = 0,001$ ).....	61
Figure 2.24 : Evolution du rapport des intensités (transmise/ incidente) sur l'axe du faisceau (a) et du rapport des rayons (transmis / incident) (b) en fonction du diamètre des particules dans le cas d'une polydispersion avec les écarts types $\sigma$ indiqués pour un indice de réfraction de la particule de 1,7 ( $n_h=1,49$ , $\lambda=808\text{nm}$ , épaisseur milieu : 2mm, concentration massique : 0,2%) .....	66
Figure 2.25 : Evolution du rapport des intensités (transmise/ incidente) sur l'axe du faisceau (a) et du rapport des rayons (transmis / incident) (b) en fonction du diamètre des particules dans le cas d'une polydispersion avec les écarts types $\sigma$ indiqués pour un indice de réfraction de la particule de 1,8 ( $n_h=1,49$ , $\lambda=808\text{nm}$ , épaisseur milieu : 2mm, concentration massique : 0,2%) .....	67
Figure 2.26: Graphe montrant les régimes de diffusion dépendante et indépendante [Cartigny 86] $x =$ paramètre de taille ; $f_v =$ fraction volumique des diffuseurs ; $c/\lambda$ - distance moyenne libre entre les particules/ longueur d'onde ; $C_D =$ efficacité dépendante/ efficacité indépendante .....	68
Figure 2.27: Schéma de principe du montage.....	71
Figure 2.28 : Photographie du montage permettant de mesurer le flux transmis diffusé par l'échantillon .....	71
Figure 2.29: Distribution gaussienne de l'intensité du faisceau .....	72
Figure 2.30: Mesures du profil laser a deux distances sur l'axe de propagation .....	72
Figure 2.31 : Distribution trapézoïdal de l'intensité du faisceau.....	72
Figure 2.32 : Mesures du profil laser à deux distances sur l'axe de propagation ....	72
Figure 2.33: Les profils du faisceau laser mesurés et simulés et leurs ajustements pour une distribution trapézoïdale .....	74
Figure 2.34 : Evolution du rapport des intensités (transmise/ incidente) sur l'axe du faisceau (a) et du rapport des rayons (transmis / incident) (b) en fonction du diamètre des particules pour une épaisseur de la plaque de 1mm et une concentration de 0,3 (en % massique).....	76
Figure 2.35 : Evolution du rapport des intensités (transmise/ incidente) sur l'axe du faisceau (a) et du rapport des rayons (transmis / incident) (b) en fonction du diamètre des particules pour deux épaisseurs, une concentration de 0,3 et un indice réfraction de la particule de 1,7 .....	77

Figure 2.36 : Evolution du rapport des intensités (transmise/ incidente) sur l'axe du faisceau (a) et du rapport des rayons (transmis / incident) (b) en fonction du diamètre des particules pour deux concentrations, une épaisseur de 1mm et un indice réfraction de la particule de 1,9 .....	78
Figure 2.37 : L'évolution du coefficient volumique de diffusion avec le diamètre de la particule pour différents indices de réfraction.....	79
Figure 2.38 : L'évolution du libre parcours moyen de diffusion avec le diamètre de la particule pour un indice de réfraction de 1,8 .....	80
Figure 2.39 : Fonction de phase (a) et fonction de répartition pour un indice de réfraction de 1,8 et deux diamètres de particules .....	80
Figure 2.40 : L'évolution du coefficient volumique de diffusion avec le diamètre de la particule pour différents indices de réfraction plus petits que celui de la matrice ( $n_h=1.49$ , une épaisseur de la plaque de 2mm et une concentration de 0,3 en % massique) .....	81
Figure 2.41 : L'évolution du libre parcours moyen de diffusion avec le diamètre de la particule pour un indice de réfraction de 1,1 .....	81
Figure 2.42 : Evolution du rapport des intensités (transmise/ incidente) sur l'axe du faisceau (a) et du rayon transmis (b) en fonction du diamètre des particules pour une épaisseur de la plaque de 2mm, une concentration de 0,3 et les indices de réfraction de la particule indiqués.....	82
Figure 2.43 : Fonction de phase (a) et fonction de répartition pour un indice de réfraction de 1,1 et deux diamètres de particules ( $n_h=1.49$ , $\lambda = 808$ nm).....	83
Figure 2.44 : Analyse des facteurs d'influence sur l'intensité transmise pour un diamètre de particules entre 0,05 – 0,45 $\mu$ m .....	84
Figure 2.45 L'analyse des facteurs de l'influence sur l'intensité transmise pour le diamètre de particules entre 0,45 – 15 $\mu$ m .....	85
Figure 3.1 Représentation schématisée de l'absorption du faisceau laser dans le matériau absorbant .....	88
Figure 3.2: Géométrie utilisée pour la simulation à base des éléments finis.....	89
Figure 3.3 : Maillage utilisé pour la simulation à base des éléments finis.....	89
Figure 3.4 : Influence des paramètres de calcul sur la précision des résultats et le temps de calcul.....	90
Figure 3.5: L'évolution du champ de températures dans l'échantillon .....	92
Figure 3.6 : Evolution de la température dans le centre du faisceau sur la face avant et la face arrière de l'échantillon pendant les deux phases : échauffement et refroidissement (épaisseur plaque 2mm, $P=0,6W$ , $c=1600$ J.kg <sup>-1</sup> .K <sup>-1</sup> , $k=0,21W.m^{-1}K^{-1}$ ).....	92
Figure 3.7 : L'analyse des facteurs influençant l'évolution du champ de températures .....	94
Figure 3.8 : Evolution de la température au centre du spot laser sur la face avant de la plaque (a) et (b) et de l'écart maximum (c) et (d) pour une variation de 50% du coefficient d'échange et les coefficients d'absorption indiqués ( $P=0,33W$ , $c=1600$ J.kg <sup>-1</sup> .K <sup>-1</sup> , $k=0,21W.m^{-1}K^{-1}$ ) .....	96
Figure 3.9 : Evolution de la température au centre du faisceau sur la face avant de la plaque pour une variation de 50% de l'émissivité et les coefficients d'absorption indiqués ( $P=0,33W$ , $c=1600$ J.kg <sup>-1</sup> .K <sup>-1</sup> , $k=0,21W.m^{-1}K^{-1}$ , $h =10$ W.m <sup>-2</sup> K <sup>-1</sup> ).....	97
Figure 3.10 : L'évolution de la capacité thermique massique de ABS-PC en fonction de la température .....	98
Figure 3.11 : Les températures de transition vitreuse pour l'échantillon de ABS-PC	98

Figure 3.12: Evolution de la conductivité thermique de ABS (a) et PC (b) en fonction de la température et pression réalisées par NPL et leur ajustement a partir de la formule 3.4 .....	99
Figure 3.13 : Dispositif expérimental pour les mesures par caméra infrarouge.....	99
Figure 3.14 : Schéma de principe des mesures par caméra infrarouge.....	100
Figure 3.15 : Les profils thermiques pour le centre du spot laser enregistrés sur les deux faces opposées de l'échantillon.....	101
Figure 3.16 : Ajustement des courbes expérimentales avec une valeur de $19,5 \text{ mm}^{-1}$ pour le coefficient d'absorption .....	102
Figure 3.17: Montage expérimentale pour le soudage des polymères .....	103
Figure 3.18: Capacité thermique massique pour l'ABS naturel, ABS-PC rouge et le PC .....	104
Figure 3.19: Observation du procédé par camera IR.....	105
Figure 3.20: Profil de température en surface au niveau du passage du laser après 4s d'irradiation.....	105
Figure 3.21: Profil transversal de température (à l'aplomb du faisceau laser) en cours d'assemblage .....	106
Figure 3.22 : Température mesurée et calculée sur le passage du faisceau laser	107
Figure 3.23 : Zone affectée thermiquement observée expérimentalement (à gauche) et numériquement (à droite) pour l'assemblage PMMA-ABS/PC [Speka 06] ..	108
Figure 3.24 Résistance à la rupture du couple PMMA – ABS/PC en fonction de l'énergie linéaire [Speka 06].....	108
Figure 4.1 : Schéma de principe pour les mesures IR .....	111
Figure 4.2 Profils du faisceau laser, incident et transmis, mesurés (a) et simulés (b) et leurs ajustements.....	111
Figure 4.3 : Evolution des profils thermiques expérimentaux dans le centre du spot laser sur la face arrière de l'assemblage et leurs ajustements pour deux puissances laser.....	112
Figure 4.4: Evolution de l'intensité transmise en fonction du diamètre et de l'indice relatif pour une épaisseur du milieu hôte de 1,5mm et une concentration de 0,1% ( $\lambda = 808 \text{ nm}$ ) .....	114
Figure 4.5: Evolution de l'intensité transmise en fonction du diamètre et de l'épaisseur pour un indice relatif de 1,14 et une concentration de 0,1% ( $\lambda = 808 \text{ nm}$ ).....	114
Figure 4.6: Evolution de l'intensité transmise en fonction du diamètre et de la concentration pour un indice relatif de 1,14 et une épaisseur de 1,5 mm ( $\lambda = 808 \text{ nm}$ ).....	114
Figure 4.7: Evolution de l'intensité transmise en fonction de l'épaisseur et de l'indice relatif pour une concentration de 0,1% .....	115
Figure 4.8: Evolution de l'intensité transmise en fonction de la concentration et de l'indice relatif pour une épaisseur de 1mm.....	115
Figure 4.9: Evolution de l'intensité transmise en fonction de la concentration et de l'épaisseur pour un indice relatif de 1,07 .....	115
Figure 4.10: Vue d'un ABS au microscope électronique à transmission [Sapin 96] .....	117
Figure 4.11: Profils des faisceaux transmis mesurés expérimentalement sur l'ABS (a) et simulés pour le matériau équivalent et leurs ajustements gaussiens ...	119
Figure 4.12: Profils thermiques mesurés expérimentalement sur la face arrière du ABS/PC seul (a) et les couples ABS naturel – ABS/PC (b) pour une puissance laser de 0,27 W.....	120

---

Figure 4.13: Ajustement du profil thermique simulé et mesuré expérimentalement sur la face arrière du ABS/PC seul .....	121
Figure 4.14: Profils thermiques mesurés expérimentalement et simulés pour les caractéristiques du faisceau transmis mesuré (a) et simulé (b) pour une épaisseur du ABS naturel de 1,5 mm .....	121
Figure 4.15 : Profils thermiques mesurés expérimentalement et simulés pour les caractéristiques du faisceau transmis mesuré (a) et simulé (b) pour une épaisseur du ABS naturel de 2,1 mm .....	122
Figure 4.16 : Profils thermiques mesurés expérimentalement et simulés pour les caractéristiques du faisceau transmis mesuré (a) et simulé (b) pour une épaisseur du ABS naturel de 2,86 mm. ....	122

## INTRODUCTION

---

Les techniques d'assemblage par soudage connaissent aujourd'hui un développement continu tant de point de vue des matériaux que de point de vue des types d'application industrielle.

Parmi ceux-ci, le soudage par faisceau laser de thermoplastiques est une technologie présentant des avantages déjà bien connus dans le domaine industriel comme d'être un procédé précis, non contaminant, flexible, facile à contrôler et à automatiser.

Pendant ces dernières années, les recherches sur ce sujet se sont fortement développées : au niveau des nouvelles sources laser, de nouveaux absorbeurs, de la modélisation du processus et des applications industrielles. Malgré cela, le niveau actuel reste souvent peu satisfaisant, et les chercheurs, aussi bien que les fabricants, s'efforcent de maîtriser et d'optimiser ce procédé.

La maîtrise du procédé nécessite tout d'abord une bonne connaissance des propriétés des matériaux, et plus particulièrement de leur influence sur le comportement du faisceau laser.

En principe, le soudage laser "par transparence" de polymères exige une partie optiquement transparente à la longueur d'onde du laser et une partie absorbante. L'énergie est concentrée à l'interface provoquant ainsi la fusion des 2 matériaux. Par rapport aux techniques conventionnelles de soudage, l'efficacité du soudage par laser est fortement dépendante des propriétés optiques des deux matériaux à assembler (réflectivité, transmittivité et absorptivité). La transmittivité du premier matériau joue un rôle décisif en ce qui concerne l'énergie qui arrive à l'interface de deux matériaux. Elle doit dépasser un certain seuil afin que l'échauffement à l'interface puisse avoir lieu efficacement. Par exemple, les études de Jones [Jones 02] ont montré que, pour les matériaux étudiés, le 1<sup>er</sup> matériau doit permettre la transmission d'au moins 10% de l'énergie laser incidente sur son épaisseur totale. Quant à l'absorptivité, elle doit être faible, voire négligeable pour le premier matériau, et très élevée pour le deuxième.

L'atténuation d'une radiation électromagnétique à travers un milieu est due à un phénomène d'extinction, dans lequel l'absorption et la diffusion peuvent coexister également ou prédominer l'un sur l'autre en fonction des propriétés optiques du milieu. L'absorption convertit le rayonnement incident en chaleur tandis que la diffusion le redistribue dans l'espace. Un grand nombre d'études est fondé sur la supposition que cette atténuation est faite d'une manière exponentielle selon la loi de Beer-Lambert. Mais la validité de cette loi n'est bien vérifiée que pour les milieux dont le phénomène prédominant est l'absorption.

En ce qui concerne les milieux diffusants, la loi de Beer - Lambert n'est valide que pour des concentrations particulières faibles comme celles que l'on rencontre dans l'atmosphère ou dans l'eau marine. Les investigations sur la validité de cette loi dans les milieux présentant une haute concentration de diffuseurs [Churchill 60] [Drolen 87] [West 94] ont montré que l'utilisation de celle-ci pour décrire l'atténuation du rayonnement, conduit à des résultats erronés. Les premières limites, en ce qui concerne la concentration « critique » se situent autour de 15% en masse de diffuseur.

Une étude plus récente [Dick 98] montre que la concentration « critique » dépend fortement des paramètres des diffuseurs (taille, forme, indice de réfraction, etc.) et varie sur une gamme large, de 0,1 à une dizaine de pourcents.

La famille de polymères thermoplastiques présentant une grande variété de matériaux amorphes ou semi-cristallins, avec des charges, des adjuvants, des pigments ou colorants, on se trouve dans le cas d'un milieu qui comporte des hétérogénéités très diverses et avec des tailles d'échelles variées. Dans ces conditions, une modélisation de la propagation d'un faisceau laser paraît essentielle.

Ainsi, l'objectif de ce travail de thèse a été d'estimer la soudabilité des thermoplastiques en fonction de leurs propriétés optiques et thermiques.

La première tâche, dans la recherche de cet objectif, a été de quantifier l'atténuation de la radiation dans les polymères semi-transparentes en établissant la corrélation entre les propriétés optiques des inclusions et de la matrice du polymère, et la distribution spatiale de l'intensité laser les traversant, c'est à dire, en effectuant une modélisation des phénomènes optiques qui permet d'estimer la forme de la distribution du faisceau laser à l'interface des deux matériaux.

L'étape suivante consiste à réaliser le couplage entre le modèle optique et le modèle thermique, fondé sur l'équation de la diffusion de la chaleur, afin de déterminer les champs de températures dans le volume des composants à souder.

Ainsi, le premier chapitre présentera l'état de l'art sur les procédés de soudage des polymères thermoplastiques en insistant plus particulièrement sur les mécanismes mis en jeu dans le soudage par laser et l'importance des caractéristiques des matériaux impliqués sur l'efficacité du processus.

Le chapitre suivant, le deuxième, est consacré à la modélisation de la propagation du faisceau laser à travers un milieu diffusant. L'étude de la diffusion implique l'utilisation des notions comme ; la diffusion simple et multiple, indépendante et dépendante, les caractéristiques du faisceau incident et du milieu considéré. Nous nous sommes orientés vers l'application de la théorie de Lorentz-Mie pour obtenir les paramètres de diffusion d'une seule particule, le passage vers un ensemble de particules est réalisé par l'intermédiaire d'une méthode statistique : la méthode de Monte Carlo.

Les simulations numériques développées nous ont permis d'obtenir des informations pertinentes sur le comportement optique du faisceau laser en fonction des caractéristiques du milieu diffusant et d'établir l'importance de chaque facteur sur l'atténuation de la radiation incidente.

L'aspect concernant la modélisation thermique est présenté au chapitre III. Il s'agit d'une approche classique basée sur une absorption de la radiation dans le deuxième matériau selon la loi de Beer-Lambert et la détermination des champs des températures à partir de l'équation de diffusion thermique. Les mesures des températures de surface par thermographie infrarouges sont corrélées aux résultats numériques.

Le couplage modèle optique - modèle thermique est présenté dans le chapitre IV. Il permet de caractériser le comportement d'un couple de matériaux (semi-transparent -absorbant) pendant une irradiation laser. Cela implique l'utilisation en données d'entrée des résultats obtenus avec le modèle optique dans le modèle thermique.

L'extension de ce modèle pour caractériser le comportement du faisceau laser dans des milieux qui s'éloignent des hypothèses posées est étudiée dans la dernière partie de ce travail. Les écarts sont liés par exemple à la distribution de la taille des diffuseurs, que l'on peut approximer par une certaine loi probabiliste (normale, log-normale, etc.), à la forme de diffuseurs, à l'absorptivité du milieu ou

## 16 Introduction

---

des diffuseurs, etc. Dans le principe, il s'agit de trouver, à partir des mesures des intensités transmises sur différentes épaisseurs, un matériau équivalent, présentant un comportement similaire à celui du matériau concerné. Il est possible alors d'avoir une estimation sur le comportement optique du faisceau et donc de s'orienter vers les paramètres de soudage adéquats.

Les travaux présentés constituent une ouverture vers l'approche scientifique des processus de soudage par laser des thermoplastiques en offrant des méthodes et des techniques pour l'optimisation globale de ceux-ci.

# 1. LES POLYMERES

---

## 1.1. Généralités sur les polymères thermoplastiques

Un polymère est une macromolécule formée de l'enchaînement covalent d'un très grand nombre d'unités de répétition qui dérivent d'un ou de plusieurs monomères (qui sont également appelés motifs élémentaires). Quand tous ces motifs élémentaires sont identiques, neutres et enchaînés de façon linéaire, on parle d'homopolymères, et de copolymères quand ils sont différents.

Les polymères sont constitués de macromolécules de tailles différentes. Ils sont ainsi définis par les distributions de masse caractérisées par les moyennes appelées masses molaires moyennes en nombre  $M_n$  et en poids  $M_w$  :

$$M_w = \frac{\sum_i n_i M_i^2}{\sum_i n_i M_i}, \quad M_n = \frac{\sum_i n_i M_i}{\sum_i n_i} \quad (1.1)$$

où  $n_i$  est le nombre total de molécules de masse  $M_i$  dans le matériau

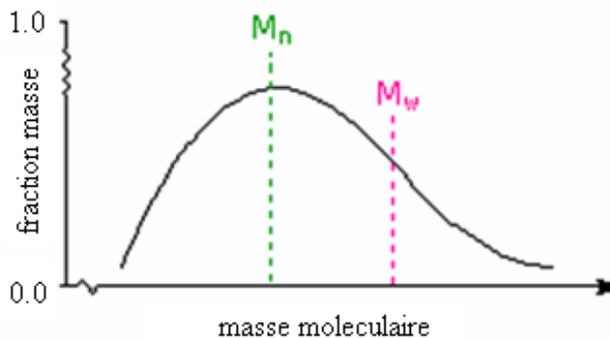


Figure 1.1 Masse moléculaire en nombre et en poids

### *Etats physiques des polymères*

Les matériaux macromoléculaires existent en trois états d'agrégation : condensé, solide et liquide. Dans le cadre de notre étude, nous nous intéressons uniquement aux polymères à l'état solide.

Pour caractériser ces matériaux, la notion d'état d'agrégation n'est pas bien appropriée. En conséquence, on définit la notion d'*état de phase* qui, au sens thermodynamique, représente une partie d'un système homogène du point de vue de la composition chimique et des propriétés. Structurellement, la notion de phase marque les différences qui apparaissent entre l'arrangement des molécules en différents états.

On trouve ces types de matériaux en deux états de phase : **amorphe** et **cristallin**. Ainsi, un polymère amorphe appartient aux liquides du point de vue de l'état de phase et aux solides en ce qui concerne l'état d'agrégation.

### 1.1.1. Les polymères amorphes

Les polymères amorphes se caractérisent par une absence d'ordre de position des monomères à longue distance. Ils peuvent être considérés comme des matériaux dans lesquels les mouvements moléculaires du liquide sont gelés en gardant une organisation de type liquide. En fonction de la température, ils existent dans les trois états physiques : vitreux, hautement élastique et visqueux.

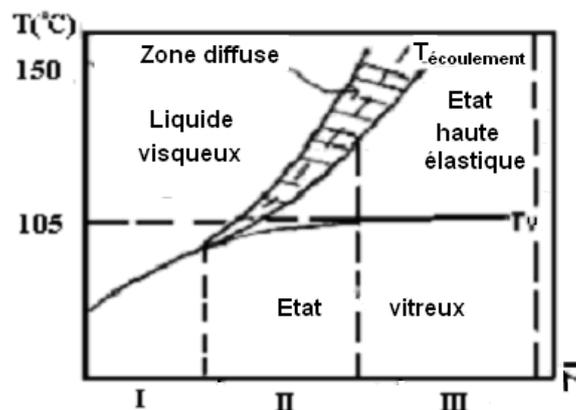


Figure 1.2 Etats physiques des polymères amorphes en fonction de la température et de la masse moléculaire (I- oligomère; II- polymère; III- haut polymère)[Vasiliiu 86]

La partie située en dessous de  $T_v$  – température de transition vitreuse – correspond à l'état vitreux, caractérisé par la possibilité de petites déformations. Le polymère est alors à l'état solide. Dans ce domaine, les forces inter- et intramoléculaires sont plus fortes que l'énergie d'agitation thermique.

La température de transition vitreuse marque le changement de comportement entre l'état solide et l'état liquide. Au dessus de cette température, le polymère peut subir de grandes déformations réversibles. Ces déformations sont attribuées aux mouvements thermiques exécutés par le segment de chaîne moléculaire. La transition vitreuse s'accompagne d'un ensemble de changements des propriétés du matériau, en particulier au regard de son volume spécifique, son coefficient d'expansion thermique, ou de sa capacité thermique. Pour des températures qui dépassent la température d'écoulement  $T_{ec}$ , le polymère se trouve dans l'état visqueux caractérisé par des déformations irréversibles.

### 1.1.2. Les polymères semi-cristallins

Les polymères semi-cristallins se distinguent des polymères amorphes par l'existence d'une température de fusion  $T_f$ , température au dessus de laquelle le polymère peut être liquide ou viscoélastique en fonction de sa masse moléculaire. Cette température correspond à la température de fusion des cristaux et s'étend sur une plage de températures plus large que celle classiquement rencontrée dans une transformation solide - liquide. En dessous de cette température, commence le processus de cristallisation.

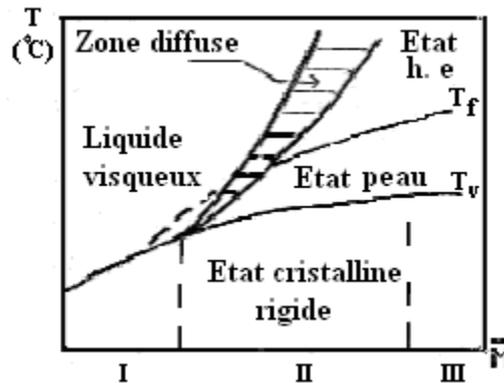


Figure 1.3 Etats physiques des polymères semi-cristallins en fonction de la température et de la masse moléculaire (I- oligomère; II- polymère; III- haut polymère)[Vasiliiu 86]

Les chaînes moléculaires se replient sur elles-mêmes sur une épaisseur de l'ordre de 10 nm en formant des lamelles (figure.1.4 a,b). Entre les lamelles, il reste des zones amorphes, soit à cause de défauts d'enchaînements (ramifications), soit à cause d'une vitesse de refroidissement trop rapide. Les lamelles s'organisent dans des structures plus importantes, appelées sphérolites (figure 1.4 c,d), avec des tailles comprises entre 1 et quelques micromètres, dans une direction radiale, et quelques centimètres en longueur. Leur croissance peut se diviser en deux étapes : croissance radiale de lamelles à partir d'un noyau (cette croissance est limitée par le développement des sphérolites voisins) et la cristallisation des zones amorphes inter-cristallines.

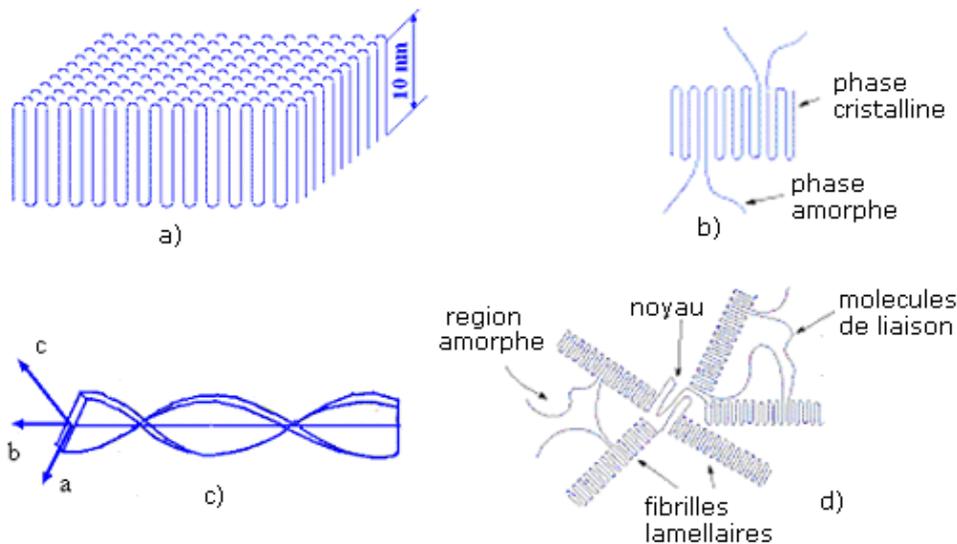


Figure 1.4 Structures cristallines : lamelles (a), (b) sphérolites (c) (d)

Les paramètres de cristallinité (taille des cristallites, taux de cristallinité, ...) dépendent de plusieurs facteurs tels que la structure chimique du polymère, le poids moléculaire, la température de cristallisation  $T_c$ , la vitesse de refroidissement autour de  $T_c$ , les traitements thermique et mécanique après la cristallisation.

En dessous de  $T_f$ , particulièrement pour de grandes masses moléculaires, le polymère est souple avec un aspect de peau, et devient rigide près de la température de transition vitreuse (figure I.3).

### 1.1.3. Les additifs

Suivant l'usage prévu du thermoplastique on ajoute dans la matrice des polymères certains additifs. En fonction de l'indice de réfraction par rapport au celui de la matrice du polymère, la forme et la taille des particules ajoutées ainsi que leur concentration, ces additifs peuvent constituer des inhomogénéités qui vont modifier les propriétés optiques des polymères. Les caractéristiques des principaux types d'additifs sont données dans le tableau I.1 et dans la figure 1.5.

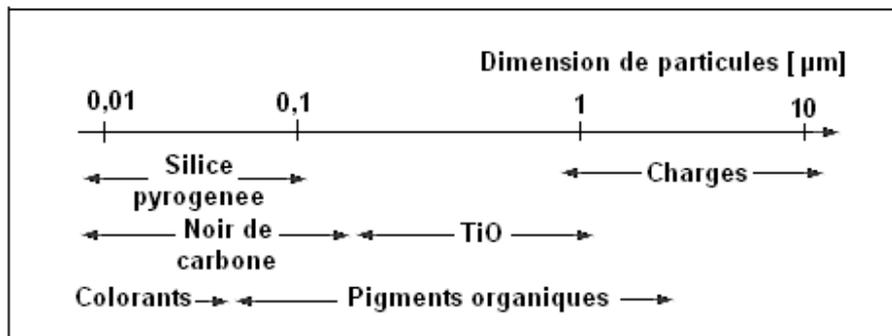


Figure 1.5 Dimensions comparées des colorants, des pigments et des charges [Defosse 91]

Types	Effets	Nature	Taux en % de masse	Indice de réfraction (visible)
Renforts	-accroître la résistance mécanique	- fibre de verre - fibre de carbone - métal	- 10 a 40	- 1,51
Charges	- diminuer le prix -améliorer une propriété	- craie - kaolin - mica - silice - talc	- 20 a 45 - >25	- 1,56 - 1,54-1,69 - 1,49 - 1,59
Pigments	- esthétique -augmenter l'absorptivité	- pigments minéraux -pigments organiques - colorants	- 0,007- 2	1,4 -2,71
Plastifiants	- réduire la fragilité	- pthalates - phosphates - stérates		
Stabilisants	-anti-vieillessement	- Sels de Pb, Ba, Ca		

Tableau 1.1 Types des additifs ajoutés dans la matrice des polymères (d'après Techniques de l'ingénieur, traité Plastiques, A 3233)

### 1.1.4. Propriétés optiques des polymères

Les polymères amorphes sont généralement incolores et transparents aux températures inférieures à celle de transition vitreuse. *La transmission* de la lumière

visible à travers ces polymères et pour des lames d'épaisseur environ 3 mm présente un maximum de l'ordre de l'ordre de 90% et des diminutions aux alentours de trois plages de longueurs d'onde, centrées sur 1200, 1400 et 1700 nm (figure 1.6).

Les polymères semi-cristallins sont moins transparents que les polymères amorphes en raison de la présence de zones cristallines qui jouent le rôle de centres de diffusion de la lumière.

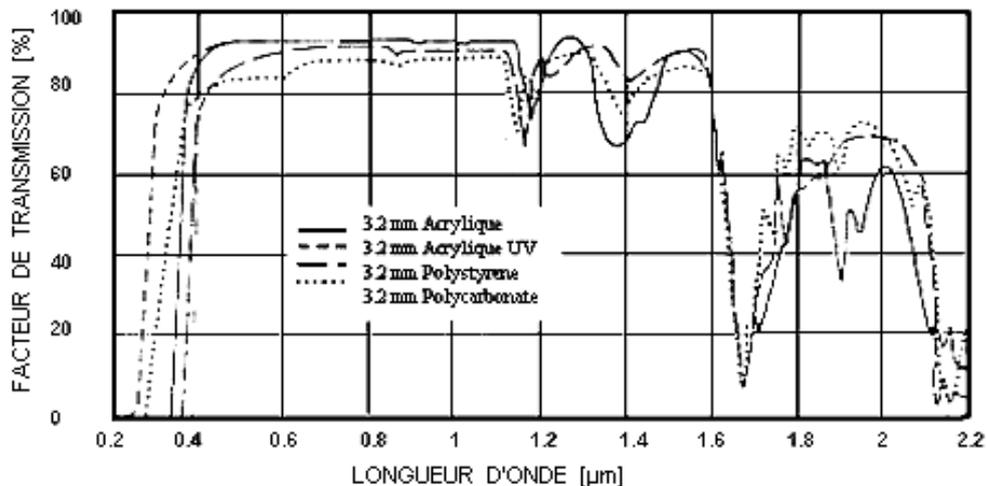


Figure 1.6 Facteur de transmission en fonction de la longueur d'onde du laser [Kagan 01]

Compte tenu que la plupart des polymères contiennent des groupements chimiques C-C, C-H, C-O, C-Cl, l'absorption de la radiation est très forte pour des longueurs d'onde inférieures à 225 nm (ultraviolet). Pour des longueurs d'onde plus grandes, l'absorption est due à la présence de chromophores dans la matrice (produits d'oxydation, impuretés, pigments, etc.).

La *réflectivité* est faible pour cette famille de matériaux (environ 4% dans le cas des polymères transparents). Dans le cas d'un état de surface optiquement lisse seule la réflectivité spéculaire de l'échantillon est à prendre en compte. Donc, la réflectivité en incidence normale (notée  $\rho$ ), pour un milieu dont l'indice complexe  $\tilde{n} = n - ik$  avec  $k^2 \ll n^2$ , est donnée par :

$$\rho = \frac{(n-1)^2}{(n+1)^2} \quad (1.2)$$

où  $k$  est la partie imaginaire appelée coefficient d'extinction .

L'ajout de colorants ou de pigments dans la matrice polymère modifie ses propriétés optiques. Un exemple de leur influence est donné sur la figure 1.7.

L'exemple de la figure 1.8 montre l'influence combinée de l'adjonction de fibres de verre et de charges minérales communément utilisées avec une matrice nylon. La transmission est bien plus réduite dans le cas de charges minérales (CM) par rapport à celui des fibres de verre (FV), car les particules minérales sont plus fines et, pour la même concentration, présentent plus de centres de diffusion et donc, réduisent considérablement l'intensité de la lumière transmise.

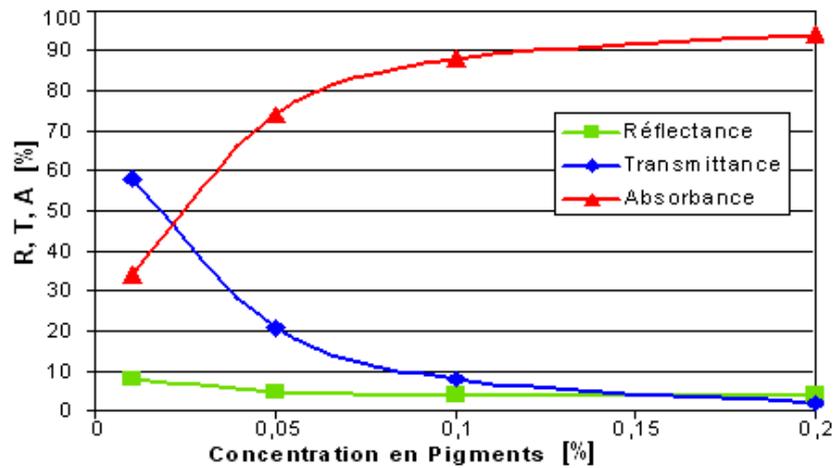


Figure 1.7 L'influence de pigments sur les propriétés optiques de polymères [Kagan 02]

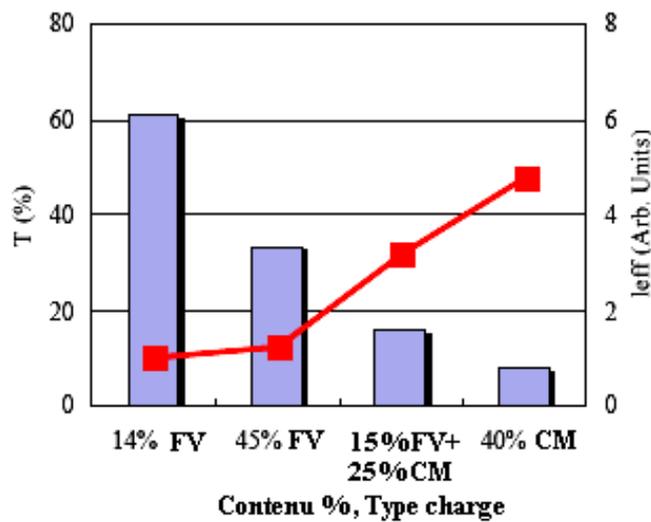


Figure 1.8: L'influence de fibres de verre et charges minérales sur la transmission de polymères [Kagan 00]

## 1.2. Contexte industriel: état de l'art sur le soudage des polymères

### *Rappels sur les différentes méthodes de soudage*

L'assemblage des polymères suscite depuis des années un vif d'intérêt. Les procédés d'assemblage utilisés sont essentiellement : le collage, l'assemblage avec des éléments mécaniques et le soudage. Dans le cadre de cette étude, nous nous

intéresserons au soudage de polymères thermoplastiques, plus particulièrement au soudage par laser à diode.

En fonction de la nature de l'énergie primaire introduite dans le processus, on peut classer les procédés de soudage en trois catégories :

- **le soudage mécanique** – où l'on convertit de l'énergie mécanique en énergie thermique. Ce procédé consiste à imprimer un mouvement relatif entre les deux pièces à souder, l'échauffement du matériau étant une conséquence de la friction intermoléculaire. Cette technique est applicable aux pièces rigides, avec un degré réduit de la complexité du cordon (PS/ABS, PMMA/PC, PPO/PA);
- **le soudage thermique** implique une source de chaleur externe. Le transfert thermique vers les composants se réalise par conduction. Il autorise une large gamme de dimensions (films minces, tuyaux, barreaux). Le principal inconvénient tient dans le temps du processus, généralement compris entre 10 s et 60 min en fonction de la surface à souder.
- **le soudage électromagnétique.** L'échauffement se réalise par l'absorption de l'énergie électromagnétique et sa conversion en énergie thermique. Cette méthode de soudage autorise un contrôle de la température du processus, et peut être réalisé sur une large gamme de matériaux dans diverses combinaisons (rigide - rigide, rigide - flexible, etc...).

Les principaux procédés de soudage sont représentés dans la figure I.9 et les applications les plus courantes dans les tableaux I.2, I.3, I.4.

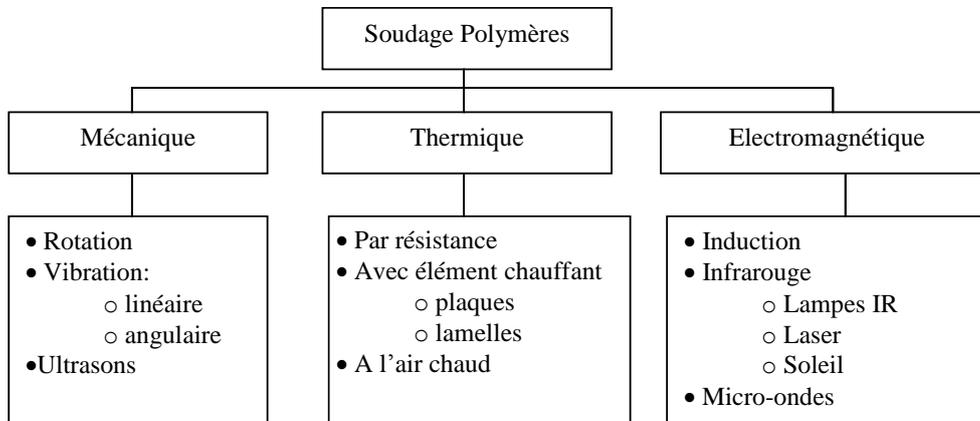


Figure 1.9 Les principaux procédés de soudage en fonction de l'énergie primaire introduite

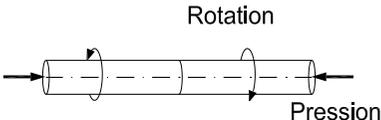
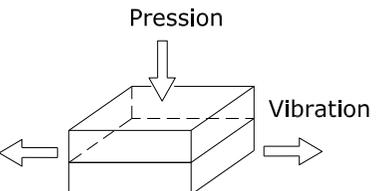
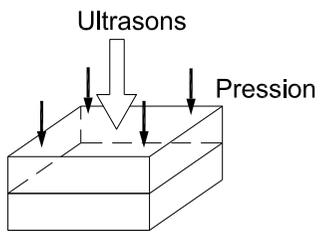
Type mouvement	Schéma de principe	Etapes	Paramètres spécifiques	Applications
<b>Rotation</b>	 <p>Rotation</p> <p>Pression</p>	<ul style="list-style-type: none"> <li>• contact intime entre le deux composants</li> <li>• rotation alternative (échauffement du matériau au dessus de <math>T_v</math>)</li> <li>• maintien sous pression (soudage)</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>• temps d'échauffement 1-20s</li> <li>• vitesse de rotation 1-20m/s</li> <li>• déplacement</li> <li>• pression 50-150 kPa</li> </ul>	Soudage de tuyaux, barreau etc. [Grimm 90]
<b>Vibration</b>	 <p>Pression</p> <p>Vibration</p>	<ul style="list-style-type: none"> <li>• contact intime entre le deux composants</li> <li>• vibration linéaire (échauffement du matériau au dessus de <math>T_v</math>)</li> <li>• maintien sous pression (soudage)</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>• temps d'échauffement 1-5s</li> <li>• pression 1- 4 MPa</li> <li><b>a. Haute fréquence</b> ~ 240 Hz</li> <li>• amplitude des vibrations 0,7-1,8 mm</li> <li><b>b. Base fréquence</b> ~ 100 Hz</li> <li>• amplitude des vibrations 2 -4 mm</li> </ul>	Trajectoires linéaires [Schwartz 94] [Bates 04]
	 <p>Ultrasons</p> <p>Pression</p>	<ul style="list-style-type: none"> <li>• contact intime entre le deux composants</li> <li>• vibrations induites par les ultrasons (échauffement du matériau au dessus de <math>T_v</math>)</li> <li>• maintien sous pression (soudage)</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>• temps d'échauffement 3-4s</li> <li>• fréquence 20-40 kHz</li> <li>• amplitude des vibrations 10-100 <math>\mu\text{m}</math></li> </ul>	Dispositifs médicaux, disquettes, composants automobiles [Grimm 95]

Tableau I.2 Le soudage mécanique

Procédé	Schéma de principe	Etapes	Paramètres spécifiques	Applications
<b>Soudage par gaz chaud</b>	<p>Gaz chaud Fil</p>	<ul style="list-style-type: none"> <li>• positionnement des pièces</li> <li>• apport de fil (polymère)</li> <li>• échauffement par gaz chaud (air/ azote)</li> <li>• formation du cordon</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>• température du gaz - 200-400 °C</li> <li>• débit de gaz - 16-60 l/min</li> </ul>	Plaques [Grimm 90]
<b>Soudage par lames chauffantes</b>	<p>Pression Plaque chauffante</p>	<ul style="list-style-type: none"> <li>• contact intime entre les deux composants à souder et la lamelle chaude</li> <li>• échauffement et fusion</li> <li>• éloignement de la lamelle</li> <li>• contact entre les deux composants et maintien sous pression</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>• pression</li> <li>• température</li> </ul>	Pièces rigides de grandes dimensions [Grimm 90]
<b>Soudage par résistance</b>	<p>Pression résistance</p>	<ul style="list-style-type: none"> <li>• contact entre les deux composants à souder et l'élément conducteur</li> <li>• échauffement et fusion</li> <li>• maintien sous pression</li> <li>• soudage</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>• 30-160 kWm<sup>-2</sup></li> <li>• temps d'échauffement ~ 30 s</li> <li>• temps de refroidissement</li> </ul>	soudage de films minces (e < 0,5mm) domaine médical, etc. [Hou 99] [Stavrov'05]

Tableau I.3 Le soudage thermique

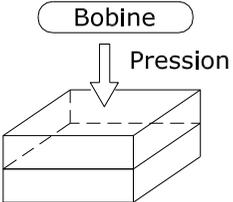
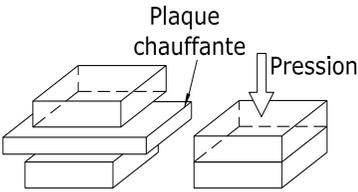
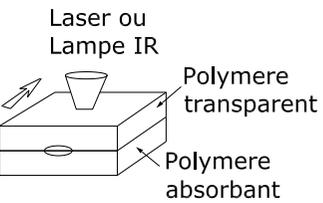
Procédé	Schéma de principe		Etapes	Paramètres spécifiques	Applications
<b>Soudage par induction</b>			<ul style="list-style-type: none"> <li>• contact entre les deux composants à souder</li> <li>• échauffement et fusion par induction</li> <li>• maintien sous pression</li> <li>• soudage</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>• fréquence - 60Hz-100MHz</li> <li>• temps d'échauffement - 10s-6 min</li> </ul>	Pièces longues et minces et conductrices [Ageorges 01] [Hollande 98]
<b>Soudage infrarouge (IR)</b>	Plaques céramiques		<ul style="list-style-type: none"> <li>• positionnement de la plaque céramique entre les deux composants à souder à 0.2 mm</li> <li>• échauffement et fusion</li> <li>• éloignement de la plaque</li> <li>• contact entre les deux composants et maintien sous pression</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>• température de la plaque 300-500 °C</li> <li>• temps d'échauffement ~ 30s</li> </ul>	Pièces rigides de grandes dimensions Industrie automobiles, constructions civiles [Ageorges 01]
	Laser IR Lampe IR		<ul style="list-style-type: none"> <li>• contact entre les deux composants à souder</li> <li>• irradiation</li> <li>• maintien sous pression</li> <li>• soudage</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>• fluence</li> <li>• pression</li> <li>• temps de soudage</li> </ul>	Matériaux rigides et flexibles, trajectoires complexes, etc. [Schwartz 89]

Tableau I.4 Le soudage électromagnétique

Récemment, plusieurs publications sur l'état de l'art ont été réalisées sur les méthodes d'assemblage des polymères [Brown'00] [Grimm 90], [Yarlagadda 98], [Hollande 98] et des composites à matrice thermoplastiques [Ageorges 00] [Silverman 89] [Yousefpour 04] et permettent des comparaisons entre ces différentes techniques (tableau I.5) sur une échelle de 0 (moins indiqué) à 10 (plus indiqué).

Tableau I.5 Comparaison entre les différentes techniques de soudage

	<b>Résistance</b>	<b>Ultrasons</b>	<b>Induction</b>	<b>Lamelles</b>	<b>Laser</b>
Performance	10	10	10	9	10
Reproductibilité	8	9	9	9	10
Durabilité	8	9	8	9	9
Coût	7-6	8-6	7-6	7-5	7-6
Temps	8	10	8	7	10
Préparation surface	10	10	10	10	10
Flexibilité	5	5	7	7	8
Grandes dimensions	8	5	8	2	10
Automatisation	10	10	10	10	10
Portabilité	8	7	7	8	8
Recyclage	8	5	8	2	9

### 1.3. Soudage laser des polymères

#### 1.3.1. Les matériaux

Le soudage laser permet l'assemblage des polymères thermoplastiques dans diverses combinaisons : rigide – rigide, rigide- flexible, flexible – flexible.

Les principaux thermoplastiques soudables par laser sont représentés dans le tableau ci-dessous ainsi que les combinaisons compatibles rapportées.

<b>Polymères thermoplastiques standard</b>	<b>ABS</b>	✓	✓	✓	✓			✓
	<b>ABS-PC</b>	✓	✓	✓	✓			
	<b>PMMA</b>	✓	✓	✓	✓			✓
	<b>PC</b>	✓	✓	✓	✓			
	<b>PS</b>					✓		
	<b>PVC</b>						✓	
	<b>SAN</b>			✓				✓
<b>Polymères thermoplastiques de construction</b>		<b>PET</b>	<b>PA</b>	<b>POM</b>	<b>PBT-m</b>			
	<b>PET</b>	✓			✓			
	<b>PA</b>		✓					
	<b>POM</b>			✓				
	<b>PBT-m</b>				✓			

Compatibilité entre différents thermoplastiques d'après[Joly] [Reinhold 04] [Warwick 06]

En principe, le soudage se réalise par l'absorption de la radiation dans les matériaux à souder, l'échauffement et la fusion localisée de ceux-ci et la formation du cordon de soudure pendant le refroidissement sous l'action de la pression appliquée.

La plupart des polymères sont transparents dans le proche infrarouge et particulièrement à la longueur d'onde du faisceau laser. La faisabilité du processus de soudage est donc fortement conditionnée par la présence d'additifs (colorants et pigments) dans la matrice du polymère qui modifie son absorption vis-à-vis du rayonnement laser.

### 1.3.2. Les colorants

Il y a deux catégories d'additifs utilisés pour augmenter l'absorption dans la matrice polymère : les pigments et les colorants. Les pigments sont incorporés par dispersion dans le polymère et les colorants par dissolution. Malgré leur stabilité par rapport aux colorants, l'utilisation de pigments est limitée pour des raisons fonctionnelles. Ils peuvent nuire aux propriétés mécaniques et optiques, en fonction de leur taille, leur forme, ou encore leur surface spécifique. De plus, leur présence dans la matrice du polymère provoque la diffusion de la radiation laser en réduisant l'efficacité de l'absorption.

Actuellement, pour répondre aux applications pour lesquelles l'absence de la couleur est une exigence essentielle, les efforts sont orientés vers le développement des colorants ayant une couleur la moins visible possible et une absorption élevée dans l'infrarouge.

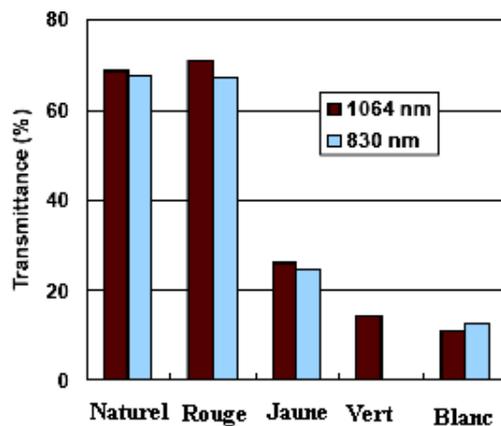


Figure 1.9 : Influence de colorants sur la transmission pour deux longueurs d'onde (Nd-YAG et diode) dans le cas d'une matrice en PA [Kagan 01]

#### ***a- Absorption et conversion énergétique dans les colorants***

Les colorants conventionnels absorbent, par définition, la radiation électromagnétique du visible et du proche IR, processus qui détermine le passage du système de l'état fondamental dans un état excité avec une croissance énergétique considérable au niveau moléculaire. La relaxation des molécules excitées se fait par une conversion interne suivie d'une relaxation vibrationnelle (environ  $10^{-13}$  s), l'excès énergétique étant transféré vers les molécules voisines. Le résultat est l'échauffement du substrat, la croissance locale de la température étant dépendante de la conductivité thermique du matériau, de la longueur d'onde et de l'intensité du laser.

La bande d'absorption du colorant joue un rôle majeur dans l'obtention d'une conversion efficace d'énergie en énergie thermique. Pour obtenir une absorption maximale de la radiation, la bande d'absorption doit être centrée sur la

longueur d'onde du laser ( $\lambda_{\max}$ ). Par ailleurs, d'après Jones [Jones 00] un colorant avec une bande d'absorption plus étroite présentera un coefficient d'absorption plus important qu'un colorant à bande large. De cette façon, la concentration de colorants nécessaire dans la matrice est plus faible.

### ***b- Sélection***

L'obtention d'un couple polymère – additif idéal est impossible mais, en alliant les propriétés optiques des deux, on peut choisir un couple optimal qui peut assurer la réalisation de l'assemblage soudé dans des conditions adéquates.

Dans le cas de soudage des plastiques transparents, le colorant idéal doit remplir les conditions suivantes:

- une bande d'absorption étroite centrée sur la longueur d'onde du laser;
- une absorption réduite, voire nulle, dans le visible;
- une grande solubilité dans la matrice du polymère;
- une bonne stabilité;

### ***c- Incorporation des additifs dans la matrice***

Pour produire l'effet thermique à l'interface de deux matériaux, des additifs peuvent être insérés :

- dans un film mince (10- 40  $\mu\text{m}$ ) à l'interface entre les deux échantillons. Sa composition peut être différente ou non de celle de la matrice du polymère. La concentration utilisée est fonction de la nature du colorant et de la matrice. En général, les valeurs se situent aux environs de 0,02%. Dans ce cas, les deux pièces à assembler peuvent être constituées du même polymère et peuvent être transparentes. La qualité de l'assemblage sera fonction de celle de l'adhésion du film sur la surface;
- dans la matrice du deuxième polymère. Cette méthode nécessite des quantités plus élevées et est donc plus coûteuse;
- par dépôt sur la surface, sous forme de peinture, spray, etc. Cette technique permet l'utilisation locale du colorant, donc de quantités réduites, mais peut poser des problèmes liés à la stabilité dans le temps du colorant appliqué.

### **1.3.3. Les lasers utilisés**

Les sources laser adaptables au soudage des polymères sont les lasers à  $\text{CO}_2$ , Nd-YAG et les lasers à diodes. Dans l'infrarouge moyen à la longueur d'onde du  $\text{CO}_2$  (10,6  $\mu\text{m}$  ; énergie des photons : 0,12eV), la radiation est rapidement absorbée en surface du plastique, induisant un chauffage rapide. En conséquence, les lasers  $\text{CO}_2$  sont utilisés pour le soudage des films minces (< 0,2 mm) à grande vitesse (jusqu'à 500 m/min).

Dans le proche infrarouge pour les lasers Nd-YAG et les lasers à diodes (800-1100 nm, énergie du photon environ 1,2eV), la radiation est plus faiblement absorbée et dépend fortement de la présence d'additifs dans la matrice du polymère. Elle a un caractère volumique et peut être modulée en ajoutant des éléments sensibles à la longueur d'onde du laser (soit absorbants, soit diffusants pour faciliter l'absorption dans la matrice).

Le cordon de soudure peut être réalisé :

- *en mode simultané*, sur toute la longueur du joint, soit en utilisant un système de diodes distribuées le long de la trajectoire à réaliser, soit en utilisant un masque correspondant au négatif de la trajectoire;
- *par scanner*, le faisceau laser est déplacé à grande vitesse, un grand nombre de fois le long du joint, à grande fréquence, grâce à un système de miroirs commandés numériquement (tête galvanométrique). On obtient dans ce cas une irradiation quasi-simultanée de l'ensemble du joint ;
- *par balayage*, méthode qui consiste soit à déplacer le faisceau laser le long du plan de joint, les composants à souder restant fixes, soit à déplacer l'échantillon, le faisceau restant fixe . Ce balayage s'effectue avec des vitesses typiques de quelques mètres à quelques dizaines de mètres par minute.

### 1.3.4. Les configurations

Deux types d'assemblage de thermoplastiques sont réalisables par laser :

- le soudage par transmission (Through-transmission laser welding)
- le soudage bord à bord (laser butt welding)

#### a- Le soudage par transmission

Le procédé de soudage par transmission nécessite, d'une part, qu'une partie de l'assemblage soit transparente, ce qui permet le passage du faisceau sans trop de perte de puissance, et que, d'autre part, l'autre partie à assembler soit absorbante à la longueur d'onde du laser, c'est dans la partie absorbante que se produit l'effet thermique. La chaleur créée est ensuite transmise par conduction dans la partie transparente, les deux matériaux fondant à l'interface. Le cordon de soudure se forme par l'interpénétration des chaînes moléculaires sous l'action de la pression (figure 1.10).

La conductivité thermique des polymères étant faible, la fusion se produit généralement dans une zone très mince (environ 0,2 mm).

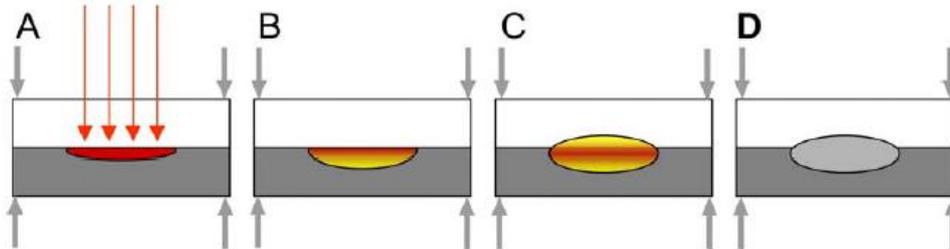


Figure 1.10: Etapes du soudage

- (A) absorption; (B) échauffement local du polymère absorbant;  
(C) transfert thermique par conduction; (D) refroidissement et formation du cordon soudé

La maîtrise du procédé nécessite de connaître les aspects liés :

#### a) au matériau -

- propriétés optiques - coefficient d'absorption, indice de réfraction;
- propriétés thermophysiques - microstructure, densité, température de fusion, capacité thermique, conductivité thermique;

#### b) additifs - propriétés optiques;

- forme, taille et concentration des particules,

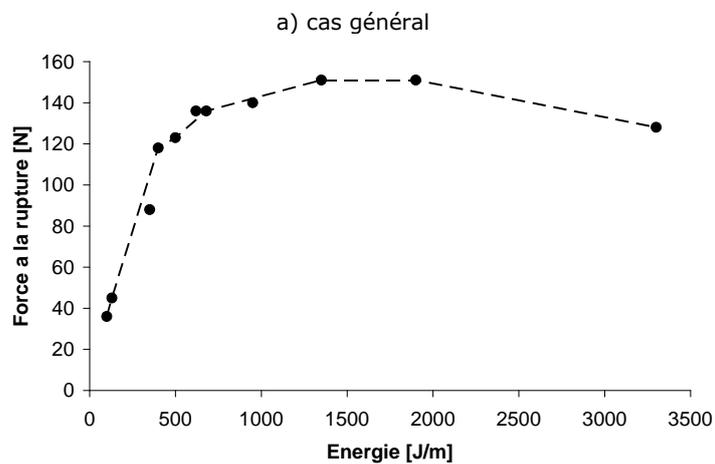
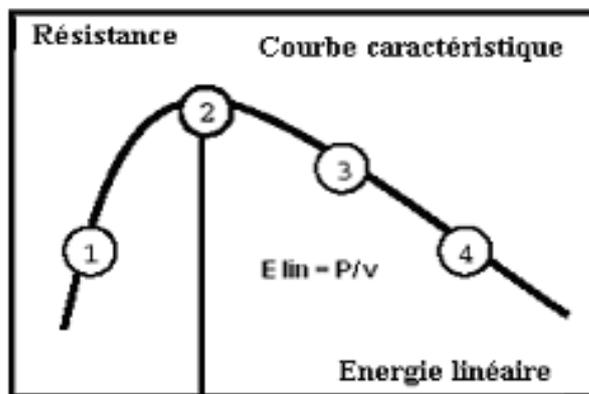
#### c) faisceau laser - longueur d'onde, distribution de l'intensité, diamètre du spot laser;

**d) paramètres du processus** – fluence laser, vitesse relative faisceau laser—échantillon, pression de maintien des échantillons.

Dans la pratique industrielle, pour estimer le régime optimal de soudage, on utilise souvent une courbe caractéristique qui présente l'évolution des performances mécaniques en fonction de l'énergie linéique introduite dans le processus (figure 1.11-a).

On distingue quatre régimes possibles:

- 1) le collage;
- 2) la soudure optimale;
- 3) l'initialisation de la dépolymérisation du matériau;
- 4) la décomposition du matériau.



b) polypropylène

Figure 1.11: Courbe caractéristique – résistance en fonction de l'énergie linéaire [Russek 01]

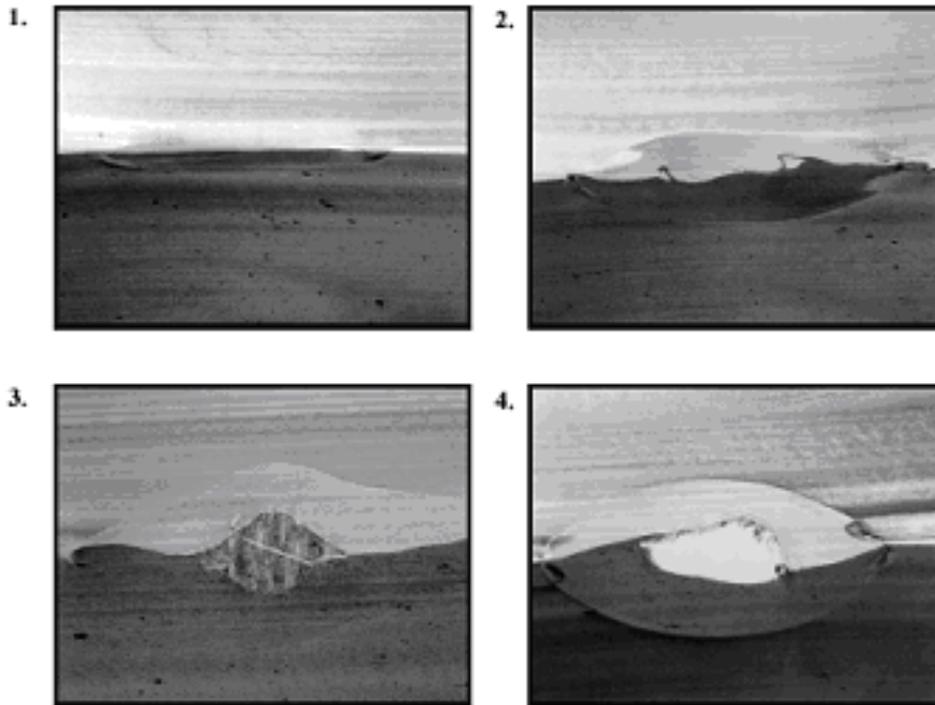


Figure 1.12: Sections transversales du cordon pour différentes valeurs de l'énergie linéaire [Russek 01]

1) collage; 2) soudure optimale 3) initiation de la dépolymérisation du matériau; 4) décomposition du matériau

Un autre aspect important est la concentration de l'absorbant en fonction de laquelle l'absorption de l'énergie laser à l'interface peut être surfacique ou volumique avec des conséquences directes sur la symétrie du cordon de soudure. Pour de faibles concentrations, la profondeur optique de pénétration du faisceau ( $\delta_{opt}$ ) augmente, et l'absorption se fait dans le volume du deuxième polymère (figure 1.13-a). En conséquence, la température atteinte est modérée et le volume chauffé dans le polymère transparent est réduit, conduisant à un cordon asymétrique avec une pénétration insuffisante dans l'élément polymère supérieur ( $h_2 < h_1$ ).

Pour des concentrations élevées,  $\delta_{opt}$  diminue, (figure 1.13-b). L'absorption se fait dans un volume réduit permettant le développement de températures élevées dans ce volume. Le transfert thermique vers la composante transparente est de ce fait plus efficace et le cordon résultant est alors symétrique.

En conclusion,  $\delta_{opt}$  est inversement proportionnelle à la concentration de l'absorbant et directement proportionnelle au volume fondu.

A titre d'exemple, l'évolution du rapport entre le substrat transparent fondu et le substrat absorbant fondu en fonction de la concentration de l'absorbant, dans le cas du PP, est représentée dans la figure 1.14. Pour de faibles concentrations ( $cc < 1\%$ ), l'absorption a un caractère volumique, tandis que pour des concentrations plus élevées, l'absorption devient surfacique. Ainsi, on peut déterminer la concentration nécessaire pour réaliser un soudage bord à bord ( $cc < 1\%$ ) ou un soudage par transparence ( $cc > 1\%$ ).

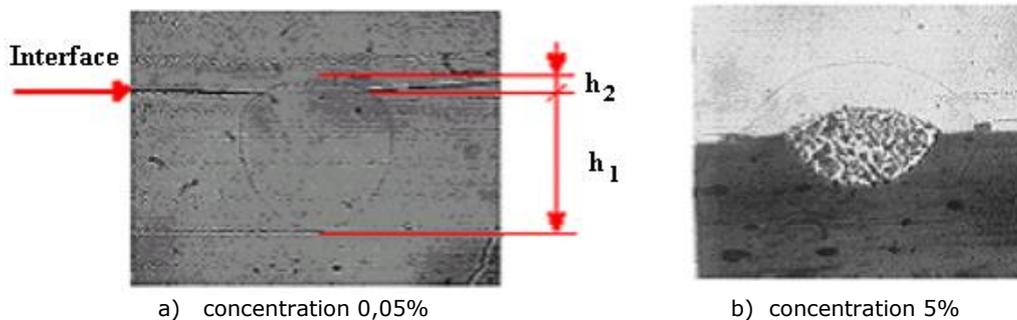


Figure 1.13: Influence de la concentration de l'absorbant sur la symétrie du cordon (polymère - PP,  $I = 2,8 \text{ Wmm}^{-2}$ ,  $t = 4\text{s}$ ) [Abed 01]

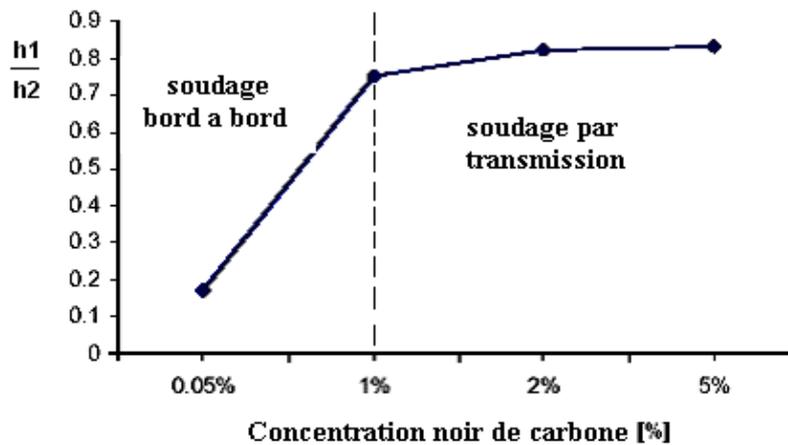


Figure 1.14: Evolution du rapport substrat transparent fondu, substrat absorbant fondu en fonction de la concentration de l'absorbant [Abed 01]

### **b - Le soudage bord à bord**

Ce procédé peut être comparable au soudage conventionnel par lame chauffante (figure 1.15-a), quand l'irradiation se fait à l'aide d'un miroir de déflexion positionné entre les deux éléments à assembler, ou au soudage conventionnel de métaux (figure 1.15-b). Il nécessite deux matériaux partiellement absorbants pour assurer l'absorption et donc l'échauffement à l'interface de ces deux éléments. Dans le premier cas, après le retrait du miroir, les bords sont réunis et mis en pression pour former le joint, tandis que pour le deuxième, la mise en pression est faite pendant l'irradiation. Les principaux avantages du soudage bord à bord sont essentiellement une vitesse d'exécution plus grande et un chauffage plus homogène.

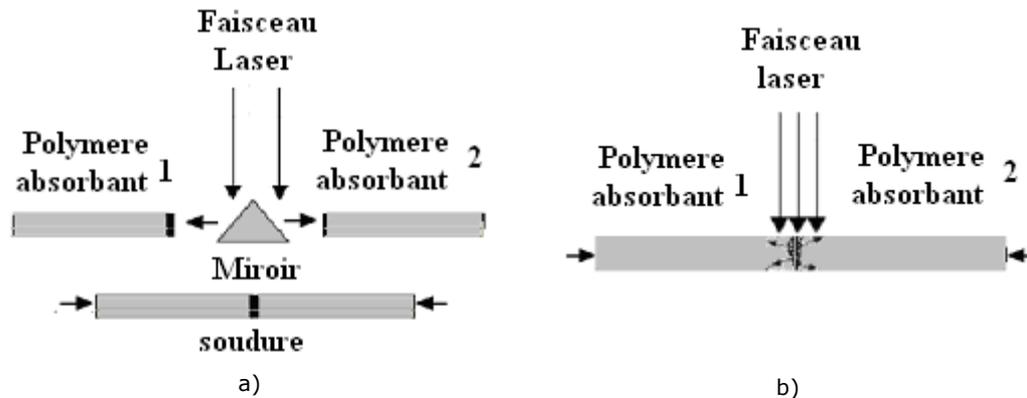


Figure 1.15: Le soudage bord a bord [Kagan 02]

Outre le fait que la qualité du soudage représente un des principaux avantages de ce procédé les autres avantages recensés par Kagan sont :

- l'absence de contact physique entre les éléments à assembler et la source d'échauffement;
- une ZAT réduite;
- des trajectoires complexes possibles (y compris en 3 dimensions);
- une vitesse de soudage importante;
- une absence de vibration, ce qui permet l'assemblage de produits fragiles;
- une possibilité d'automatisation.

Kagan énonce également les contraintes suivantes :

a) sur le procédé:

- la nécessité d'un contact intime entre les deux éléments polymères

b) sur les matériaux :

- une zone suffisante de recouvrement des plages de températures des deux polymères ( $T_v$  ou  $T_f < T < T_{\text{dégradation}}$ );
- une compatibilité structurale des deux polymères (par exemple, l'impossibilité d'assembler un matériau amorphe avec un matériau un cristallin) ;
- une compatibilité chimique de macromolécules afin de favoriser leur inter-diffusion;
- une adaptation du matériau (ajout d'additifs) qui puisse modifier sa transparence.

Les contraintes liées à l'adaptation du matériau commencent à être éliminées grâce à l'apparition de nouveaux colorants.

## 1.4. Conclusions

Les différents phénomènes mis en jeu lors du soudage laser de polymères sont clairement identifiés.

L'objectif de ce travail est d'une part, d'apporter une meilleure compréhension des phénomènes de diffusion induits par la présence des inhomogénéités dans la matrice du polymère semi-transparent, d'autre part de quantifier l'influence de ces phénomènes sur la faisabilité d'un assemblage de deux polymères par faisceau laser.

## 2. L'INTERACTION LASER - POLYMERES SEMI-TRANSPARENTS - LE PHENOMENE DE DIFFUSION

---

De façon générale, lorsqu'une onde électromagnétique traverse un milieu matériel, celle-ci va être atténuée par un phénomène d'extinction, somme de deux processus : l'absorption et la diffusion, l'importance de chacun étant fonction des propriétés optiques du milieu.

L'*absorption* se produit si la fréquence des photons incidents correspond à une « fréquence » associée à une transition énergétique (électronique, vibrationnelle, rationnelle) des molécules irradiées. On a alors une conversion d'une partie de l'énergie incidente en une autre forme d'énergie (agitation thermique).

Le phénomène de *diffusion* décrit la trajectoire du rayonnement lumineux à travers le milieu. Il est fortement lié à l'indice de réfraction. Tant que celui-ci reste constant, la trajectoire sera rectiligne, mais, si à l'intérieur du milieu, il apparaît des fluctuations d'indice de réfraction sur de petites échelles (présence d'inclusions, d'inhomogénéités), une partie de la lumière incidente sera renvoyée dans d'autres directions. On parle alors de diffusion.

Largement étudiée par les physiciens pendant ces trente dernières d'années, la diffusion de la lumière trouve beaucoup d'applications dans des domaines variés. Dans la littérature, on distingue deux types de problèmes [Gouesbet 99] : *le problème direct* qui consiste en la détermination des propriétés de la lumière diffusée à partir de la connaissance des caractéristiques de l'onde incidente et de la particule, c'est le cas exploré dans ce présent travail, et *le problème inverse* qui consiste en la détermination des caractéristiques des particules à partir de celles de la lumière diffusée.

### 2.1. Aspects théoriques

La physique de la diffusion est la même pour tous les systèmes : le champ électromagnétique incident fait osciller les charges électriques contenues dans la matière. Ces charges électriques se comportent alors comme des dipôles électriques oscillant à la fréquence du champ appliqué et émettent un rayonnement secondaire polarisé dans certaines directions. Cette radiation secondaire est nommée radiation diffusée par la matière. On peut écrire :

$$\text{diffusion} = \text{excitation} + \text{réémission}.$$

Dans une direction donnée, le champ résultant est obtenu en superposant les ondes diffusées tout en prenant en compte leurs différences de phase. En général, les phases varient avec les directions de diffusion, l'amplitude du champ diffusé change donc en fonction de ces mêmes directions.

Si la taille de la particule est petite par rapport à la longueur d'onde, toutes les ondes secondaires sont en phase, et il n'y a alors que très peu de variation de l'intensité diffusée avec la direction.

Si la taille de la particule augmente, des discontinuités (nœuds et ventres), dues à l'annulation ou à l'amplification mutuelle des ondes secondaires diffusées

apparaissent alors et on obtient « une figure de diffusion » - c'est effet s'appelle alors effet de diffraction

De manière générale, les relations de phase entre les ondes diffusées dépendent de facteurs géométriques (direction de diffusion, taille et forme des particules). Mais l'amplitude et la phase des moments dipolaires induits pour une fréquence donnée, dépendent des caractéristiques de la particule (indice de réfraction).

Ainsi, l'aspect fondamental dans la description du phénomène de diffusion est la détermination du champ électromagnétique dans tous les points de la particule diffusante et du milieu hôte.

On trouve aujourd'hui des théories qui décrivent la diffusion de la lumière par des particules, soit en faisant une approximation qui s'avère valide dans certains cas pour certaines classes des particules, soit en fournissant des solutions exactes.

Parmi les théories fournissant des solutions exactes, la *théorie de Lorenz-Mie* [Mie 1908] décrit spécifiquement la diffusion d'une onde plane par une sphère homogène, isotrope et non magnétique, dont la taille est comparable à la longueur d'onde de la radiation électromagnétique. Ces dernières années, on trouve dans la littérature plusieurs variantes de cette théorie qui permettent des approches particulières en ce qui concerne la forme des particules (sphéroïdes, cylindres etc.) et la taille de ces particules ([Maheu 88] [Gouesbet 00])

Lorsque les particules sont petites par rapport à la longueur d'onde, ou deviennent très grandes devant la longueur d'onde, on trouve des approximations qui fournissent des résultats satisfaisants : la *théorie de Rayleigh* dans le premier cas, qui considère la particule comme un dipôle élémentaire excité [Kastler 52] [Brun'05], et *l'optique géométrique*, dans le deuxième cas, quand la diffusion peut être décrite en termes de réfraction, réflexion et diffraction [Bohren 96] [Hulst 00] [Nussenzeig 80] [Quirantes 01].

Ainsi, en prenant comme critère le paramètre de taille de la particule supposée sphérique  $x = \frac{ndn_h}{\lambda}$ , où  $n_h$  est l'indice de réfraction du milieu hôte,  $d$ , le diamètre de la sphère et  $\lambda$  la longueur d'onde de la radiation dans le vide, on peut identifier trois situations, et donc trois traitements possibles de ce phénomène, comme l'illustre la figure ci-dessous (figure 2.1).

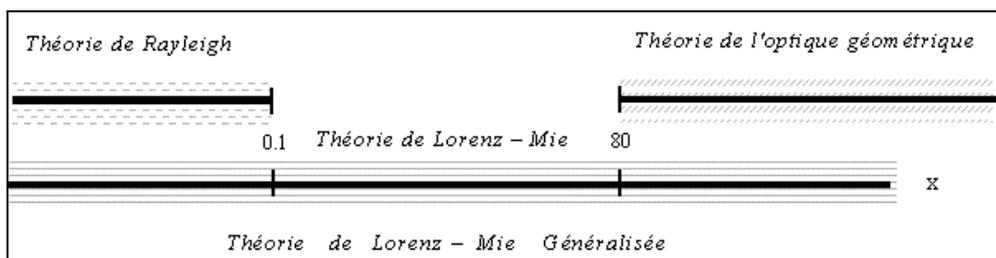


Figure 2.1: Les théories de diffusion et leur domaine de validité

### 2.1.1. Diffusion de la lumière sur une particule : la théorie de Mie

La théorie de Lorenz-Mie est une théorie complexe qui fournit les solutions pour les équations de Maxwell. Cette théorie est largement détaillée dans le livre de Bohren and Huffman [Bohren 96]. Nous ne rappelons ici que les principales

grandeurs permettant de caractériser les propriétés diffusantes, d'un diffuseur isolé ou d'un ensemble de diffuseurs.

Il existe une relation linéaire entre l'amplitude du champ diffusé et celle du champ incident (relation 2.1) qui s'écrit :

$$\begin{bmatrix} E_{II\ s} \\ E_{\perp\ s} \end{bmatrix} = - \frac{e^{ik(r-z)}}{-ikr} \begin{bmatrix} S_2 & S_3 \\ S_4 & S_1 \end{bmatrix} \begin{bmatrix} E_{II\ i} \\ E_{\perp\ i} \end{bmatrix} \quad (2.1)$$

où  $\begin{bmatrix} S_2 & S_3 \\ S_4 & S_1 \end{bmatrix}$  est la matrice d'amplitude de diffusion et  $k = 2\pi/\lambda$  - le nombre d'onde. Les termes  $S_j$  ( $j = 1, 2, 3, 4$ ) dépendent de l'angle de diffusion  $\theta$  et de l'angle azimutal  $\varphi$  ou seulement de  $\theta$  en symétrie azimutale et sont exprimés, dans le cas d'une sphère, selon les relations suivantes :

$$S_1 = \sum_n \frac{2n+1}{n(n+1)} (a_n \pi_n + b_n \tau_n), \quad S_2 = \sum_n \frac{2n+1}{n(n+1)} (a_n \tau_n + b_n \pi_n) \quad (2.2)$$

$S_3 = S_4 = 0$  où  $a_n, b_n$  sont les coefficients d'expansion du champ diffusé

$$a_n = \frac{m\psi_n(mx)\psi_n'(x) - \psi_n(x)\psi_n'(mx)}{m\psi_n(mx)\xi_n'(x) - \xi_n(x)\psi_n'(mx)}, \quad b_n = \frac{\psi_n(mx)\psi_n'(x) - m\psi_n(x)\psi_n'(mx)}{\psi_n(mx)\xi_n'(x) - m\xi_n(x)\psi_n'(mx)} \quad (2.3)$$

avec :  $m$  - indice de réfraction relative,  $x$  - paramètre de taille,  $\xi, \psi$  - les fonctions de Riccati- Bessel.

Les fonctions angulaires  $\pi_n$  et  $\tau_n$  sont construites à partir du polynôme de Legendre :

$$\pi_n = \frac{P_n^1(\theta)}{\sin(\theta)}, \quad \tau_n = \frac{dP_n^1(\theta)}{d\theta} \quad (2.4)$$

#### A. Section efficace de diffusion, d'extinction et fonction de phase

Pour caractériser la capacité à diffuser d'une particule isolée, présente dans un milieu hôte homogène, on utilise la notion de *section efficace de diffusion*  $C_{sca}$ . Si on suppose que cette particule est éclairée par une onde plane (ou un faisceau collimaté d'extension latérale très importante), les sections efficaces de diffusion  $C_{sca}$ , d'extinction  $C_{ext}$  et d'absorption sont exprimées par :

$$C_{sca} = \frac{2\pi}{k^2} \sum_{n=1}^{\infty} (2n+1) (|a_n|^2 + |b_n|^2), \quad C_{ext} = \frac{2\pi}{k^2} \sum_{n=1}^{\infty} (2n+1) \Re(a_n + b_n) \quad (2.5)$$

$$C_{abs} = C_{ext} - C_{sca}$$

En ramenant ces sections efficaces  $C$  à l'aire transversale de la sphère, soit  $\pi r^2$ ,  $r$  étant le rayon de la particule, on obtient les efficacités  $Q$  :

$$Q_{ext} = \frac{C_{ext}}{\pi r^2}, \quad Q_{sca} = \frac{C_{sca}}{\pi r^2}, \quad Q_{abs} = \frac{C_{abs}}{\pi r^2} \quad (2.6)$$

On a alors :  $Q_{abs} = Q_{ext} - Q_{sca}$

$$Q_{ext} = \frac{2}{x^2} \sum_{n=1}^{\infty} (2n+1) \Re(a_n + b_n), \quad Q_{sca} = \frac{2}{x^2} \sum_{n=1}^{\infty} (2n+1) (|a_n|^2 + |b_n|^2) \quad (2.7)$$

La relation entre les intensités du champ diffusé  $I_s$  et incident  $I_i$  est obtenue à partir de la relation (2.1) et prend la forme :

$$I_s = p(\theta) I_i \quad (2.8)$$

où  $p(\theta)$  est la *fonction de phase*, analogue à une indicatrice de diffusion qui décrit la redistribution de l'énergie dans tout l'espace.

En fonction de l'état de polarisation de la radiation incidente, la fonction de phase prend les formes suivantes :

- pour une lumière incidente polarisée parallèlement au plan de diffusion, la radiation diffusée va être aussi parallèlement polarisée au plan de diffusion :

$$I_s = (S_{11} + S_{12}) \cdot I_i \quad (2.9)$$

$$\text{où} \quad S_{11} = \frac{1}{2} (|S_2|^2 + |S_1|^2) \quad S_{12} = \frac{1}{2} (|S_2|^2 - |S_1|^2)$$

- pour une lumière incidente polarisée perpendiculairement au plan de diffusion, la radiation diffusée va être aussi perpendiculairement polarisée au plan de diffusion

$$I_s = (S_{11} - S_{12}) \cdot I_i \quad (2.10)$$

- pour une lumière incidente non polarisée en moyennant les relations (2.9) et (2.10)

$$I_s = S_{11} \cdot I_i \quad (2.11)$$

Normalisée, la fonction de phase indique la probabilité pour qu'un photon incident sur la direction reparte dans un angle solide, autour d'une direction donnée.

Le diagramme de diffusion (figure 2.2) (ou représentation angulaire de la fonction de phase) donne une image suggestive sur la physique de la diffusion en relevant sa sensibilité extrême à la taille, à la forme et à l'orientation de la particule.

Pour des paramètres de taille faibles (domaine de Rayleigh), le diagramme de diffusion est isotrope pour une polarisation perpendiculaire (figure 2.2-b) et enregistre deux maxima vers l'avant et vers l'arrière ( $0^\circ$  et  $180^\circ$ ) et deux minima à  $90^\circ$  et  $270^\circ$  pour une polarisation parallèle au plan de diffusion. En conséquence, la lumière non polarisée (figure 2.2-a) sera complètement polarisée pour deux angles. Dans ce domaine, le diagramme de diffusion ne dépend pas de la forme de la particule.

Quand la taille de la particule devient comparable à la longueur d'onde de la radiation incidente, le diagramme de diffusion devient asymétrique avec "plus" de radiation diffusée vers l'avant (figure 2.3-a). On observe également que les lobes de diffusion deviennent de plus en plus allongés avec l'augmentation de la taille de la particule, la contribution de la diffraction à la diffusion devenant importante. On enregistre aussi l'apparition d'ondulations (figure 2.3-b) (maxima et minima) dues à l'interférence entre la radiation diffusée provenant des différentes parties de la particule (pour un indice de réfraction donné, le nombre de maxima fournit une bonne mesure du rayon de la sphère).

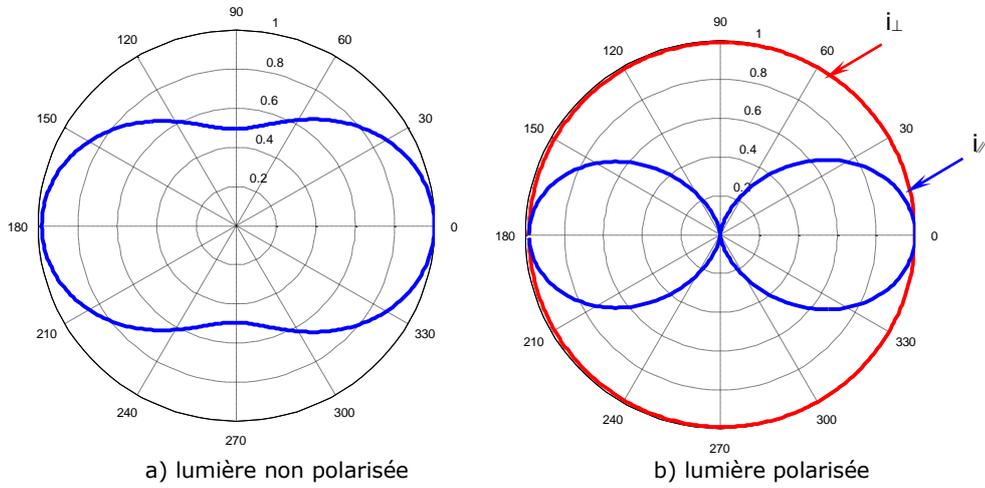


Figure 2.2: Diagramme de diffusion dans le domaine Rayleigh

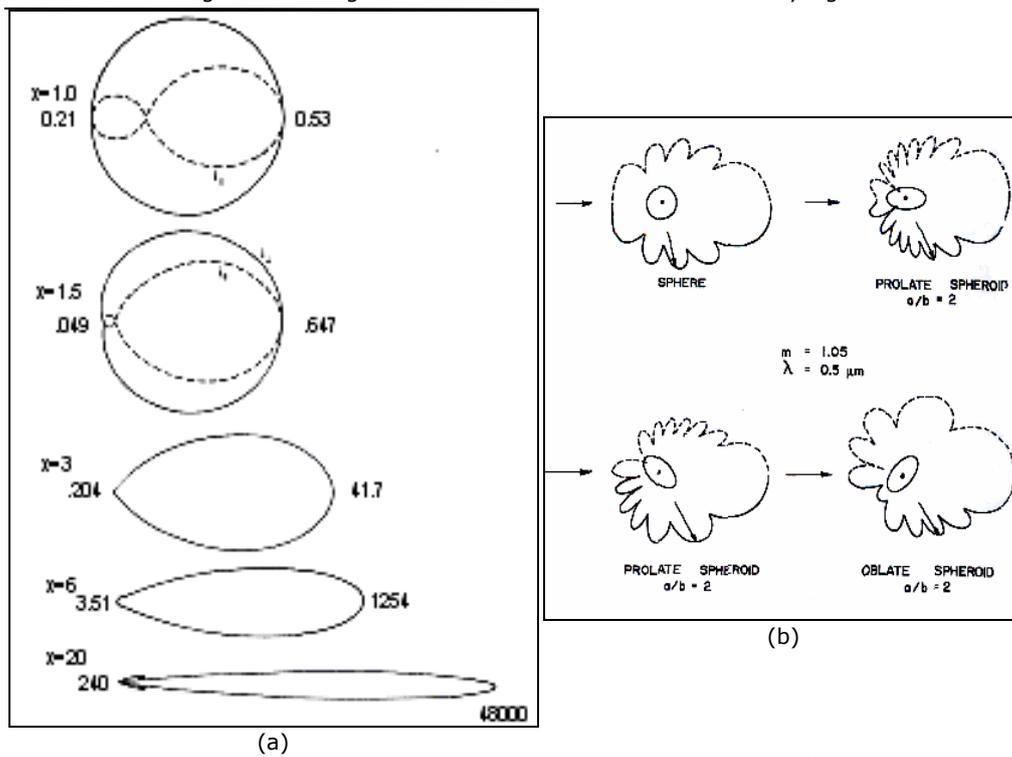


Figure 2.3: L'influence de la taille de particule (a) et de l'orientation (b) [Bohren 96]

Le degré d'anisotropie de la diffusion est mesuré par le paramètre d'anisotropie  $g$  qui est défini comme la moyenne du cosinus de l'angle de diffusion. Pour une diffusion isotrope sa valeur est nulle ( $g = 0$ ). Lorsqu'il tend vers 1, la diffusion s'effectue plutôt vers avant, dans la direction de propagation de la radiation incidente et lorsqu'il tend vers -1 la diffusion se fait vers l'arrière (rétrodiffusion).

### B. Libre parcours moyen

Pour caractériser un ensemble de diffuseurs, il est nécessaire de définir quelques grandeurs supplémentaires :

- le coefficient d'extinction  $k_{ext} = N \cdot C_{ext}$  [ $m^{-1}$ ], avec N – nombre de particules
- le coefficient de diffusion  $k_{sca} = N \cdot C_{sca}$  [ $m^{-1}$ ]
- le coefficient et d'absorption  $a_{abs} = k_{ext} - k_{sca}$

Les inverses des ces coefficients sont interprétés comme de distances moyennes sur lesquelles un photon peut être diffusé ou absorbé,

- le libre parcours moyen d'extinction  $l_{ext} = \frac{1}{k_{ext}}$ ,
- le libre parcours moyen de diffusion  $l_{sca} = \frac{1}{k_{sca}}$
- le libre parcours moyen d'absorption  $l_{abs} = \frac{1}{a_{abs}}$ .

### 2.1.2. La méthode de Monte Carlo

Il s'agit d'une méthode statistique qui génère des nombres pseudo-aléatoires en relation avec les fonctions de densité de probabilité liées au système, largement utilisée [Prah1'89], [Lavigne 99], [Johnson 03], [McNeil 01], [Roman 05] [Chicea'05] pour décrire le comportement optique de la radiation électromagnétique en milieu diffusant. Pour la propagation de la lumière, il s'agit de « tirs » aléatoires de rayons lumineux. Dans le cas d'un milieu diffusant, la probabilité pour qu'un photon soit diffusé dans un angle solide autour d'une direction donnée, est fournie par la fonction de phase. On suppose que chaque faisceau de lumière est dispersé dans une seule direction et qu'il se termine, soit s'il est entièrement absorbé, soit s'il émerge de la couche diffusante. Le nombre de faisceaux utilisé pour la simulation détermine la précision des résultats.

### 2.1.3. Les régimes de diffusion (simple, multiple)

Dans le cas d'un ensemble de diffuseurs, on peut définir, suivant les valeurs relatives du libre parcours moyen de diffusion  $l_{sca}$  et l'épaisseur du milieu L, différents régimes de diffusion [Simonot 02]:

- **si  $L \ll l_{ext}$  – régime balistique** : la diffusion est très faible, le milieu hétérogène peut être assimilé à un milieu homogène et la propagation de la lumière peut être considérée comme linéaire ;
- **si  $L \sim l_{ext}$  – régime de diffusion simple** : la lumière est diffusée en moyenne une fois au cours de sa traversée de l'échantillon. Alors, l'intensité diffusée par N particules est égale à N fois l'intensité diffusée par une particule isolée, donnée par la théorie de Rayleigh ( $x \rightarrow 0$ ), la théorie de Mie ( $0.1 < x < 80$ ) ou la théorie de l'optique géométrique ( $x \rightarrow \infty$ );
- **si  $L \gg l_{ext}$  – régime de diffusion multiple** : – quand au cours de la traversée du milieu particulière interviennent plusieurs événements interactifs (c'est à dire deux diffusions sur deux particules successives, ou une diffusion sur une particule suivie d'une absorption par une autre particule), on a le régime de diffusion multiple.

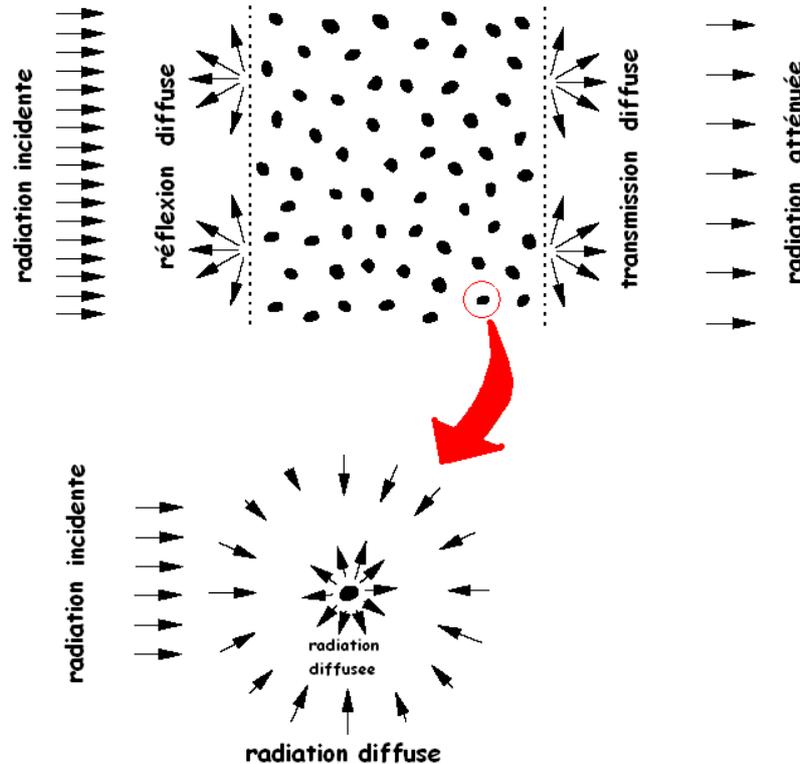


Figure 2.4: Diffusion multiple dans un milieu hétérogène [Mishchenko 04]

En régime de diffusion multiple, chaque particule va recevoir un flux incident atténué et un flux diffusé par les autres particules (figure 2.4). Selon la concentration particulaire du milieu ou la distance moyenne entre les particules, on peut distinguer deux régimes de diffusion ([Churchill 60] [Caron 03]) :

- pour une concentration particulaire élevée, les positions des particules dans le milieu hôte ne sont pas aléatoires ; elles ne peuvent pas s'auto pénétrer et il y a des corrélations sur leurs positions, il existe alors une relation de phase entre les champs diffusés par les différentes particules. On parle alors de **diffusion multiple cohérente** ou **dépendante en champ lointain**. Dans ce cas, on enregistre une diminution de l'efficacité de la diffusion ;
- si les particules sont suffisamment éloignées les unes des autres, on peut faire une approximation, qui repose sur l'idée que, du fait des positions aléatoires des diffuseurs, les phases des différentes ondes diffusées sont complètement décorréélées. On se trouve alors dans un **régime de diffusion multiple** dit **incohérente** ou **indépendante**. Dans ce cas les intensités diffusées peuvent être additionnées.

A titre d'exemple, le graphe publié par Cartigny et al (figure 2.5), permet de situer selon le paramètre de taille et la fraction volumique des diffuseurs dans un régime de diffusion.

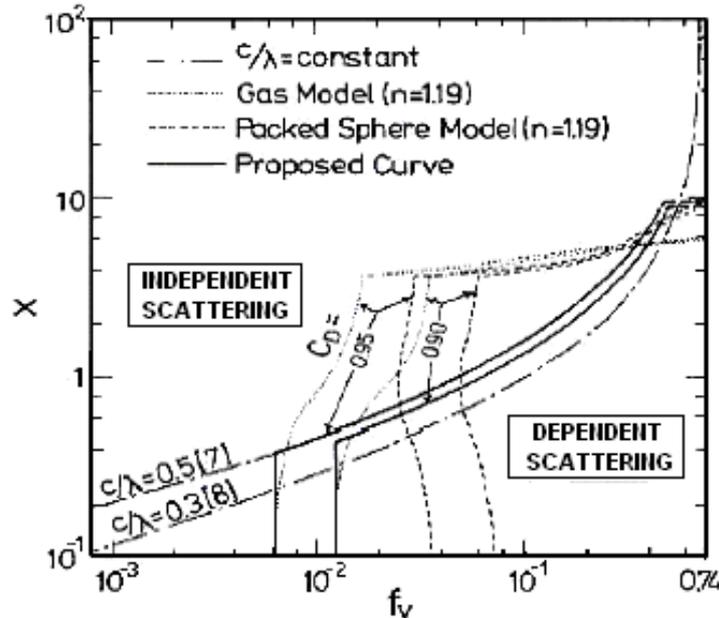


Figure 2.5: Graphe montrant les régimes de diffusion dépendante et indépendante [Cartigny'86]

$x$  = paramètre de taille ;  $f_v$  = fraction volumique des diffuseurs ;  $c/\lambda$  - distance moyenne libre entre les particules/ longueur d'onde ;  $CD$  = efficacité dépendante/ efficacité indépendante

Sur ce graphe, on observe que les effets de diffusion dépendante en champ lointain sont beaucoup plus facilement rencontrés pour de petites particules. Pour observer la diffusion dépendante lorsque la taille des particules croît, il faut une fraction volumique plus importante. Aussi la transition entre les deux régimes de diffusion s'effectue d'une manière graduelle et le choix d'une délimitation est donc, dans une certaine mesure, un peu arbitraire.

Examinons à présent, dans le cadre de la diffusion indépendante, comment est progressivement diffusé un faisceau collimaté. Considérons une plaque infiniment large d'épaisseur  $L$  et un nombre de particules diffusantes par unité de volume, noté  $N$ . Le coefficient d'extinction est :  $k_{ext} = N C_{ext} = N C_{abs} + N C_{sca}$  si les particules sont identiques

où  $k_{ext} = \sum_j N_j C_{ext,j}$  pour un mélange de particules,  $N_j$ , le nombre de particules

de type  $j$  et  $C_{ext,j}$  la section transversale d'extinction correspondante.

Si le faisceau collimaté incident possède une intensité  $I_i$ , l'intensité transmise  $I_t$  diminue selon la formule (2.12) :

$$I_t = I_i \exp(-k_{ext}L) \quad (2.12)$$

De façon générale, pour rester dans ce régime, il est nécessaire de respecter la condition  $k_{ext} L \ll 1$ . Cette condition est un peu moins stricte, si la contribution de la diffusion à l'atténuation totale est petite.

Donc, il est clair que si  $C_{sca}$ , ou  $N$  ou  $L$  augmentent, la contribution de la diffusion multiple à l'intensité sur la direction de propagation du faisceau augmente aussi et on peut alors plus l'ignorer.

## 2.2. Modélisation numérique de la diffusion dans les milieux hétérogènes

### 2.2.1. Les hypothèses

Comme la famille de polymères thermoplastiques comporte une grande variété de matériaux amorphes ou semi-cristallins avec des charges, des adjuvants, des pigments ou colorants, on se trouve dans le cas d'un milieu qui présente des hétérogénéités sur des échelles variées. La modélisation physique de la diffusion de la radiation électromagnétique par un tel milieu demande alors, dans un premier temps, de poser des hypothèses simplificatrices afin d'aboutir à des modèles plus simples. Ces hypothèses doivent être validées, ou si ce n'est pas le cas, l'écart par rapport à ces hypothèses ne doit pas avoir de conséquences importantes sur le résultat.

Nous considérerons :

- une matrice (polymère amorphe) non absorbante ou peu absorbante idéalisée comme un milieu homogène, caractérisé par un seul indice de réfraction et un coefficient d'absorption négligeable ou faible (l'absorption n'est pas dominante dans le processus d'extinction);
- des charges individualisées en particules et non des structures plus complexes telles que des agrégats;
- des particules non absorbantes identiques : même taille, même forme (éventuellement sphériques), même indice complexe de réfraction ;
- une répartition des particules homogène.

#### **Interaction radiation électromagnétique – milieu hétérogène**

A l'intérieur du milieu hétérogène on peut avoir deux interactions élémentaires : une diffusion par une particule isolée et une absorption par le milieu, décrites par les lois et les paramètres suivants (figure 2.6) :

INTERACTIONS	LOIS	PARAMETRES
absorption par le milieu	loi de Beer- Lambert	- coefficient d'absorption (lié à la partie imaginaire de l'indice de réfraction du milieu)
diffusion par une particule isolée	théorie de Mie	- indice de réfraction complexe relatif de la particule par rapport au milieu - taille et forme de la particule

Figure 2.6: Lois et paramètres associés à l'interaction radiation électromagnétique – milieu hétérogène

#### **Passage vers un régime de diffusion multiple**

On distingue deux étapes principales chacune faisant intervenir certaines hypothèses :

- A partir de la **théorie de Mie**, on détermine les coefficients d'absorption, de diffusion et la fonction de phase pour :
  - une particule isolée dans un milieu homogène non absorbant;
- Calcul statistique – **Méthode de Monte Carlo**.
  - diffusion multiple incohérente et particules identiques (la fonction de phase est la même pour toutes les particules).

Ces hypothèses seront conservées dans notre cas, mais des extensions sont possibles à d'autres situations :

- **forme de particule régulière** – la théorie de Lorenz – Mie généralisée (GLMT) développée par le Laboratoire d'Énergétique des Systèmes et Procédés permet de calculer le champ diffusé par des cylindres, des sphéroïdes, etc. [Gouesbet 00]
- **milieu hôte absorbant** – dans le cas d'un milieu absorbant les expressions des coefficients  $a_n$ ,  $b_n$ ,  $c_n$  et  $d_n$  du développement des champs en harmoniques sphériques ainsi que la fonction de phase, déterminées par la théorie de Mie [Bohren96], peuvent être généralisés à un milieu d'indice de réfraction complexe. Le paramètre de taille est alors lui-même complexe. Il est ensuite possible d'obtenir le coefficient d'extinction des particules seules dans un milieu absorbant  $k_{extpart}$ , puis le coefficient d'extinction totale  $k_{ext}$  (comprenant l'absorption du milieu).

La simulation du phénomène de diffusion est faite à base d'un code développé par le COMplexe de Recherche Interprofessionnel en Aérothermochimie, Rouen (CORIA) et consiste à suivre les deux étapes mentionnées plus haut. L'organigramme du programme principal est représenté dans la figure 2.8.

Le système considéré comporte un milieu plan parallèle, infini dans les directions  $x$  et  $y$  et d'épaisseur  $L$  dans la direction  $z$  et illuminé par un faisceau Gaussien dans une incidence normale (figure 2.7).

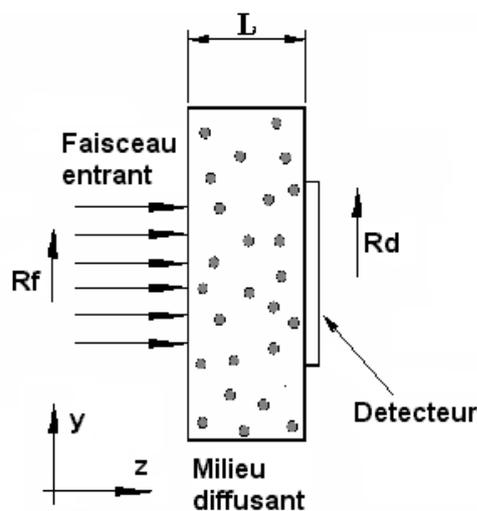


Figure 2.7 Le système considéré

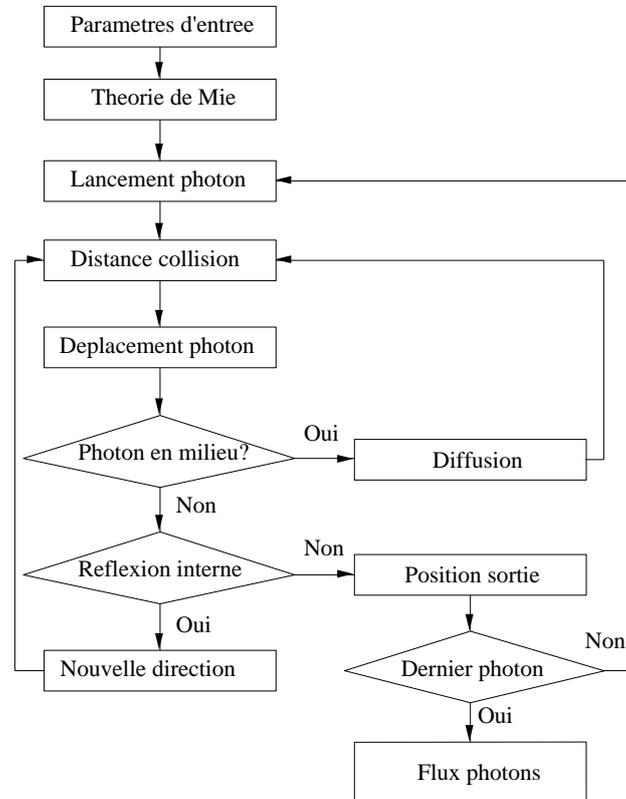


Figure 2.8 L'organigramme pour le code de calcul

### 2.2.2. Détermination des paramètres propres à la nature de la particule

Pour modéliser le comportement d'un faisceau laser traversant un milieu diffusant, il est nécessaire de connaître les paramètres propres à la nature de la particule. Ces sont les paramètres résultants de la théorie de Mie énumérés dans le chapitre précédent dont les plus importantes sont : la section efficace de diffusion  $C_{sca}$  qui donne la probabilité qu'une diffusion se produise, et la fonction de phase, qui décrit la probabilité qu'un photon incident soit diffusé dans un angle solide  $d\Omega$ . Ils sont calculés pour une seule particule de taille, de forme et d'indice connus (particule sphérique de rayon  $r$ , d'indice  $n_p$ , dans un milieu d'indice  $n_h$  et pour la longueur d'onde  $\lambda$  de la radiation incidente).

### 2.2.3. Calcul statistique pour un ensemble de diffuseurs

A partir des paramètres obtenus par la théorie de Mie et des caractéristiques du milieu que nous définissons, la diffusion du faisceau dans un milieu contenant un ensemble de particules peut être décrite en suivant les trajectoires individuelles d'un grand nombre de photons à travers le milieu considéré, lors de chaque diffusion.

### 2.2.3.1. Cas des particules monodispersées

#### A. Lancement du photon

Nous allons traiter trois cas différents en ce qui concerne le faisceau incident.

##### A.1 Faisceau gaussien

Considérant un faisceau incident gaussien, la distribution de l'énergie suit la forme :

$$E(r) = E_0 \cdot e^{-\frac{r^2}{r_0^2}} \quad (2.13)$$

où  $E_0$  est la densité d'énergie au centre du faisceau ( $r = 0$ ), que l'on désignera par la suite par densité d'énergie sur l'axe et  $r_0$  est le rayon pour lequel cette densité est multipliée par  $1/e$ . Pour déterminer l'énergie élémentaire qui arrive sur un anneau de rayon  $r$  et épaisseur  $dr$  nous pouvons écrire :

$$dE_l = E_{0l} \cdot e^{-\frac{r^2}{r_0^2}} \cdot 2 \cdot \pi \cdot r \cdot dr \quad (2.14)$$

Le nombre de photons étant proportionnel à l'énergie, on peut déterminer le nombre de photons lancés sur l'anneau de rayon  $r$  selon la formule :

$$N(r) \cdot dr = N_0 \cdot e^{-\frac{r^2}{r_0^2}} \cdot 2 \cdot \pi \cdot r \cdot dr \quad (2.15)$$

où  $N(r)$  [ $m^{-1}$ ] est la distribution de la densité de photons,  $N_0$  [ $m^{-2}$ ] est la densité de photons sur l'axe.

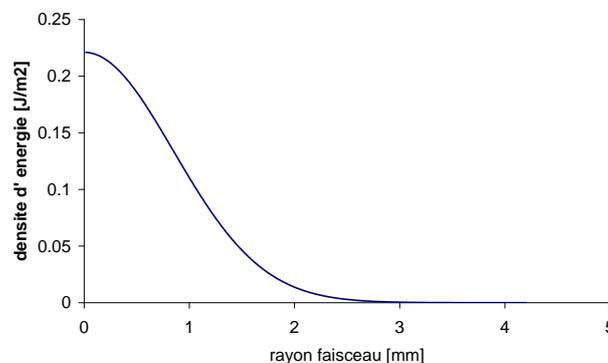


Figure 2.9: Densité d'énergie normalisée dans un faisceau gaussien

A partir de l'énergie totale (2.16) proportionnelle au nombre total de photons (2.17) on détermine la probabilité  $dp$  qu'un photon soit lancé sur l'anneau de rayon  $r$  et d'épaisseur  $dr$  (2.22) :

$$W = \int_0^{\infty} 2 \cdot \pi \cdot r \cdot E_0 \cdot e^{-\frac{r^2}{r_0^2}} dr = \pi \cdot r_0^2 \cdot E_0 \quad (2.16)$$

$$N_t = \pi \cdot r_0^2 \cdot N_0 \quad (2.17)$$

$$dP = P(r) \cdot dr = \frac{N(r) \cdot dr}{N_t} = \frac{N_0 \cdot e^{-\frac{r^2}{r_0^2}} \cdot 2 \cdot \pi \cdot r \cdot dr}{\pi \cdot r_0^2 \cdot N_0} = \frac{1}{r_0^2} \cdot 2 \cdot e^{-\frac{r^2}{r_0^2}} \cdot r \cdot dr \quad (2.18)$$

où  $P(r)$  est la fonction de la densité de probabilité.

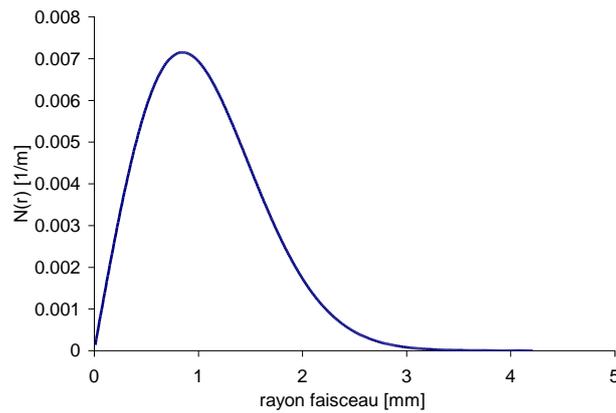


Figure 2.10 : Distribution de la densité de photons normalisée dans un faisceau gaussien

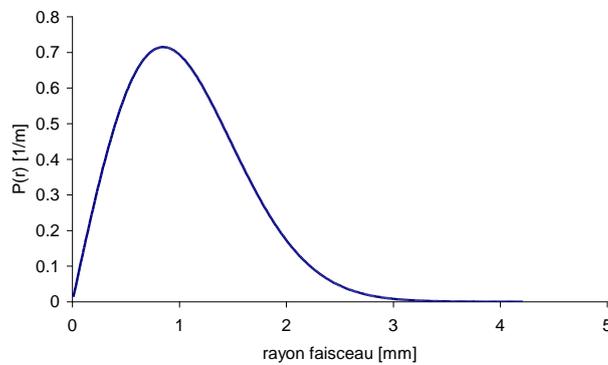


Figure 2.11 : La densité de probabilité

On obtient alors une fonction de répartition  $D$  (2.19) qui peut prendre toute valeur de l'intervalle  $[0,1]$  et qui permet d'utiliser un nombre aléatoire  $rnd$  uniforme distribué dans cet intervalle pour déterminer le rayon  $r$  d'où un photon sera lancé (2.20) :

$$D(r) = \int_0^r \frac{1}{r_0^2} \cdot 2 \cdot e^{-\frac{r^2}{r_0^2}} \cdot r dr = \left( 1 - e^{-\frac{r^2}{r_0^2}} \right) \quad (2.19)$$

$$\left(1 - e^{-\frac{r^2}{r_0^2}}\right) = rnd \quad \text{et} \quad r = r_0 \cdot \sqrt{-\ln(1 - rnd)} \quad (2.20)$$

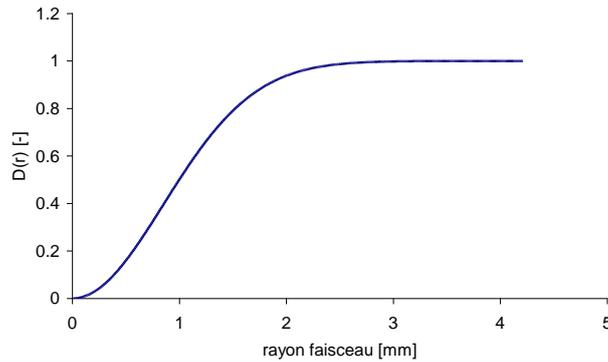


Figure 2.12: La fonction de répartition

Avec ce rayon  $r$  et un angle  $\alpha = 2\pi \cdot rnd$  choisi aléatoirement dans l'intervalle  $[0, 2\pi]$ , la position initiale du photon est spécifiée par les coordonnées cartésiennes

$$(x, y) : \begin{cases} x = r \cdot \cos(\alpha) \\ y = r \cdot \sin(\alpha) \end{cases} \quad (2.21)$$

A partir de cette position, le photon est orthogonalement inséré dans la plaque en réglant les cosinus directionnels à  $(0, 0, 1)$  :

$$\begin{cases} \mu_x = 0 \\ \mu_y = 0 \\ \mu_z = 1 \end{cases} \quad (2.22)$$

### A.2 Faisceau ayant un profil trapézoïdal de la distribution de l'énergie

Pour un faisceau collimaté avec un profil trapézoïdal, la distribution de l'énergie suit la forme :

$$E(r) = \begin{cases} E_0 & r \leq r_1 \\ E_0 \cdot \frac{r_2 - r}{r_2 - r_1} & r_1 < r \leq r_2 \\ 0 & r > r_2 \end{cases} \quad (2.23)$$

où  $E_0$  est la densité d'énergie sur l'axe et  $r_1$  et  $r_2$  sont les rayons caractéristiques. Pour déterminer l'énergie qui arrive sur un cercle de rayon  $r$  on a :

$$dW = \begin{cases} E_0 \cdot 2 \cdot \pi \cdot r \cdot dr & r \leq r_1 \\ E_0 \cdot \frac{r_2 - r}{r_2 - r_1} \cdot 2 \cdot \pi \cdot r \cdot dr & r_1 < r \leq r_2 \\ 0 & r > r_2 \end{cases} \quad (2.24)$$

Le nombre de photons étant proportionnel à l'énergie, on peut déterminer le nombre de photons lancés sur anneau de rayon  $r$  (figure 2.13) :

$$N(r) \cdot dr = \begin{cases} N_0 \cdot 2 \cdot n \cdot r \cdot dr & r \leq r_1 \\ N_0 \cdot \frac{r_2 - r}{r_2 - r_1} \cdot 2 \cdot n \cdot r \cdot dr & r_1 < r \leq r_2 \\ 0 & r > r_2 \end{cases} \quad (2.25)$$

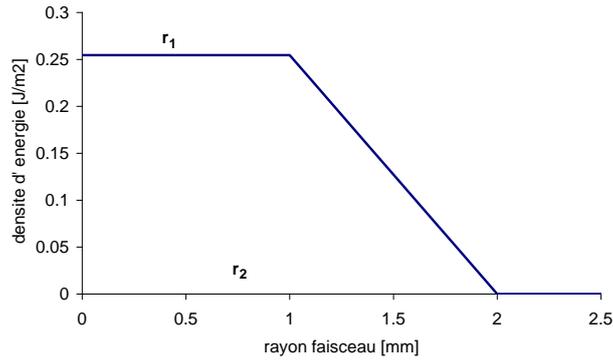


Figure 2.13: Densité d'énergie normalisée dans un faisceau collimaté avec un profil trapézoïdal

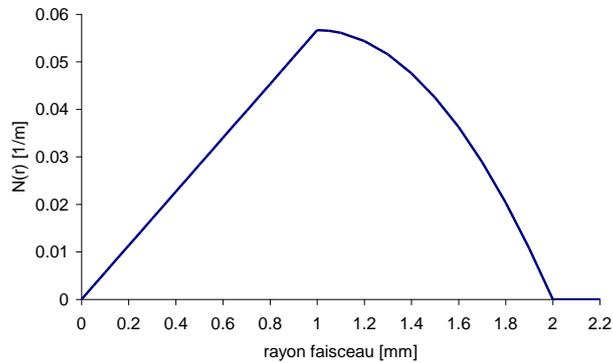


Figure 2.14: Distribution de la densité de photons normalisée dans un faisceau trapézoïdal

Sachant que l'énergie totale (décrite par 2. 26) est proportionnelle au nombre total de photons (2.27) on peut déterminer la probabilité qu'un photon soit lancé au rayon  $r$  (2.28) :

$$W = \int_0^{r_1} E_0 \cdot 2 \cdot n \cdot r \cdot dr + \int_{r_1}^{r_2} E_0 \cdot \frac{r_2 - r}{r_2 - r_1} \cdot 2 \cdot n \cdot r \cdot dr = \frac{E_0 \cdot n}{3} \cdot (r_1^2 + r_2^2 + r_1 \cdot r_2) \quad (2.26)$$

$$N_t = \frac{N_0 \cdot n}{3} \cdot (r_1^2 + r_2^2 + r_1 \cdot r_2) \quad (2.27)$$

$$P(r) \cdot dr = \begin{cases} \frac{6 \cdot r \cdot dr}{(r_1^2 + r_2^2 + r_1 r_2)} & r \leq r_1 \\ \frac{6 \cdot r \cdot (r_2 - r) \cdot dr}{(r_1^2 + r_2^2 + r_1 r_2) \cdot (r_2 - r_1)} & r_1 < r \leq r_2 \\ 0 & r > r_2 \end{cases} \quad (2.28)$$

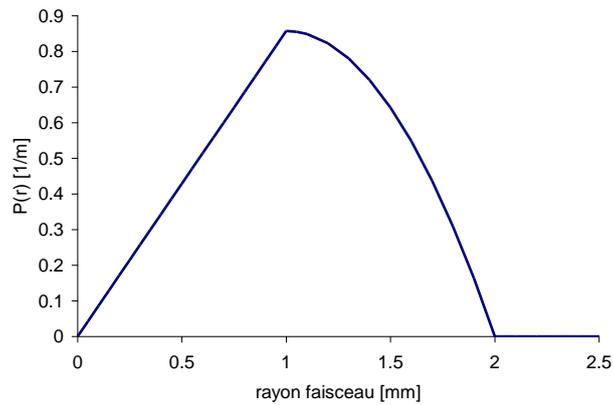


Figure 2.15 : La densité de probabilité

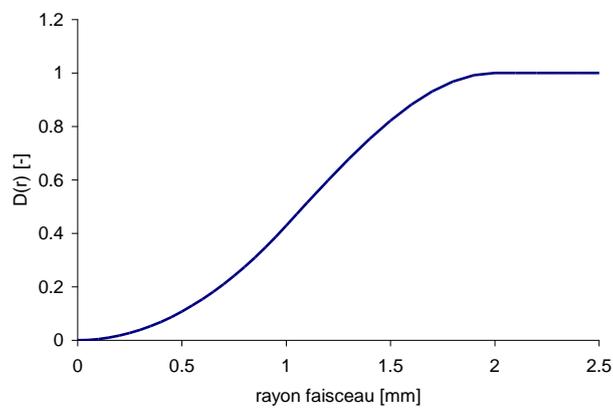


Figure 2.16: La fonction de répartition

On obtient alors une fonction de répartition  $D(r)$  (2.29) qui prend toute valeur de l'intervalle  $[0,1]$  et qui permet d'utiliser un nombre aléatoire  $rnd$  uniforme distribué dans cet intervalle pour déterminer le rayon  $r$  d'où un photon sera lancé (2.30) :

$$D(r) = \begin{cases} \frac{3 \cdot r^2}{r_1^2 + r_2^2 + r_1 r_2} & r \leq r_1 \\ \frac{3 \cdot \left( r_2 \cdot r^2 - \frac{2}{3} \cdot r^3 - \frac{2}{3} \cdot r_1^3 \right)}{\left( r_1^2 + r_2^2 + r_1 r_2 \right) \cdot (r_2 - r_1)} & r_1 < r \leq r_2 \\ 0 & r > r_2 \end{cases} \quad (2.29)$$

$$r = \sqrt{\text{rnd} \cdot \frac{\left( r_1^2 + r_2^2 + r_1 r_2 \right)}{3}} \quad (2.30)$$

### A.3 Faisceau ayant une distribution uniforme de l'énergie

Considérant le cas d'un faisceau incident cylindrique avec une distribution d'énergie uniforme (2.31) on suit un raisonnement similaire pour déterminer la probabilité qu'un photon soit lancé à un rayon  $r$  (2.32):

$$E(r) = \begin{cases} E_0 & r \leq r_0 \\ 0 & r > r_0 \end{cases} \quad (2.31)$$

$$P(r) \cdot dr = \begin{cases} \frac{2 \cdot r}{r_0^2} \cdot dr & r \leq r_0 \\ 0 & r > r_0 \end{cases} \quad (2.32)$$

La fonction de répartition devient :

$$D(r) = \begin{cases} \frac{r^2}{r_0^2} & r \leq r_0 \\ 1 & r > r_0 \end{cases} \quad (2.33)$$

Alors, le rayon est choisi selon la formule (2.34) :

$$r = r_0 \cdot \sqrt{\text{rnd}} \quad (2.34)$$

### B - Propagation du photon

Pour simuler la propagation, la méthode de Monte Carlo choisit une taille de pas différente pour chaque déplacement du photon. La taille du pas est calculée à partir de la distribution de probabilité pour le libre parcours moyen d'extinction  $l_{\text{ext}} = \ln(\xi) / k_{\text{ext}}$ ,  $l_{\text{ext}} \in [0, \infty]$ , où  $\xi$  est une variable aléatoire uniformément distribuée dans l'intervalle  $[0, 1]$  et  $k_{\text{ext}} = k_{\text{abs}} + k_{\text{sca}}$  le coefficient d'extinction, respectivement d'absorption et de diffusion.

### C- Diffusion d'un photon

Après que le photon ait rencontré une particule, il est dispersé selon la fonction de phase fournie par la théorie de Mie. Comme il a été précisé précédemment, la fonction de phase décrit la forme du champ diffusé autour de la particule. Lorsqu'elle est normalisée à 1, la fonction de phase peut également s'interpréter comme la probabilité qu'un photon incident dans une direction soit diffusé dans un angle solide  $d\Omega$  autour d'une autre direction (2.35) :

$$\int_0^{4\pi} p d\Omega = 1 \quad (2.35)$$

avec  $d\Omega = \sin(\theta) d\theta d\varphi$

Alors la fonction de phase pour une radiation polarisée :

$$\int_0^{2\pi} \int_0^{\pi} p \cdot \sin(\theta) d\theta d\varphi = 1 \quad (2.36)$$

Pour des particules sphériques et une radiation non polarisée, la fonction de phase ne dépend que de l'angle  $\theta$  entre les deux directions, c'est-à-dire que la diffusion est invariante par rotation du système et l'équation (2.40) devient :

$$\int_0^{2\pi} d\varphi \int_0^{\pi} p(\theta) \cdot \sin(\theta) d\theta = 1 \quad (2.37)$$

D'où :

$$\int_0^{\pi} 2 \cdot \pi \cdot p(\theta) \cdot \sin(\theta) d\theta = 1 \quad (2.38)$$

La densité de probabilité qu'un photon soit diffusé résulte de la formule :

$$P(\theta) = 2 \cdot \pi \cdot p(\theta) \cdot \sin(\theta) \quad (2.39)$$

Avec la fonction de répartition :

$$D(\theta) = \int_0^{\theta} 2 \cdot \pi \cdot p(\theta) \cdot \sin(\theta) d\theta \quad (2.40)$$

A partir de (2.40) et en choisissant un nombre aléatoire uniforme distribué dans l'intervalle (0,1) on obtient l'angle de diffusion  $\theta$  :

$$rnd = \int_0^{\theta} 2 \cdot \pi \cdot p(\theta) \cdot \sin(\theta) d\theta \quad (2.41)$$

Comme pour  $D(\theta)$ , il n'y a pas de formule analytique, la fonction de phase provenant d'un calcul numérique, on ne peut donc pas déterminer l'angle  $\theta$  de diffusion avec cette équation. Pour manipuler les données obtenues on passe aux sommes de Riemann, alors la densité de probabilité qu'un photon soit diffusé sur un angle  $\theta$  est donnée par :

$$P(\theta_i) = \frac{2 \cdot \pi \cdot p(\theta_i) \cdot \sin(\theta_i)}{\sum_0^{180} 2 \cdot \pi \cdot p(\theta_i) \cdot \sin(\theta_i) \cdot (\theta_{i+1} - \theta_i)} \quad (2.42)$$

où  $\theta$  prend des valeurs discrètes comprises entre 0 et 180.

Dans ce cas,  $D(\theta)$  devient :

$$D(\theta_i) = \frac{\sum_0^{\theta_i} 2 \cdot \pi \cdot p(\theta_i) \cdot \sin(\theta_i) \cdot (\theta_{i+1} - \theta_i)}{\sum_0^{180} 2 \cdot \pi \cdot p(\theta_i) \cdot \sin(\theta_i) \cdot (\theta_{i+1} - \theta_i)} \quad (2.43)$$

A partir de cette relation et en choisissant un nombre aléatoire  $rnd$  uniforme distribué entre 0 et 1, l'angle de diffusion résulte par interpolation linéaire (fig.6) :

$$\theta = \frac{\theta_{i+1} - \theta_i}{D(\theta_{i+1}) - D(\theta_i)} \cdot (rnd - D(\theta_i)) + \theta_i \text{ où } D(\theta_i) < rnd \leq D(\theta_{i+1}) \quad (2.44)$$

Les deux graphes sont réalisés pour les données d'entrée suivantes :

Longueur d'onde	$808 \cdot 10^{-9}$ [m]
Partie réelle de l'indice de réfraction	1,8
Partie imaginaire de l'indice de réfraction	$3 \cdot 10^{-5}$
Indice de réfraction de la matrice	1,49
Diamètre de la particule	$40 \cdot 10^{-9}$ [m]
Densité massique particules	2 [g.cm <sup>-3</sup> ]
Densité massique matrice	1,19 [g.cm <sup>-3</sup> ]
L'absorption de la matrice	$1 \cdot 10^{-9}$ [m <sup>-1</sup> ]

### D - Nouvelle direction

Après avoir subi une 1<sup>ère</sup> diffusion, on doit déterminer la nouvelle direction de propagation pour le photon diffusé. On considère le système fixe  $xyz$  avec les vecteurs  $i, j, k$  et le système  $x_1y_1z_1$  lié au photon de manière que  $z_1$  corresponde à la direction incidente et le plan  $x_1y_1$  est un plan de référence pour mesurer l'angle  $\varphi$  (figure.2.17).

La position du système  $x_1y_1z_1$  relatif au système  $xyz$  est obtenue par une première rotation avec l'angle  $\varphi$  par rapport au plan  $xy$  (système intermédiaire  $x_1'y_1'z_1'$ ) et une deuxième rotation avec angle  $\theta$  par rapport à la direction d'incidence (figure 2.18).

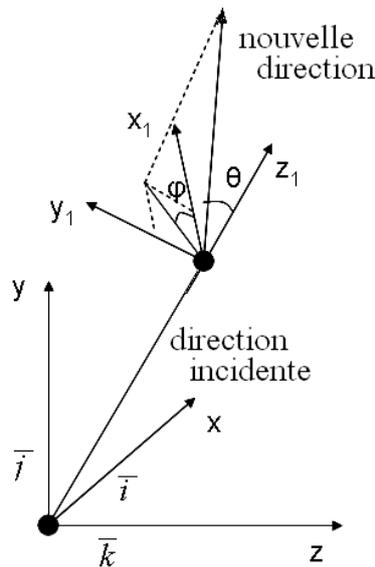


Figure 2.17 : Système utilisé pour décrire la propagation du photon



Et on peut écrire :

$$\begin{cases} \vec{i}_1 = \frac{\mu_z \cdot \mu_x}{\sqrt{1 - \mu_z^2}} \cdot \vec{i} + \frac{\mu_z \cdot \mu_y}{\sqrt{1 - \mu_z^2}} \cdot \vec{j} - \sqrt{1 - \mu_z^2} \cdot \vec{k} \\ \vec{j}_1 = -\frac{\mu_y}{\sqrt{1 - \mu_z^2}} \cdot \vec{i} + \frac{\mu_x}{\sqrt{1 - \mu_z^2}} \cdot \vec{j} \\ \vec{k}_1 = \mu_x \cdot \vec{i} + \mu_y \cdot \vec{j} + \mu_z \cdot \vec{k} \end{cases} \quad (2.49)$$

A partir de ces relations de passage d'un système à un autre on détermine le cosinus directeurs pour la nouvelle direction de propagation en fonction des cosinus directeurs de la direction incidente. Pour la nouvelle direction les vecteurs peuvent être écrits de la façon suivante :

$$\vec{z}_n = \sin(\theta) \cdot \cos(\varphi) \cdot \vec{i}_1 + \sin(\theta) \cdot \sin(\varphi) \cdot \vec{j}_1 + \cos(\theta) \cdot \vec{k}_1 \quad (2.50)$$

Et en faisant le passage d'un système à l'autre, on obtient :

$$\begin{aligned} \vec{z}_n = \sin(\theta) \cdot \cos(\varphi) \cdot \left( \frac{\mu_z \cdot \mu_x}{\sqrt{1 - \mu_z^2}} \cdot \vec{i} + \frac{\mu_z \cdot \mu_y}{\sqrt{1 - \mu_z^2}} \cdot \vec{j} - \sqrt{1 - \mu_z^2} \cdot \vec{k} \right) + \\ \sin(\theta) \cdot \sin(\varphi) \cdot \left( -\frac{\mu_y}{\sqrt{1 - \mu_z^2}} \cdot \vec{i} + \frac{\mu_x}{\sqrt{1 - \mu_z^2}} \cdot \vec{j} \right) + \cos(\theta) \cdot (\mu_x \cdot \vec{i} + \mu_y \cdot \vec{j} + \mu_z \cdot \vec{k}) \end{aligned} \quad (2.51)$$

Les cosinus directeurs pour la nouvelle direction peuvent donc s'écrire :

$$\begin{cases} \mu_x' = \frac{\sin(\theta)}{\sqrt{1 - \mu_z^2}} \cdot (\mu_z \cdot \mu_x \cdot \cos(\varphi) - \mu_y \cdot \sin(\varphi)) + \mu_x \cdot \cos(\theta) \\ \mu_y' = \frac{\sin(\theta)}{\sqrt{1 - \mu_z^2}} \cdot (\mu_z \cdot \mu_y \cdot \cos(\varphi) + \mu_x \cdot \sin(\varphi)) + \mu_y \cdot \cos(\theta) \\ \mu_z' = -\sin(\theta) \cdot \cos(\varphi) \cdot \sqrt{1 - \mu_z^2} + \mu_z \cdot \cos(\theta) \end{cases} \quad (2.52)$$

Pour le cas  $\mu_z = 1$ , comme les deux systèmes coïncident (2.53), les cosinus directeurs peuvent être déterminés à partir de (2.51) et (2.52).

$$\begin{cases} \vec{i}_1 = \vec{i} \\ \vec{j}_1 = \vec{j} \\ \vec{k}_1 = \vec{k} \end{cases} \quad (2.53)$$

$$\begin{cases} \mu_x' = \sin(\theta) \cdot \cos(\varphi) \\ \mu_y' = \sin(\theta) \cdot \sin(\varphi) \\ \mu_z' = \text{sign}(\mu_z) \cos(\theta) \end{cases} \quad (2.54)$$

### E- Réflexions à l'interface

On sait que à l'interface de deux matériaux dont les indices de réfraction sont différents  $n_1$  et  $n_2$ , une partie de la lumière va être réfléchi, l'angle de réflexion étant égal à l'angle d'incidence  $\theta_i$  et une partie va être transmise avec un angle de réfraction  $\theta_r$  résultant de la formule de Snell-Descartes :

$$n_1 \cdot \sin(\theta_i) = n_2 \cdot \sin(\theta_r) \quad (2.55)$$

A partir de cette formule, on détermine l'angle de réfraction en fonction de l'angle d'incidence :

$$\theta_r = \text{asin} \left[ \frac{n_1}{n_2} \cdot \sin(\theta_i) \right] \quad (2.56)$$

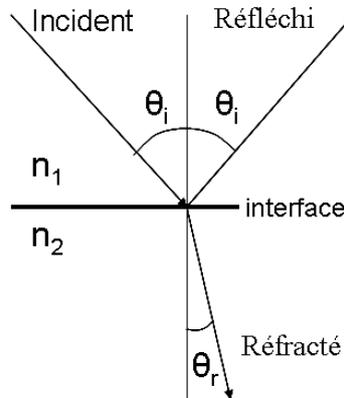


Figure 2.19 : La réflexion spéculaire et la réfraction à l'interface

Comme c'est bien connu, l'angle de réfraction peut être déterminé tant que :

$$-1 < \frac{n_1}{n_2} \cdot \sin(\theta_i) < 1 \quad (2.57a)$$

ce qui signifie qu'en fonction des indices de réfraction, il existe une limite, une valeur critique pour l'angle d'incidence en dessus de laquelle la lumière sera en totalité réfléchi. L'angle critique  $\theta_{ic}$  peut être déterminé à partir de l'inégalité (2.57 a) :

$$\theta_{II} = \text{asin} \left( \frac{n_2}{n_1} \right). \quad (2.58)$$

Donc, dans le cas d'un milieu homogène, non absorbant et une lumière polarisée, les facteurs de réflexion et transmission (aussi appelés réflectivité et transmittivité) sont donnés par les formules de Fresnel :

$$R_{II} = \frac{\text{tg}^2(\theta_i - \theta_r)}{\text{tg}^2(\theta_i + \theta_r)} \quad R_{\perp} = \frac{\sin^2(\theta_i - \theta_r)}{\sin^2(\theta_i + \theta_r)} \quad (2.59)$$

$$T_{II} = \frac{\sin(2 \cdot \theta_i) \cdot \sin(2 \cdot \theta_r)}{\sin^2(\theta_i + \theta_r) \cdot \cos^2(\theta_i - \theta_r)} \quad T_{\perp} = \frac{\sin(2 \cdot \theta_i) \cdot \sin(2 \cdot \theta_r)}{\sin^2(\theta_i + \theta_r)} \quad (2.60)$$

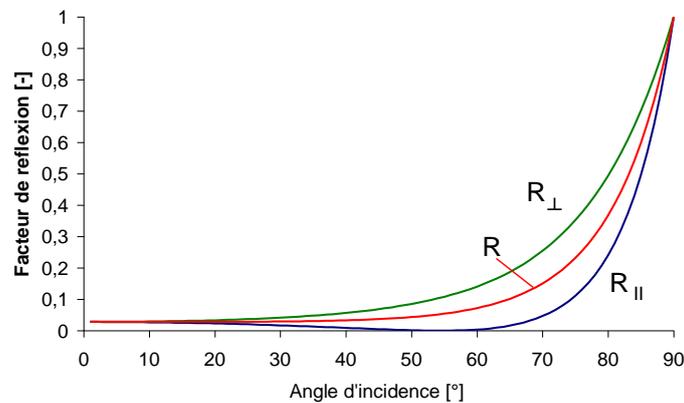
Et pour la lumière non polarisée :

$$R = \frac{1}{2} \cdot \left[ \frac{\operatorname{tg}^2(\theta_i - \theta_r)}{\operatorname{tg}^2(\theta_i + \theta_r)} + \frac{\sin^2(\theta_i - \theta_r)}{\sin^2(\theta_i + \theta_r)} \right] \quad (2.61)$$

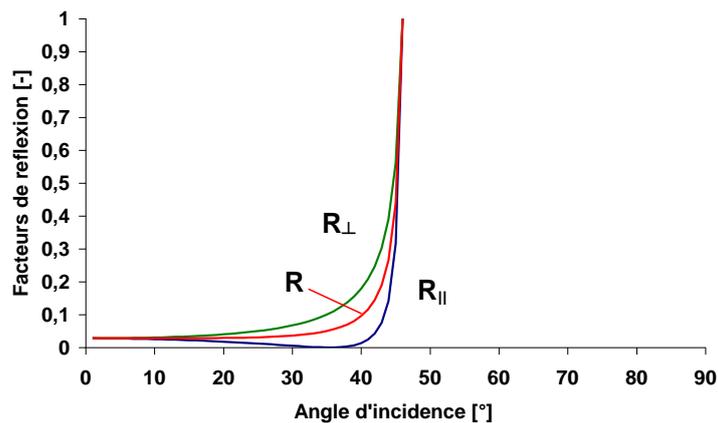
$$T = \frac{1}{2} \cdot \left[ \frac{\sin(2 \cdot \theta_i) \cdot \sin(2 \cdot \theta_r)}{\sin^2(\theta_i + \theta_r) \cdot \cos^2(\theta_i - \theta_r)} + \frac{\sin(2 \cdot \theta_i) \cdot \sin(2 \cdot \theta_r)}{\sin^2(\theta_i + \theta_r)} \right] \quad (2.62)$$

L'évolution de ces dernières en fonction de l'angle d'incidence pour une interface polymère ( $n_1 = 1,4$ ) - air ( $n_2 = 1$ ) et air - polymère est représentée dans la figure 2.20 a et b :

Dans le deuxième cas, les facteurs de réflexion ont des valeurs grandes dès que l'angle atteint  $46^\circ$ , les rayons arrivant donc aux angles supérieurs à cette valeur seront totalement réfléchis, tandis qu'une interface air - polymère permet la transmission même pour des angles d'incidence supérieurs  $70 - 80^\circ$ .



a)



b)

Figure 2.20: Facteurs de réflexion pour une interface air - polymère (a) et polymère - air (b)

## F - Les grandeurs enregistrés à la sortie du milieu

### Le flux sortant

A la sortie du milieu, on définit un détecteur constitué d'anneaux circulaires pour enregistrer les photons sortants et leurs positions à l'intérieur du faisceau. Tout au long de la traversée, on connaît exactement la position du chaque photon, et donc dès qu'il sort du milieu. On peut alors déterminer leurs positions sur l'aire du détecteur ( $d, y_d$ ).

Par rapport à l'axe du faisceau, on a un rayon de sortie :

$$r_d = \sqrt{x_d^2 + y_d^2} \quad (2.63)$$

Pour chaque anneau, on détermine l'énergie tombant sur sa surface :

$$E_{d_i} = \frac{W_i}{2 \cdot \pi \cdot r_i \cdot \Delta r} \quad (2.64)$$

où  $W_i$  est l'énergie totale des photons incidents dans l'intervalle  $i$ ,  $\Delta r$  la largeur de l'anneau (ou intervalle) et  $r_i$  est le rayon de l'intervalle  $i$   $r_i = (i + 0.5) \cdot \Delta r$

$$\text{Donc : } E_{d_i} = \frac{W_i}{2 \cdot \pi \cdot (i + 0.5) \cdot \Delta r^2} \quad (2.65)$$

On obtient une distribution de l'énergie du faisceau laser à la sortie de la plaque et en appliquant le même raisonnement sur la face avant de la plaque, on peut obtenir la distribution d'énergie pour le faisceau laser incident et rétro-diffusé (figure 2.21)

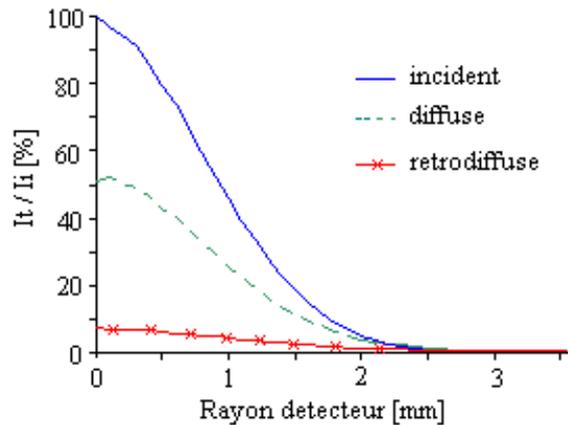


Figure 2.21 : Le profil du faisceau incident, diffusé et rétro -diffusé exprimé en pourcentage du faisceau incident pour une plaque de 2mm épaisseur ( $d = 0,25 \mu\text{m}$ ,  $n_p=1,8$ ,  $n_h= 1,49$ ,  $\lambda = 808 \text{ nm}$ ,  $f_v = 0,001$ )

Comme critères de comparaison entre le faisceau incident et le faisceau transmis diffusé ou rétro-diffusé on peut choisir les intensités sur l'axe du faisceau et les rayons où on trouve ces intensités multipliées par  $1/e^2$ .

### Distribution d'énergie sur l'épaisseur de la plaque

L'évolution du faisceau à l'intérieur du milieu diffusant peut être déterminée en définissant un certain nombre de plans et en quantifiant le nombre des photons

qui les traversent ainsi que leurs positions par rapport à l'axe du faisceau. (figure 2.22).

Dans le cas des particules ayant un diamètre de  $0,5\mu\text{m}$  les deux approximations pour l'évolution de l'intensité (a) et le rayon (b) sont données par les interpolations suivantes :

$$(a) \quad y = 15,767 \cdot x^3 - 39,451 \cdot x^2 - 18,064 \cdot x + 98,134$$

avec  $R^2 = 0,9561$ ,

$$(b) \quad y = 0,0381 \cdot x^6 - 0,2669 \cdot x^5 + 0,6257 \cdot x^4 - 0,7119 \cdot x^3 + 0,6957 \cdot x^2 - 0,0204 \cdot x + 1,4133$$

avec  $R^2 = 0,9998$

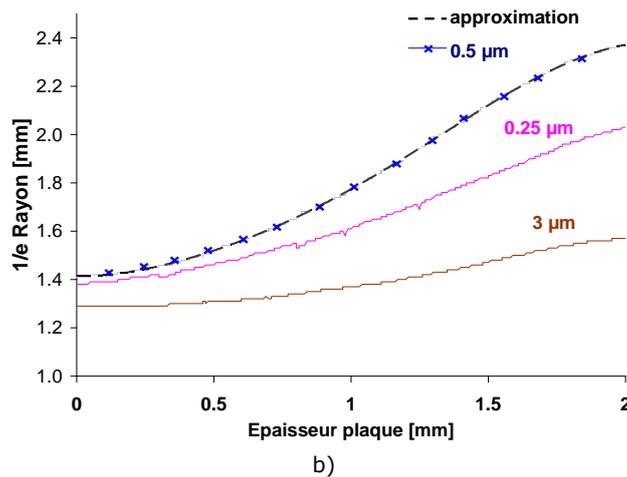
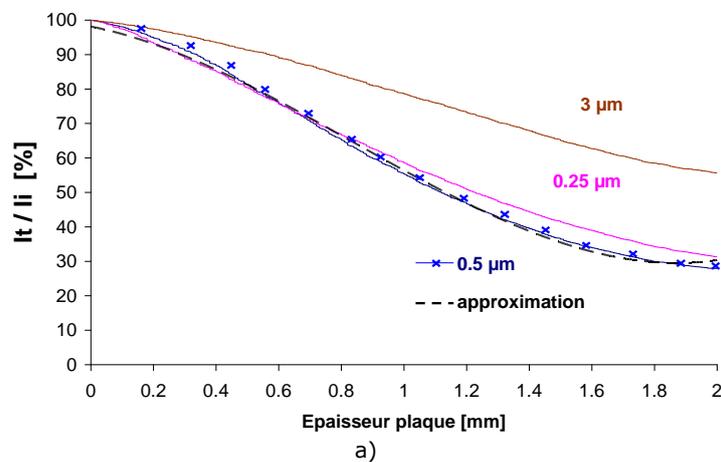


Figure 2.22 : Evolution du profil du faisceau sur l'épaisseur de la plaque en fonction du diamètre de la particule ( $n_p=1,8$ ,  $n_h= 1,49$ ,  $\lambda = 808 \text{ nm}$ ,  $f_v = 0,001$ )

### 2.2.3.2. Cas des particules polydispersées

Pour une polydispersion, il faut définir une distribution granulométrique en différentes classes de particules  $n(r)$  de rayon  $r$ . On peut alors définir des valeurs moyennes pondérées par la proportion de particules de chaque classe.

Ainsi, on définit une section efficace de diffusion moyenne tenant compte de la polydispersion :

$$\bar{C}_{sca} = \frac{\int_{r=0}^{\infty} n(r)C_{sca}(r) dr}{\int_{r=0}^{\infty} n(r) dr} \quad (2.66)$$

De même, on peut définir une section efficace d'absorption moyenne :

$$\bar{C}_{abs} = \frac{\int_{r=0}^{\infty} n(r)C_{abs}(r) dr}{\int_{r=0}^{\infty} n(r) dr} \quad (2.67)$$

La section efficace d'extinction moyenne est alors :

$$\bar{C}_{ext} = \bar{C}_{sca} + \bar{C}_{abs} \quad (2.68)$$

Pour les milieux faiblement absorbants  $\bar{C}_{abs}$  a des valeurs négligeables on a donc  $\bar{C}_{ext} \approx \bar{C}_{sca}$ . Le coefficient moyen d'extinction pour le milieu considéré est calculé en multipliant ce coefficient avec la concentration volumique moyenne en particules  $N$  (en nombre de particules par  $m^3$ ) :

$$\bar{k}_{ext} = N\bar{C}_{ext}.$$

La fonction de phase moyenne devient :

$$\bar{p}(\theta) = \frac{\int_{r=0}^{\infty} n(r)C_{ext}(r) p(r,\theta) dr}{\int_{r=0}^{\infty} n(r)C_{ext}(r) dr} \quad (2.69)$$

où  $p(r,\theta)$  est la fonction de phase pour une particule de rayon  $r$ . La densité de probabilité est alors traitée comme précédemment.

Considérons le cas d'une polydispersion avec une distribution normale (figure 2.23) pour les diamètres des particules :

$$n(r) = N_r \cdot e^{-\left(\frac{r-r_0}{\sigma}\right)^2}$$

où  $\sigma$  est l'écart type,  $r_0$  le rayon moyen,  $N_r$  nombre de particules correspondant à  $r_0$

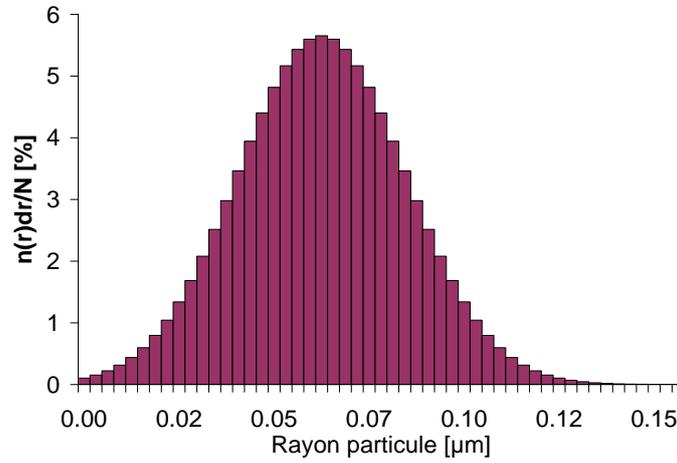
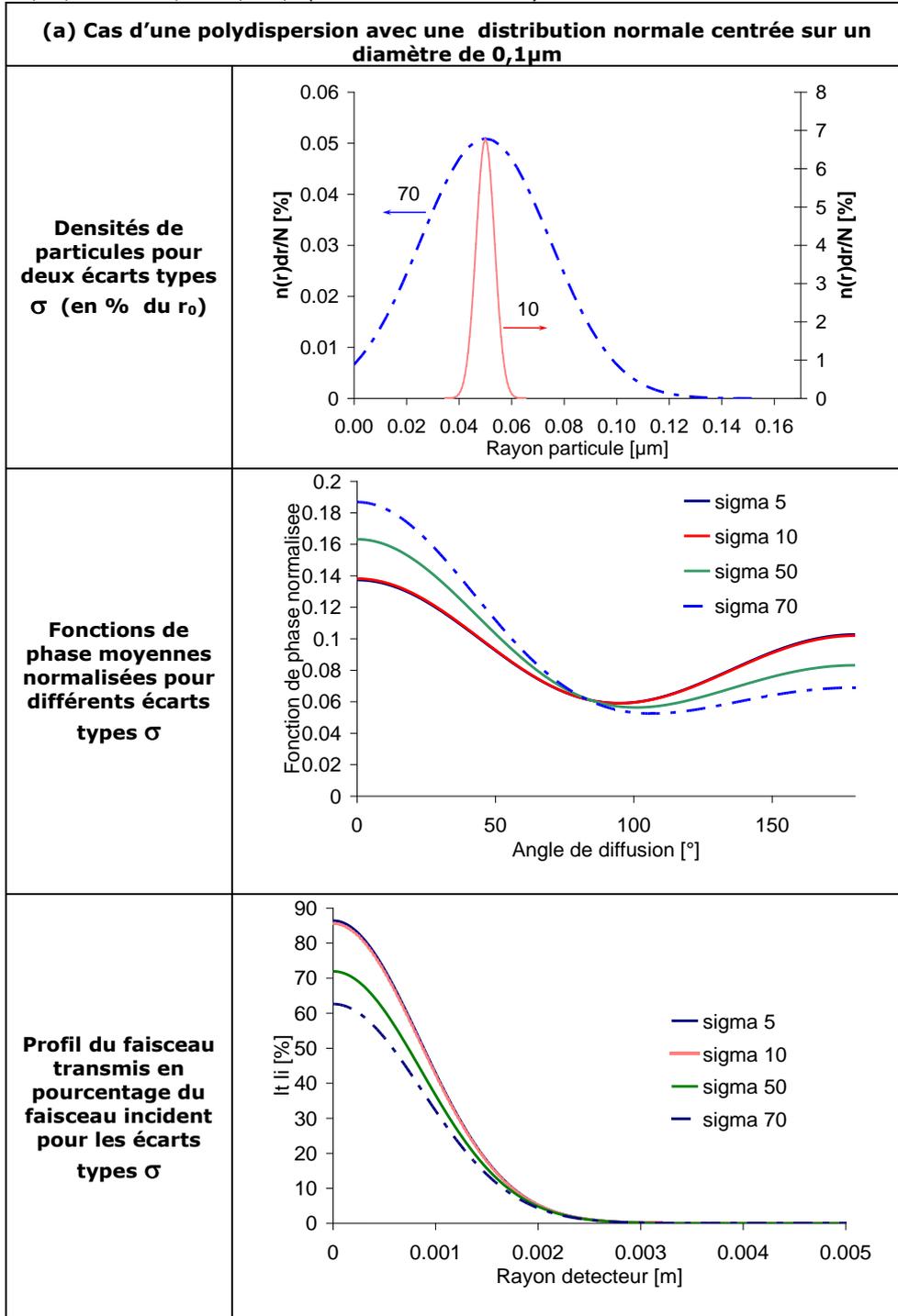
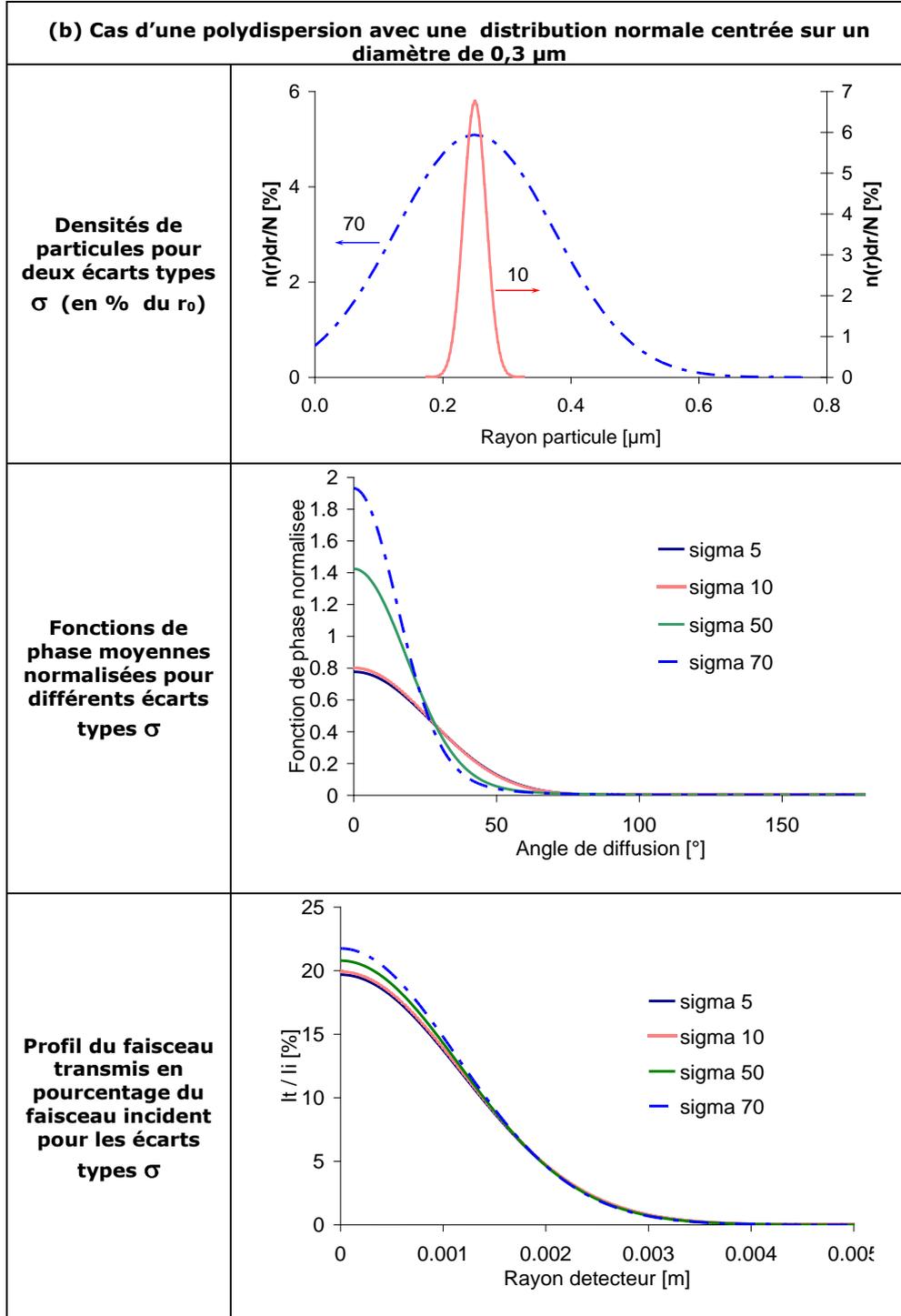
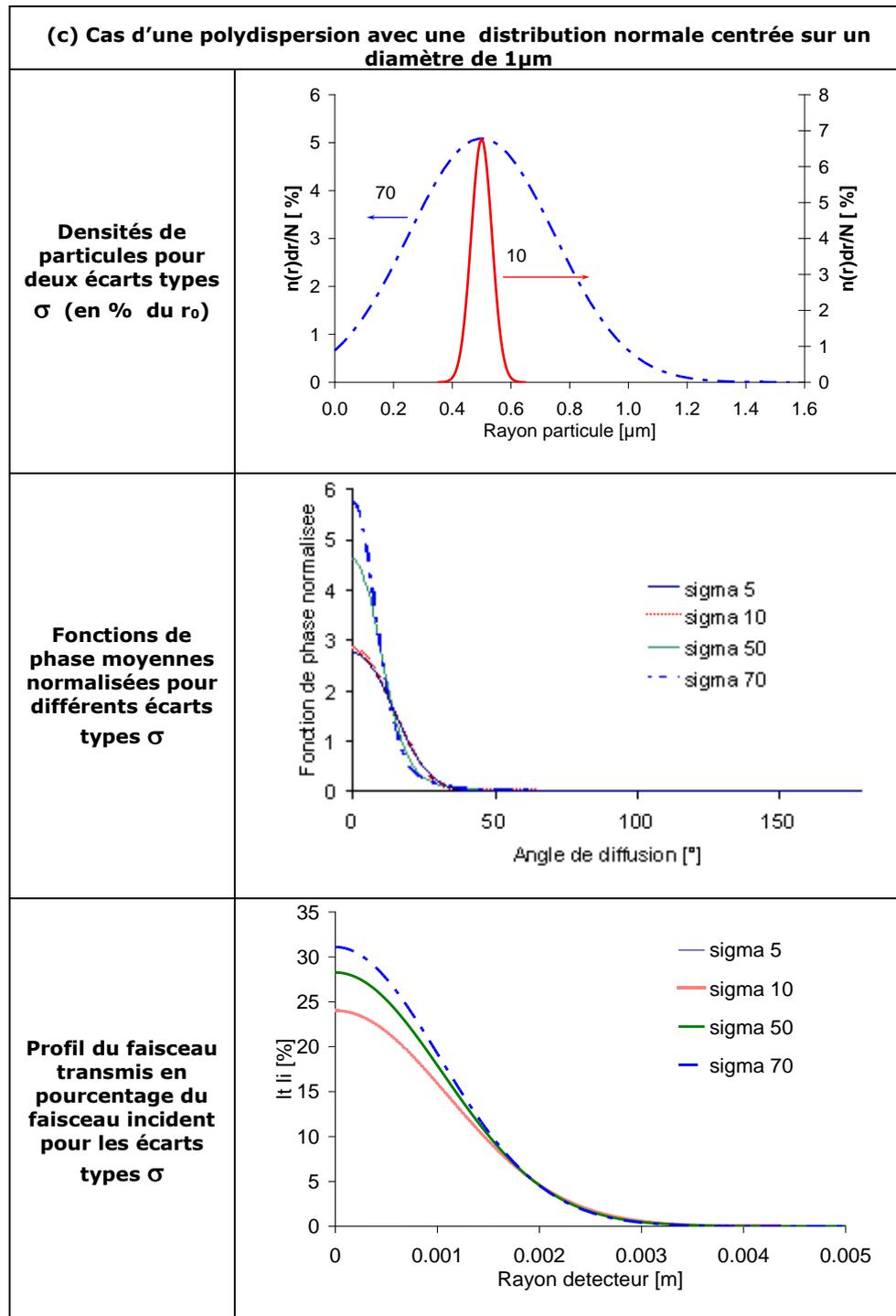


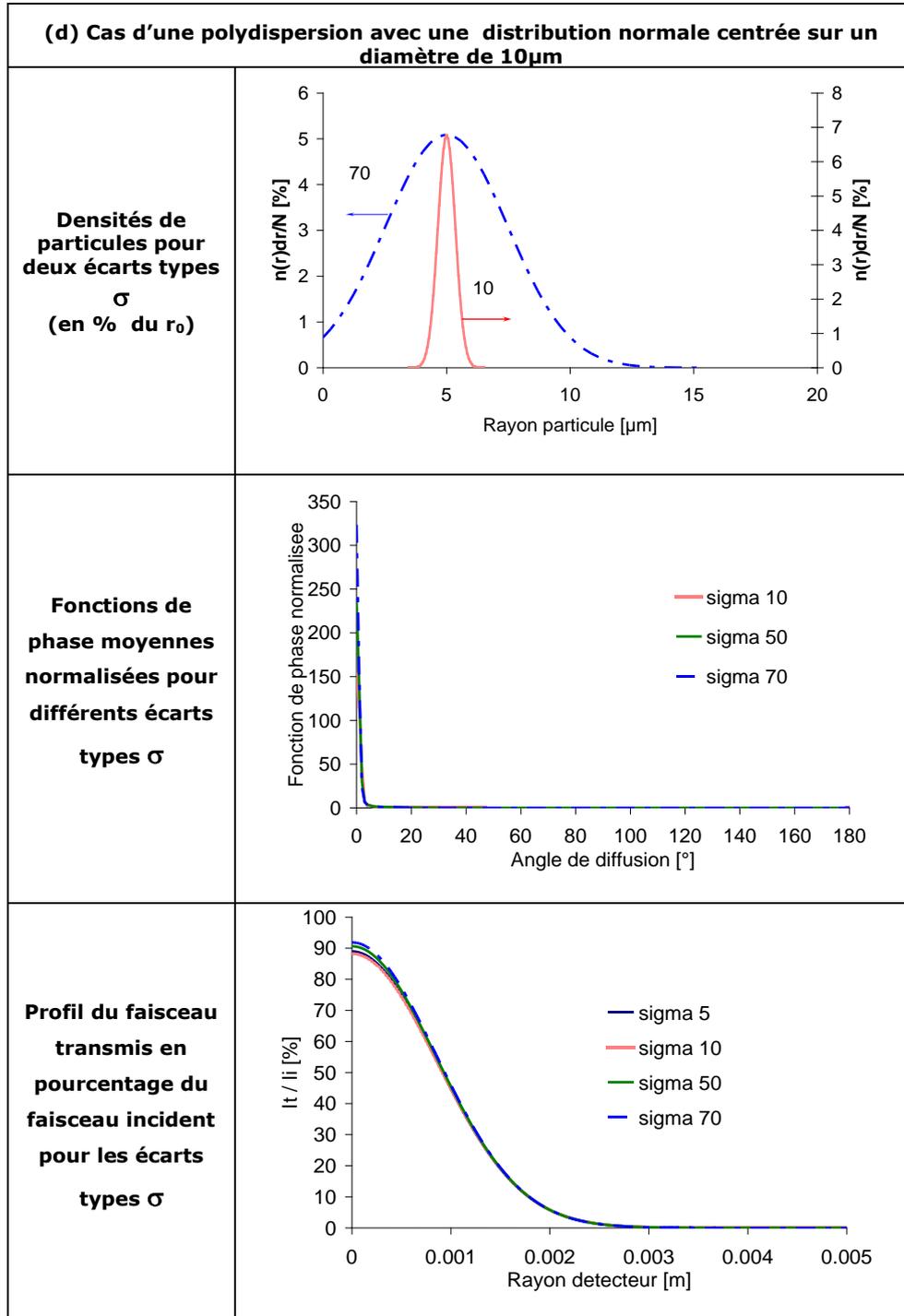
Figure 2.23 : Densité de particules pour une distribution normale centrée sur un diamètre de 100 nm et un écart type  $\sigma = 50$  (en % du  $r_0$ ) ( $n_p=1,8$ ,  $n_h= 1,49$ ,  $\lambda = 808$  nm,  $f_v =0,001$ )

Tableau II.1 Cas des particules polydispersées avec une distribution normale ( $n_p=1,8$ ,  $n_h=1,49$ ,  $\lambda=808\text{nm}$ ,  $f_v=0,001$ , épaisseur milieu= 2mm)









La fonction de phase moyenne ne présente pas de grosses différences par rapport à la fonction de phase d'une seule particule pour des écarts type petits (tableau II.1 a, b, c) ou quelque soit l'écart type indiqué dans le cas des grosses particules (tableau II.1 d). On note que, pour les trois premiers cas donnés dans le tableau II.1, la fonction de phase moyenne  $\bar{p}(\theta)$  devient de plus en plus asymétrique lorsque l'écart type augmente, donc la radiation incidente sera diffusée de plus en plus vers l'avant.

Dans ces conditions, un milieu chargé avec des particules polydispersées va diffuser comme un milieu contenant des particules monodispersées dont le diamètre est plus grand que le diamètre moyen de la polydispersion (figures 2.24,2.25).

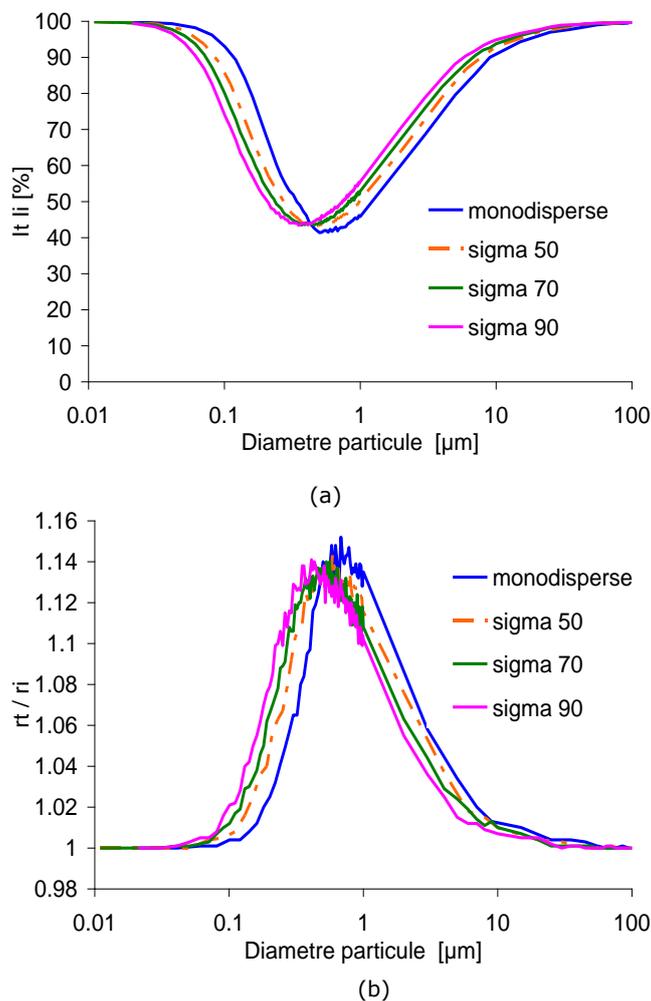
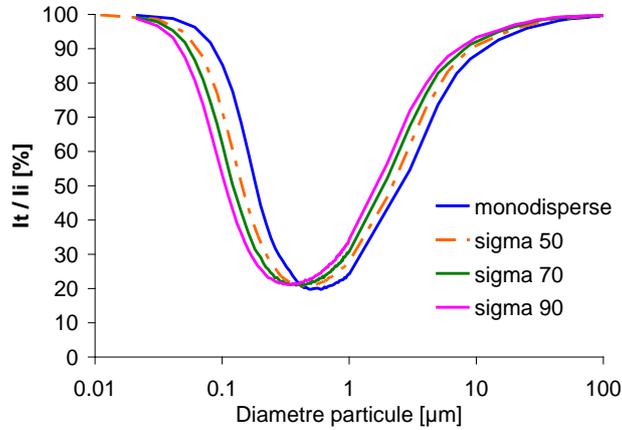
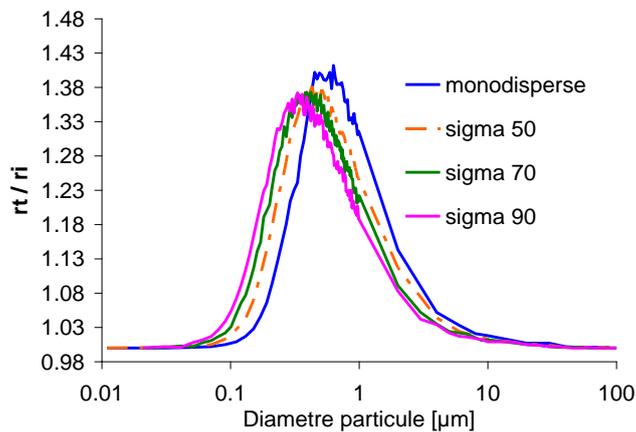


Figure 2.24 : Evolution du rapport des intensités (transmise/ incidente) sur l'axe du faisceau (a) et du rapport des rayons (transmis / incident) (b) en fonction du diamètre des particules dans le cas d'une polydispersion avec les écarts types  $\sigma$  indiqués pour un indice de réfraction de la particule de 1,7 ( $n_h=1,49$ ,  $\lambda=808\text{nm}$ , épaisseur milieu : 2mm, concentration massique : 0,2%)



(a)



(b)

Figure 2.25 : Evolution du rapport des intensités (transmise/ incidente) sur l'axe du faisceau (a) et du rapport des rayons (transmis / incident) (b) en fonction du diamètre des particules dans le cas d'une polydispersion avec les écarts types  $\sigma$  indiqués pour un indice de réfraction de la particule de 1,8 ( $n_h=1,49$ ,  $\lambda=808\text{nm}$ , épaisseur milieu : 2mm, concentration massique : 0,2%)

Pour des particules plus grosses, entre les fonctions de phase  $p(\theta)$  et  $\bar{p}(\theta)$  (mono et polydispersion), les différences concernent les structures en lobes qui apparaissent sur la courbe de  $p(\theta)$ . Les polydispersions ont tendance à réduire ces lobes et les irrégularités et à rendre les courbes plus lisses.

#### 2.2.4. Limite de validité du modèle

L'approche abordée dans notre cas, pour décrire le comportement optique d'un faisceau laser traversant un milieu hétérogène, ne permet pas la prise en compte des interférences qui peuvent apparaître entre les champs diffusés par les

différentes particules. Donc, on peut l'appliquer pour les milieux diffusants dont la concentration particulaire assure un régime de diffusion multiple indépendante.

Les critères de délimitation entre les deux régimes de diffusion multiple (indépendante et dépendante) varient dans la littérature. Les travaux de Keller [Keller 64] ou Twersky [Twersky79] déterminent comme condition pour la validité de l'approximation indépendante l'existence d'une relation linéaire entre le coefficient de diffusion et la fraction volumique de diffuseurs. Dès que cette relation n'est plus respectée on se trouve dans un régime de diffusion multiple dépendante.

D'autres travaux [Cartigny 86], cf. § 2.1.3, permettent cette délimitation selon la fraction volumique et le paramètre de taille, à partir d'une carte basée sur des modèles et des résultats expérimentaux de plusieurs auteurs (figure 2.26). Si on se rapporte à cette carte pour établir le domaine d'étude, on observe que pour de particules de petits diamètres et pour une fraction volumique de 0,003, on se rapproche des courbes qui délimitent les deux domaines, mais pas assez pour soupçonner une invalidité du modèle. Donc, on peut explorer le comportement des polymères chargés pendant une irradiation laser pour un indice relatif ( $n_p/n_h$ ) compris entre 1,12 et 1,5 et des fractions volumiques jusqu'à 0,003.

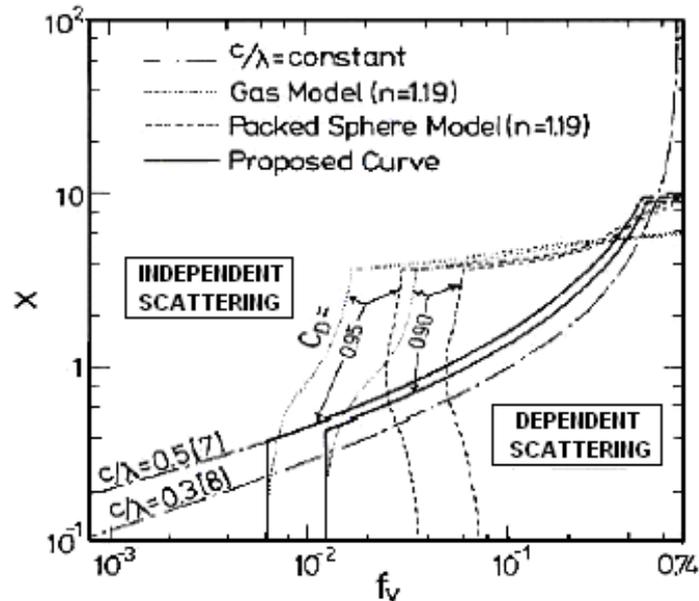


Figure 2.26: Graphe montrant les régimes de diffusion dépendante et indépendante [Cartigny 86]  $x$  = paramètre de taille ;  $f_v$  = fraction volumique des diffuseurs ;  $c/\lambda$  - distance moyenne libre entre les particules/ longueur d'onde ;  $C_D$  = efficacité dépendante/ efficacité indépendante

## 2.3. Validation du calcul de l'intensité diffusée par des mesures

### 2.3.1. Matériaux utilisés

Afin de respecter les hypothèses établies dans le cadre de cette étude (1.2) nous nous sommes orientés vers des matériaux présentant de caractéristiques les plus proches des ceux-ci. Pour assurer un milieu hôte homogène nous avons choisi

un polymère amorphe qui présente une transmission élevée dans le proche IR. Le choix est le Polyméthylméthacrylate PMMA dont les propriétés générales sont présentées dans le tableau II.1.a.

Tableau II.1a Les propriétés générales de PMMA [www.matweb.com]

Propriétés physiques	Valeur	
	Min	Max
Masse volumique [ $\text{gcm}^{-3}$ ]	1,15	1,19
<b>Propriétés thermiques</b>		
Capacité thermique massique [ $\text{Jg}^{-1}\text{K}^{-1}$ ]	1,46	1,47
Conductivité thermique [ $\text{Wm}^{-1}\text{K}^{-1}$ ]	0,19	0,24
Température fusion [ $^{\circ}\text{C}$ ]	130	
Transition vitreuse [ $^{\circ}\text{C}$ ]	100	105
<b>Propriétés optiques</b>		
Indice de réfraction	1,47	1,49
Transmission dans visible [%]	80	93

Le choix de diffuseurs s'avère plus difficile à cause des difficultés liées à l'obtention, de la part des fournisseurs, des informations concernant les propriétés optiques. L'ensemble de critères qui doit être respecté (forme sphérique, non absorbantes, monodispersées) a conduit vers l'utilisation de la silice. Les diamètres des particules fournies par DEGUSSA couvrent les deux domaines de diffusion Rayleigh et Mie. Dans le tableau II.2 sont présentées les caractéristiques de particules utilisées.

Plusieurs échantillons en variant la concentration des particules et l'épaisseur de la plaque en PMMA ont été réalisés. Les plaques sont fabriquées en deux lots : un premier lot de plaques, réalisé par la société MPIB, est mis en œuvre par injection à partir d'un mélange-maître pour chaque type des particules. L'épaisseur obtenue pour ce lot est de 3mm et les concentrations prévues sont de 2,5 et 5%.

Pour le deuxième lot, réalisé par la société DACRYL, on prévoit l'obtention des plusieurs épaisseurs à deux concentrations pour les particules de diamètre de  $5,5\mu\text{m}$  (Sipernat 310). Dans ce cas, les plaques sont réalisées individuellement en partant d'une solution initiale dans laquelle est ajoutée le pourcentage des particules prévu. Il est important de noter que les concentrations semblent changer beaucoup d'une plaque à l'autre. Les concentrations exactes résultantes après la calcination réalisée par ICM Pôle Plastiques, sont présentées dans le tableau II.3. On note aussi une variation de l'épaisseur au long de la plaque qui doit être prise en compte dans les simulations.

Tableau II.2. Les caractéristiques de particules diffusantes utilisées

Théories	Silice	D [ $\mu\text{m}$ ]	Indice de réfraction complexe dans proche IR (808 nm)	Densité [ $\text{gcm}^{-3}$ ]
Rayleigh Domaine	Aerosil 300	0,007	$n = 1,432 - 3 \cdot 10^{-5}i$	2
	Aerosil OX 50	0,04		
Mie Domaine	Sipernat 310	5,5		
	Sipernat20	7		

Tableau II.3 Les concentrations résultées après calcination pour les plaques chargées

Lot	Diamètre particule [µm]	Epaisseur plaque [mm]	Concentration prévue [%]	Concentration résultante [%]
1	0,007	3	2,5	-
			5	-
	0,04	3	2,5	-
			5	-
	5,5	3	2,5	2,38
			5	4,75
7	3	2,5	1,97	
		5	3,9	
2	5,5	2,13±0,3	2	1,7
			5	3,94
		3,35 ± 0,06	2	1,7
			5	3,5
		4,63 ± 0,09	2	1
			5	3,6

### 2.3.2. Dispositif expérimental

#### A. Présentation

Il s'agit d'un montage permettant d'effectuer des mesures de lumière transmise par des échantillons de petite taille. Il est constitué :

- d'un laser à diode présentant les caractéristiques suivantes :
  - une longueur d'onde de 808 nm;
  - une puissance maximale de 15W;
  - fonctionnement en continu ou pulsé.
- une fibre optique amenant le faisceau à une tête laser;
- un montage optique qui réalise à la fois l'homogénéisation du faisceau et une collimation du celui-ci; il est constitué :
  - d'une lentille de focalisation;
  - d'une diaphragme;
  - d'une lentille de collimation
- le porte-échantillon placé sur le chemin optique du faisceau laser ;
- un convertisseur optique linéaire intensité lumineuse - tension électrique, combinant une photodiode et un amplificateur, avec une aire active de 0,26 mm<sup>2</sup> et un réponse spectrale maximale a 900 nm. Les caractéristiques techniques du détecteur optique sont présentées en annexe.
- deux tables micrométriques assurant le déplacement du détecteur sur deux directions orthogonales;
- un système d'acquisition des données National Instruments.

Nous présentons ci-dessous le schéma de principe du montage (figure 2.27) ainsi qu'une photographie (figure 2.28).

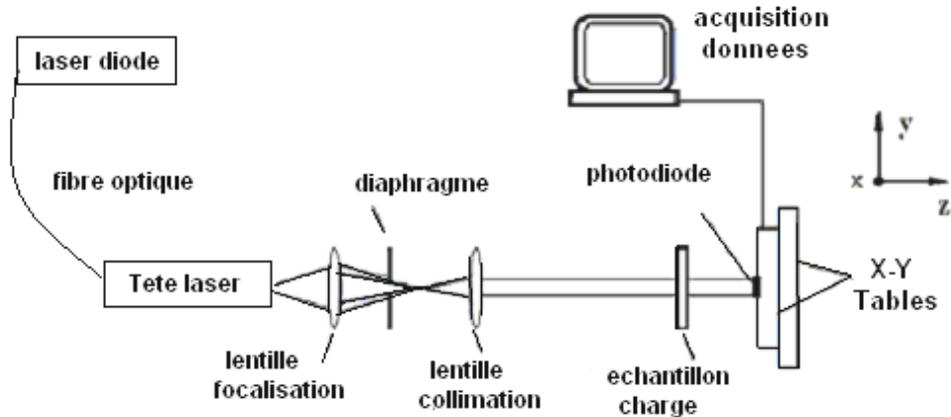


Figure 2.27: Schéma de principe du montage.

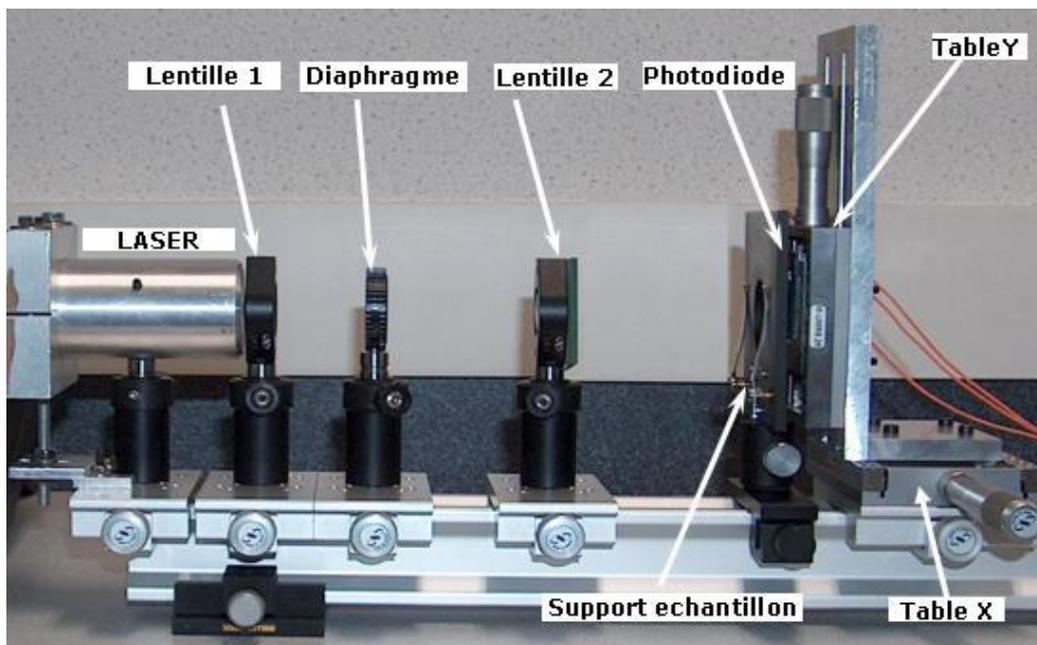


Figure 2.28 : Photographie du montage permettant de mesurer le flux transmis diffusé par l'échantillon

### B. Géométrie du faisceau

Le faisceau sortant de la fibre optique étant fortement divergent on utilise un montage qui permet à la fois son homogénéisation et l'obtention d'un faisceau collimaté. En fonction de l'ouverture du diaphragme il est possible d'acquérir deux types de distribution pour les intensités lumineuses du faisceau : une distribution gaussienne (figure 2.29) et une distribution trapézoïdale (figure 2.31).

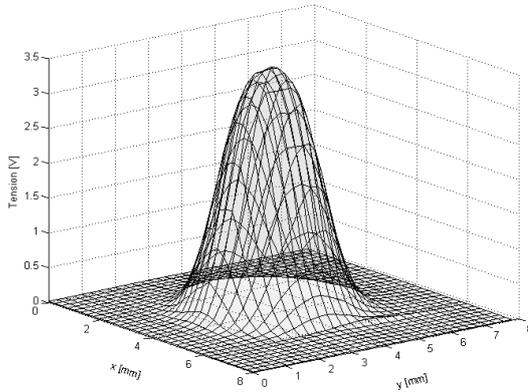


Figure 2.29: Distribution gaussienne de l'intensité du faisceau

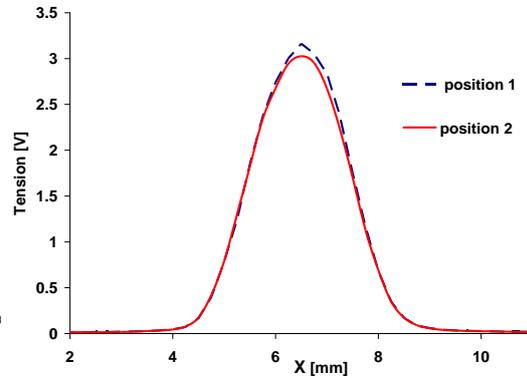


Figure 2.30: Mesures du profil laser a deux distances sur l'axe de propagation

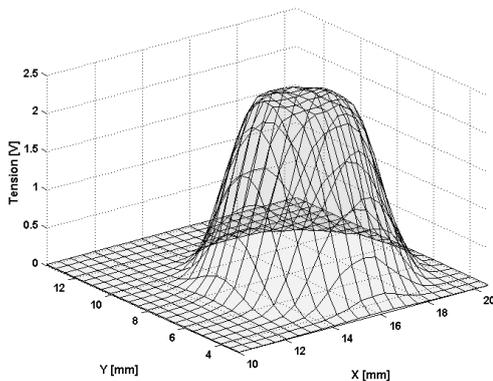


Figure 2.31 : Distribution trapézoïdal de l'intensité du faisceau

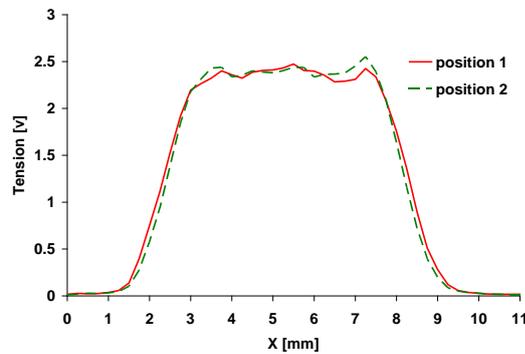


Figure 2.32 : Mesures du profil laser à deux distances sur l'axe de propagation

Pour chaque type de distribution, les mesures réalisées à deux distances différentes sur l'axe de propagation du faisceau montrent que son enveloppe reste cylindrique (figure 2.30, 2.32) les faisceaux sont donc collimatés.

### C. Méthode utilisée pour normaliser les mesures

Afin de pouvoir comparer les mesures effectuées sur les échantillons chargés avec les résultats issus du modèle numérique on fait appel à une normalisation. Cette normalisation suppose :

- **une mesure de référence** réalisée sans échantillon permettant d'obtenir la distribution de l'énergie du faisceau incident. Cette distribution est ajustée à l'aide d'une fonction gaussienne qui fournit deux grandeurs : l'intensité sur l'axe du faisceau  $I_{li}$  et le rayon  $r_i$  tel que cette intensité diminue en  $1/e^2$  ;
- **une mesure du signal transmis** réalisée avec l'échantillon placé sur le chemin optique du faisceau permettant d'obtenir la distribution d'énergie du faisceau transmis. On applique le même ajustement et on obtient une intensité transmise  $I_t$  sur l'axe du faisceau et le rayon transmis  $r_t$  à  $1/e^2$ .

La normalisation résulte du rapport entre les deux intensités  $I_t/I_i$  et ainsi que des rayons à  $1/e^2$ . On procède de la même manière avec les résultats issus de la simulation numérique.

Dans le cas d'une distribution trapézoïdale on applique un ajustement trapézoïdal et on considère les intensités sur l'axe et les deux rayons caractéristiques.

### 2.3.3. Comparaison théorie – expérience

Les mesures sur les échantillons chargés sont effectuées pour un faisceau incident collimaté et une distribution gaussienne telle que le rayon à  $1/e$  est égal à 1,12 mm. Les résultats des mesures réalisées sur les deux lots sont synthétisés dans le tableau II.4. Il apparaît qu'un milieu chargé avec de petites particules reste homogène du point de vue optique.

Tableau II.4 : Résultats des mesures expérimentales pour les deux lots réalisés

	D [ $\mu\text{m}$ ]	C [%]	Epaisseur [mm]	Mesuré $r_t/r_i$ [-]	Simulé $r_t/r_i$ [-]	Ecart [%]	Mesuré $I_t/I_i$ [%]	Simulé $I_t/I_i$ [%]	Ecart [%]
I	0,007	2,5	3	1	1	0	95	96	1
	0,007	5	3	1	1	0	90	96	6
	0,04	2,5	3	1	1	0	95	96	1
	0,04	5	3	1	1	0	90	96	6
	5,5	2,38	3	1,22	1,23	1	78	83	5
	5,5	4,75	3	1,25	1,31	6	65	67	2
	7	1,97	3	1,16	1,17	1	83	90	7
	7	3,9	3	1,19	1,24	5	74	79	5
II	5,5	1,7	2,34	1,039	1,046	0,7	80,83	84,58	3,75
		1,7	2,45	1,070	1,054	1,6	80,27	83,15	2,88
		1,7	3,34	1,064	1,127	6,3	72,12	71,33	0,79
		1,7	3,42	1,092	1,129	3,7	72,72	70,99	1,73
		1	4,7	1,108	1,189	8,1	66,66	64,94	1,72
		1	4,72	1,129	1,185	5,6	64,00	65,24	1,24
		3,94	1,86	1,075	1,049	2,6	73,00	78,68	5,68
		3,94	1,86	1,080	1,053	2,7	72,30	78,35	6,05
		3,5	3,3	1,155	1,228	7,3	56,34	52,65	3,69
		3,5	3,5	1,204	1,234	3	54,84	51,82	3,02
		3,6	4,55	1,303	1,496	19,3	43,59	31,75	11,84
		3,6	4,67	1,344	1,524	18	38,72	30,20	8,52

Les effets de diffusion apparaissent pour de particules de l'ordre micromètre, donc pour des paramètres de taille correspondant au domaine de Mie. Dans ce domaine, les atténuations peuvent atteindre 38% du faisceau incident et le rapport des rayons 1,5. Ayant un indice complexe de  $=1,432-3 \cdot 10^{-5}i$ , la silice est

non absorbante pour la longueur d'onde de 800 nm l'atténuation et l'élargissement du faisceau sont donc uniquement dus à la diffusion du rayonnement par les échantillons. Nous remarquons que l'atténuation diminue lorsque le diamètre des particules augmente et qu'elle augmente avec la concentration.

Les écarts entre les résultats mesurés et les simulations ne dépassent pas 10% avec une seule exception qu'on peut attribuer soit à un défaut de surface de l'échantillon soit à une distribution non uniforme des charges.

En prenant en compte le bruit, la répétabilité, les aspects liés à l'état de surface de l'échantillon et au système d'acquisition, les incertitudes de mesures ont été estimées du même ordre de grandeur que les écarts obtenus. On peut donc énoncer que le modèle développé est validé.

Une comparaison entre les simulations et les mesures réalisées sont présentées pour un autre profil du faisceau incident (figure 2.33).

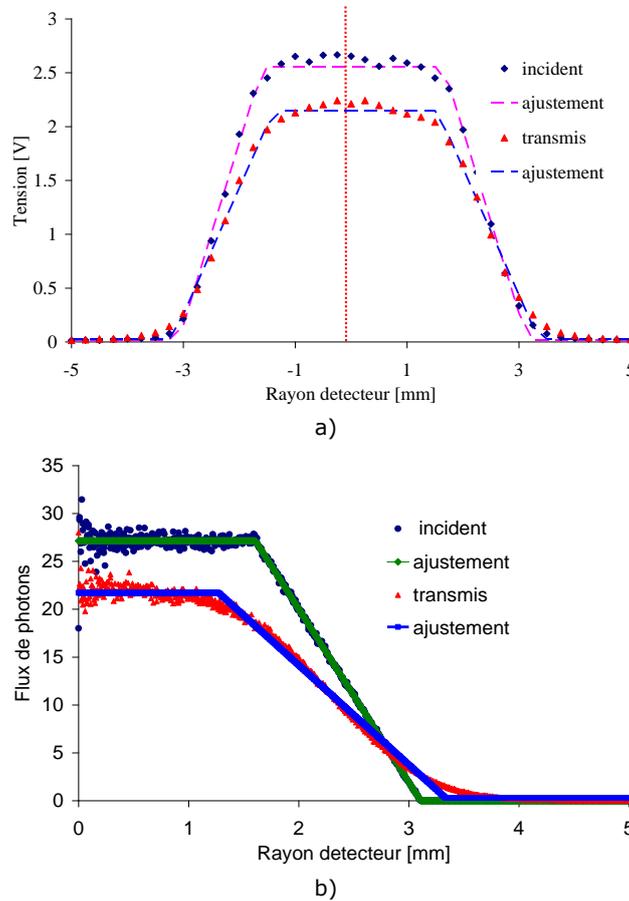


Figure 2.33: Les profils du faisceau laser mesurés et simulés et leurs ajustements pour une distribution trapézoïdale

Les résultats sont obtenus pour une matrice de PMMA de 3 mm épaisseur chargée avec des particules de  $5,5\mu\text{m}$  avec une concentration massique de 2,38 % et un faisceau incident dont les rayons caractéristiques sont  $r_1=3,11$  mm et  $r_2 = 1,64$  mm. L'écart entre les deux rapports  $I_t/I_i$  est de 5,5%.

## 2.4. Etude de sensibilité des facteurs influençant le phénomène de diffusion

Les méthodes de calcul développées précédemment, nous permettent d'estimer quelques aspects simples du comportement d'un milieu diffusant. Nous étudierons les effets des quatre facteurs qui interviennent dans le processus de diffusion de la lumière dans un milieu hétérogène :

- *le diamètre* de la particule  $d$  ;
- *le rapport des indices*  $n_p/n_h$  (ou  $n_p$  est l'indice complexe des particules et  $n_h$  l'indice de réfraction de la matrice) ;
- *la concentration* de particules (en % massique) ;
- *l'épaisseur* du milieu;

Les simulations numériques doivent décrire le comportement dans le domaine IR proche, donc la longueur d'onde  $\lambda$  de la radiation incidente est choisie égale à 808 nm (dans le vide) correspondant à un laser à diode.

En fonction des caractéristiques des systèmes diffusants réels, rencontrées dans le cas du soudage des polymères par laser, nous établirons un premier domaine de variation pour les quatre facteurs énumérés.

- le diamètre* de particules : tenant compte de la dimension des inclusions (colorants, pigments, charges) dans la matrice du polymère qui s'étalent de quelques nanomètres à quelques dizaines, voire centaines de micromètres, la variation du diamètre des particules couvrira les trois domaines : Rayleigh, Mie et l'optique géométrique.
- le rapport des indices* : à partir des valeurs des indices de réfraction données dans le tableau II.5 pour les plus communs polymères thermoplastiques et pigments on obtient un intervalle de variation compris entre 1,12 et 1,5;
- la concentration* : afin de rester dans les conditions de validité du modèle (ne pas atteindre des épaisseurs optiques élevées) l'intervalle de ce facteur est limité à quelques pourcents (0,1- 0,5 %) ;
- l'épaisseur* du milieu : les mêmes considérations conduisent à une variation de l'épaisseur de 1 à 3 mm.

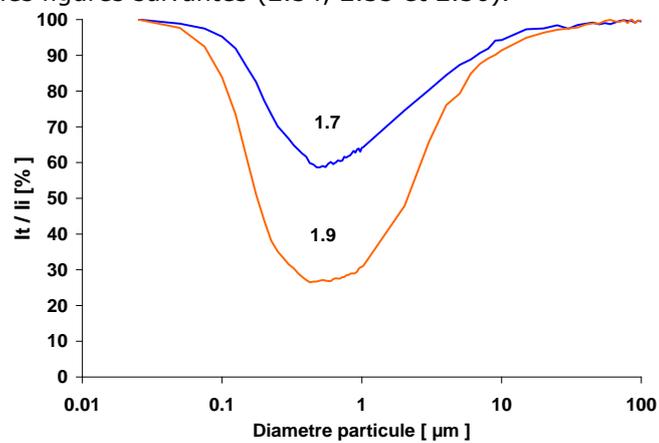
Tableau II.5. Les indices de réfraction dans le visible pour les polymères thermoplastiques et pigments les plus courants

Pigments	Indice de réfraction	Polymères	Indice de réfraction
Oxyde de zinc	2,02	PS	1,60
Silicate de magnésium	1,65	PC	1,59
Carbonate de calcium	1,63	SAN	1,56
Talc	1,57	PE	1,50-1,54
		PMMA	1,49
		PVC	1,48

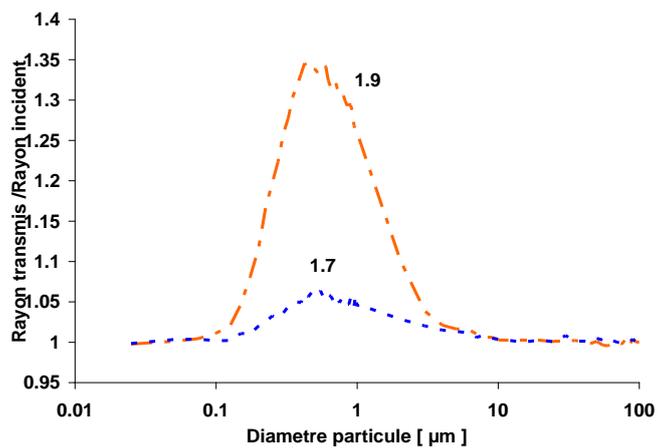
Nous choisissons un ensemble de caractéristiques suivantes :

- une matrice avec un indice de réfraction de 1,49 correspondant à un acrylique pour lequel l'épaisseur varie de 1 à 3 mm ;
- de particules sphériques, non absorbantes, avec un indice de réfraction de 1,7 et 1,9, soit un indice relatif  $n_p/n_h$  de 1,14 et 1,27;
- une concentration massique de 0,1 et 0,3 %
- le diamètre de particules varie dans l'intervalle compris entre 0,01 et 100  $\mu\text{m}$  ;
- le faisceau incident est collimaté, avec une distribution gaussienne de l'intensité et un rayon à 1/e de 1,12 mm et une longueur d'onde de 808nm.

Pour chaque cas, on considère comme grandeurs de sortie l'intensité transmise dans le centre du faisceau et le rayon pour lequel cette intensité décroît en 1/ e. Les évolutions de ces deux grandeurs dans le domaine choisi sont présentées sur les figures suivantes (2.34, 2.35 et 2.36).

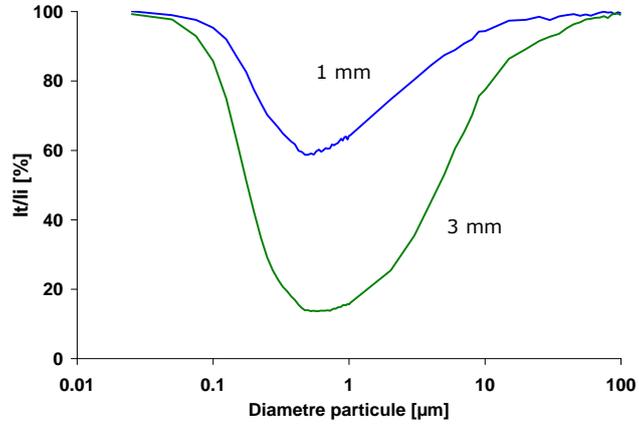


a)

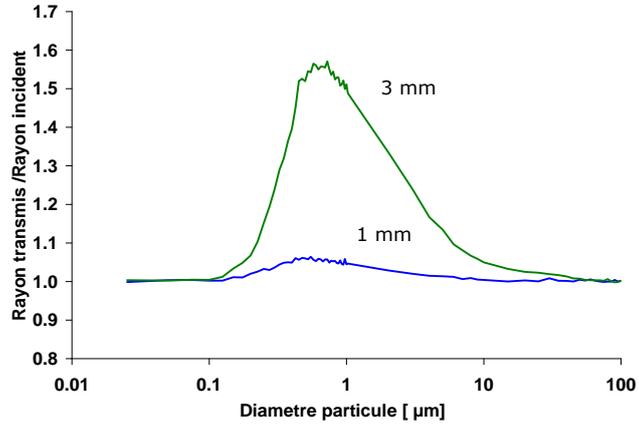


b)

Figure 2.34 : Evolution du rapport des intensités (transmise/ incidente) sur l'axe du faisceau (a) et du rapport des rayons (transmis / incident) (b) en fonction du diamètre des particules pour une épaisseur de la plaque de 1mm et une concentration de 0,3 (en % massique)

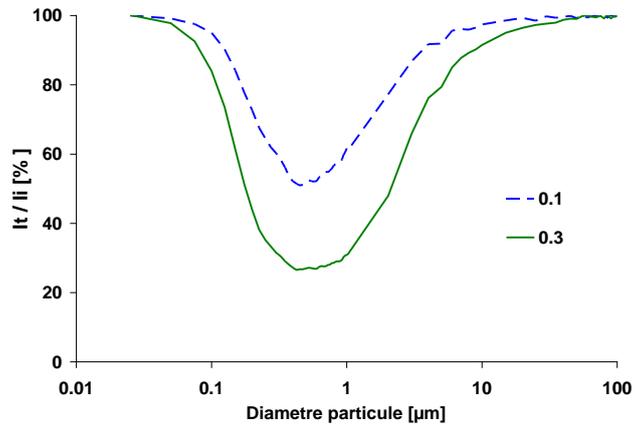


a)

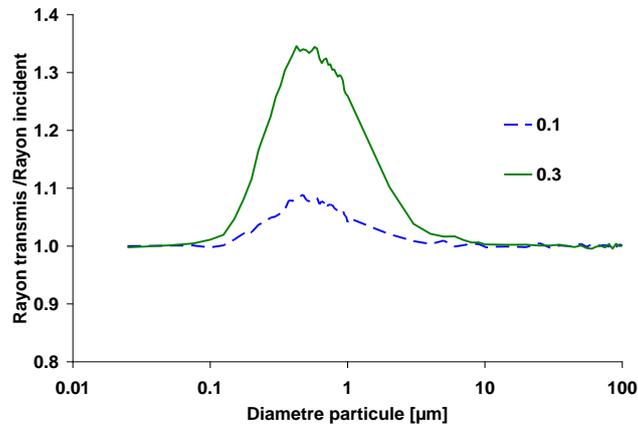


b)

Figure 2.35 : Evolution du rapport des intensités (transmise/ incidente) sur l'axe du faisceau (a) et du rapport des rayons (transmis / incident) (b) en fonction du diamètre des particules pour deux épaisseurs, une concentration de 0,3 et un indice réfraction de la particule de 1,7



a)



b)  
Figure 2.36 : Evolution du rapport des intensités (transmise/ incidente) sur l'axe du faisceau (a) et du rapport des rayons (transmis / incident) (b) en fonction du diamètre des particules pour deux concentrations, une épaisseur de 1mm et un indice réfraction de la particule de 1,9

Ces graphiques fournissent plusieurs informations intéressantes. Diverses remarques peuvent être énoncées :

- il existe trois intervalles avec des comportements différents, ce qui montre une influence forte du diamètre de la particule sur l'atténuation et l'élargissement du faisceau;
- on trouve un diamètre critique autour duquel l'atténuation et l'élargissement du faisceau sont maximaux;
- une croissance de 12% de l'indice de réfraction de la particule conduit à une diminution de 30% de l'intensité transmise autour du diamètre critique et un élargissement du faisceau de 29% (figure 2.34);
- une croissance de 200% de l'épaisseur du milieu diffusant conduit à une diminution de 46% de l'intensité autour du diamètre critique et une augmentation de 51% du rayon (figure 2.35);
- une croissance de 200% de la concentration massique de particules provoque une diminution de 24% de l'intensité autour du diamètre critique et un élargissement de 26% du rayon transmis (figure 2.36);

Malheureusement, ces observations contiennent des informations qui ne peuvent pas être décelées. Comme dans toute stratégie uni-factorielle, il apparaît que l'influence exercée par la variation d'un seul facteur d'influence sur la grandeur de sortie est toujours affectée par la valeur des niveaux pour lesquels les autres paramètres sont maintenus constants. Donc, une analyse multi factorielle sera plus appropriée pour quantifier l'influence de chaque paramètre et leurs éventuelles interactions.

Examinons d'abord l'existence du diamètre critique et les trois comportements différents observés. Pour de particules plus petites que  $\lambda/10$  (domaine Rayleigh) le milieu est presque homogène du point de vue optique. Dans ce domaine, la section efficace de diffusion  $C_{sca}$  a des valeurs très petites, le libre parcours moyen de diffusion devient très grand (la lumière ne voit pas les particules). Pour de particules plus grandes que  $20\lambda$  (domaine de l'optique

géométrique  $x > 80$ ) le milieu devient aussi homogène du point de vue optique. Dans cet autre domaine, la contribution la plus importante, appartient aux phénomènes de diffraction. La distribution angulaire du rayonnement diffusé est alors fortement orientée vers la direction avant, limitant ainsi les directions de dispersion aux angles plus petits.

L'intervalle qui suscite notre intérêt est celui compris entre les deux domaines, connu sous la désignation domaine de Mie, pour lequel faisceau subit une atténuation de 15% de la valeur incidente et un élargissement significatif.

Les paramètres de diffusion indiquent l'existence un diamètre critique ( $d_c$ ) situé autour de la longueur d'onde de la radiation, phénomène connu comme étant la résonance de Mie [Bohren96]. Si nous « concentrons » toutes les particules dans une lamelle homogène (fraction volumique  $f = 1$ ) sans perdre leurs identités et leurs propriétés, nous avons la première représentation de l'efficacité d'une masse fixe de particules dans l'atténuation d'une radiation. Cette information est donnée par le coefficient volumique d'extinction  $C_{ext}/v$  où  $v$  est le volume de particules [Bohren96]. L'évolution théorique de ce coefficient (figure 2.37) indique un diamètre critique situé autour de la longueur d'onde et une dépendance de celui-ci avec l'indice de réfraction de la particule :

- $d_c = 1,24 \mu\text{m}$  pour un indice de réfraction de 1,8;
- $d_c = 0,98 \mu\text{m}$  pour un indice de réfraction de 1,9;
- $d_c = 0,8 \mu\text{m}$  pour un indice de réfraction de 2.

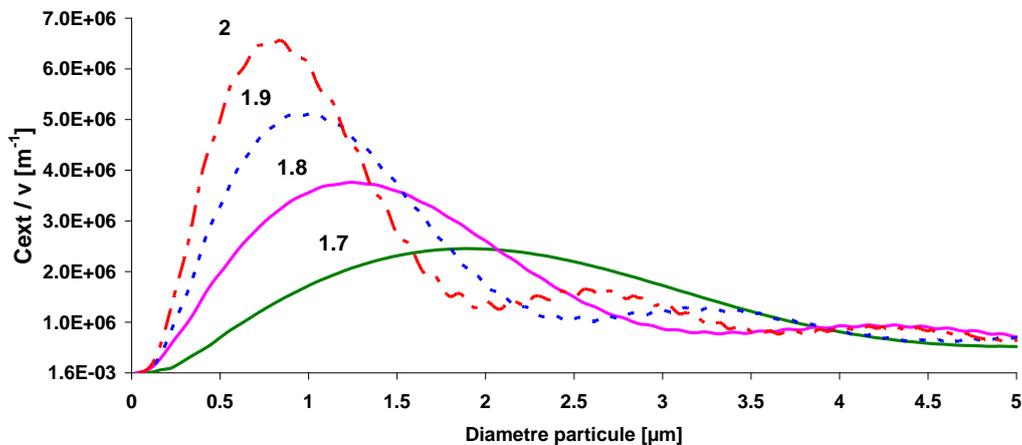


Figure 2.37 : L'évolution du coefficient volumique de diffusion avec le diamètre de la particule pour différents indices de réfraction

De même, l'évolution du libre parcours moyen de diffusion (figure 2.38) indique les mêmes valeurs pour le diamètre critique.

En revanche, sur les courbes représentées dans les figure 2.34, 2.35 et 2.36 ce diamètre critique est décalé vers des valeurs plus petites situées autour de  $\lambda/2$ , :  $d_c = 0,5 \mu\text{m}$  pour  $n_p = 1,8$ ,  $d_c = 0,45 \mu\text{m}$  pour  $n_p = 1,9$ ,  $d_c = 0,42 \mu\text{m}$  pour  $n_p = 2$ .

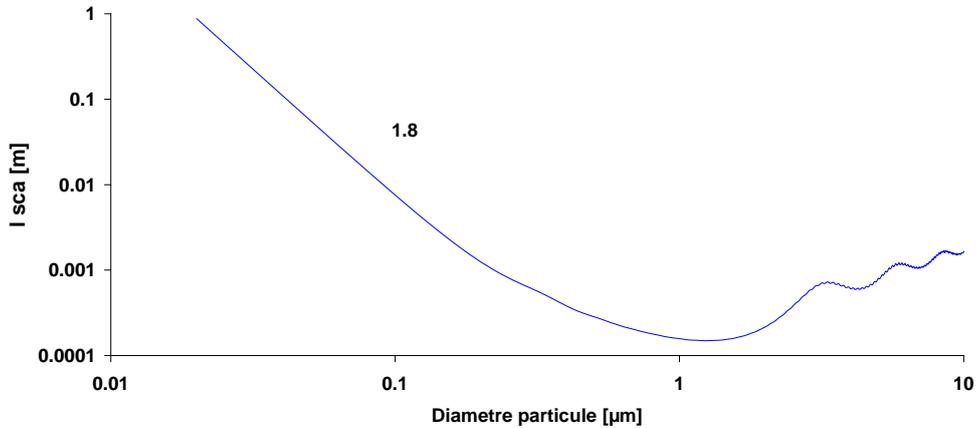


Figure 2.38 : L'évolution du libre parcours moyen de diffusion avec le diamètre de la particule pour un indice de réfraction de 1,8

Le paramètre décisif pour cette situation est la fonction de phase. La figure 2.39 représente la fonction de phase pour deux diamètres critiques, l'un obtenu à partir du coefficient volumique de diffusion  $d_c=1,24\mu\text{m}$  et le deuxième à partir de l'évolution de l'intensité transmise  $d_c=0,5\mu\text{m}$  et estimons la fonction de répartition (figure 2.39-b) pour la direction de diffusion. Ces courbes permettent de comprendre aisément pourquoi un milieu contenant des particules de  $0,5\mu\text{m}$  est plus diffusant qu'un milieu contenant des particules de  $1,24\mu\text{m}$  de diamètre. Chaque événement de diffusion subi par un photon dans un milieu contenant des particules de  $0,5\mu\text{m}$  provoque une nouvelle direction de propagation dans un angle compris entre 0 et 50 degrés tandis que lorsque les particules ont un diamètre de  $1,24\mu\text{m}$  l'angle de diffusion est inférieur à 20 degrés. Dans ce dernier cas, la diffusion de la radiation est donc plus orientée vers l'avant.

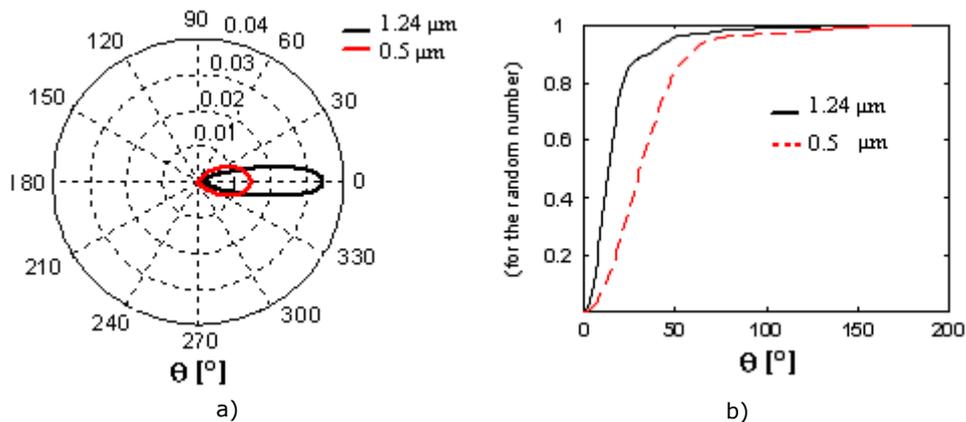


Figure 2.39 : Fonction de phase (a) et fonction de répartition pour un indice de réfraction de 1,8 et deux diamètres de particules

On observe le même comportement pour une matrice chargée avec des particules ayant un indice de réfraction plus petit que celui de la matrice :

1) L'évolution du coefficient volumique de diffusion indique un diamètre critique situé autour de la longueur d'onde et une dépendance de celui-ci avec l'indice de réfraction de la particule (figure 2.40) :

- $d_c = 1,02 \mu\text{m}$  pour un indice de réfraction de 1,1;
- $d_c = 1,34 \mu\text{m}$  pour un indice de réfraction de 1,2;
- $d_c = 2,02 \mu\text{m}$  pour un indice de réfraction de 1,3.

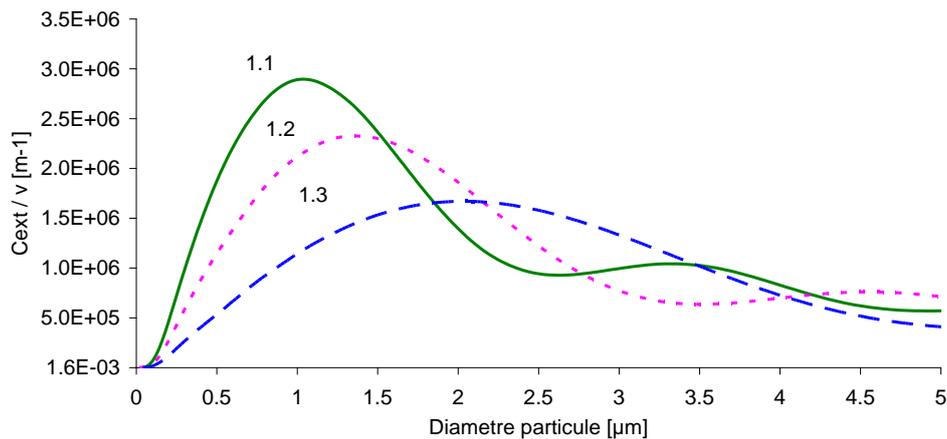


Figure 2.40 : L'évolution du coefficient volumique de diffusion avec le diamètre de la particule pour différents indices de réfraction plus petits que celui de la matrice ( $n_h=1.49$ , une épaisseur de la plaque de 2mm et une concentration de 0,3 en % massique)

2) L'évolution du libre parcours moyen de diffusion (figure 2.41) indique les mêmes valeurs pour le diamètre critique que dans le cas du coefficient volumique de diffusion :

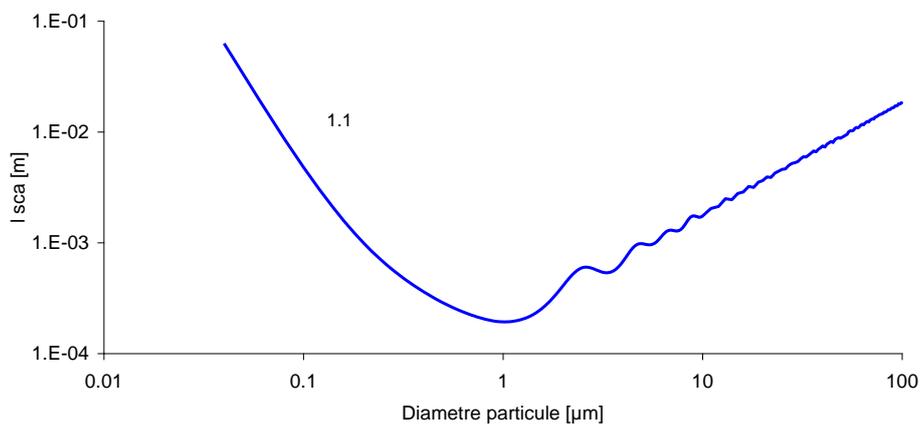
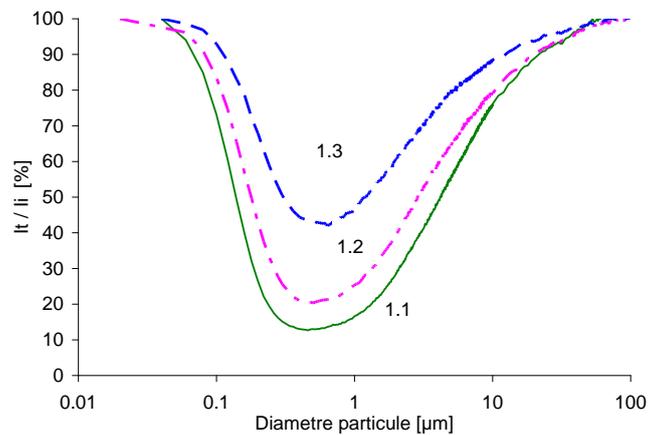


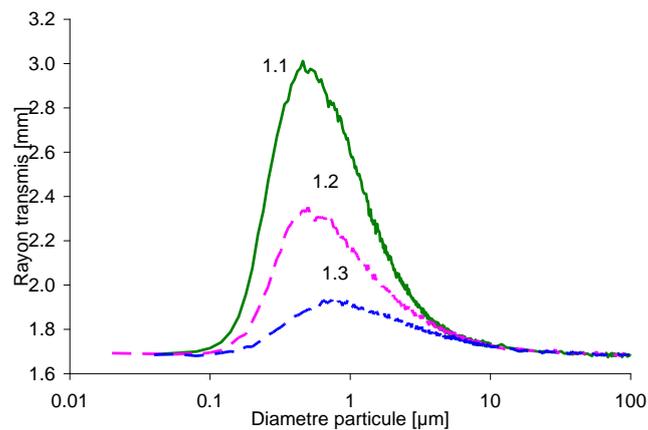
Figure 2.41 : L'évolution du libre parcours moyen de diffusion avec le diamètre de la particule pour un indice de réfraction de 1,1

3) En revanche, dans le cas réel d'une plaque chargée avec des particules (figure 2.42), ce diamètre critique est décalé vers des valeurs plus petites situées

autour de  $\lambda/2$ :  $d_c=0,64\mu\text{m}$  pour  $n_p=1,3$ ,  $d_c=0,5\mu\text{m}$  pour  $n_p=1,2$ ,  $d_c=0,46\mu\text{m}$  pour  $n_p=1,1$ .



(a)



(b)

Figure 2.42 : Evolution du rapport des intensités (transmise/ incidente) sur l'axe du faisceau (a) et du rayon transmis (b) en fonction du diamètre des particules pour une épaisseur de la plaque de 2mm, une concentration de 0,3 et les indices de réfraction de la particule indiqués

4) Ce changement de la valeur du diamètre critique provient aussi de la probabilité de diffusion calculée à partir de la fonction de phase. La figure 2.43-a représente la fonction de phase pour deux diamètres critiques, l'un obtenu à partir du coefficient volumique de diffusion  $d_c=1,02\mu\text{m}$  et le deuxième à partir de l'évolution de l'intensité transmise  $d_c=0,46\mu\text{m}$  pour un indice de la particule de 1,1.

La fonction de répartition (figure 2.43-b) pour la direction de diffusion montre que le milieu chargé avec des particules de  $0,46\mu\text{m}$  est plus diffusant que celui chargé avec des particules de  $1,02\mu\text{m}$  diamètre.

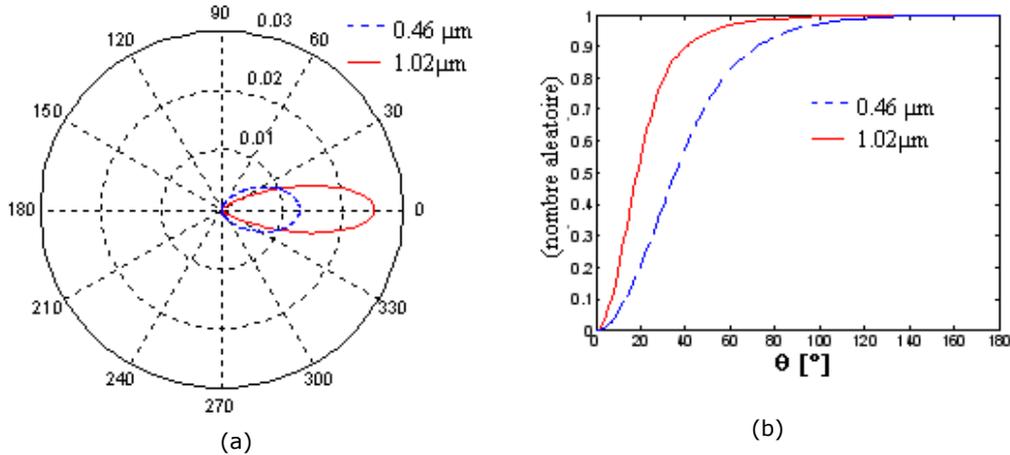


Figure 2.43 : Fonction de phase (a) et fonction de répartition pour un indice de réfraction de 1,1 et deux diamètres de particules ( $n_p=1.49$ ,  $\lambda = 808$  nm)

Afin d'avoir une première image de l'importance de chaque facteur d'influence et de leurs éventuelles interactions sur l'intensité transmise par un milieu inhomogène, nous pouvons appliquer la méthode des plans d'expérience [Goupy 88], [Cicală 99], [Cicală 00]. Le domaine étudié est le domaine de Mie. Ces plans sont conçus pour déterminer les facteurs les plus influents sur une variable de réponse et, le plus souvent, utilisent des facteurs à deux niveaux uniquement.

Comme ce type d'analyse implique une approximation par un modèle linéaire pour la fonction de réponse dans le domaine exploré, on divise l'intervalle mentionné en deux sous-domaines : le premier compris entre  $0,05 \mu\text{m}$  et  $0,45 \mu\text{m}$  et le deuxième entre  $0,45 \mu\text{m}$  et  $15 \mu\text{m}$ . Pour les trois autres facteurs d'influence les niveaux de variation sont indiqués dans le tableau II.6 :

Tableau II.6 : Les deux niveaux de variation pour chaque facteur d'influence

▪ indice de réfraction	○ 1,7 – niveau bas; ○ 1,9 – niveau haut;
▪ concentration massique	○ 0,1 – niveau bas; ○ 0,2 – niveau haut;
▪ épaisseur du milieu	○ 1 mm – niveau bas; ○ 2 mm – niveau haut;

Pour chaque sous domaine un plan factoriel  $2^4$  contenant toutes les combinaisons des 2 niveaux des 4 facteurs a été choisi avec une résolution qui permet d'estimer tous les effets directs et toutes les interactions entre deux facteurs. Les résultats sont discutés pour chaque sous domaine.

### I. La branche décroissante – $0,05 \mu\text{m} < d < 0,45 \mu\text{m}$

Les résultats de l'analyse dans ce sous domaine sont donnés sur la figure 2.44. Le graphique de Pareto standardisé affiche les effets dans l'ordre décroissant de signification permettant l'identification rapide des facteurs et des interactions qui jouent un rôle important dans le processus. La longueur de chaque barre est proportionnelle à la valeur de la statistique t calculée pour l'effet associé (voir annexe A). Toute barre au-delà de la ligne verticale est statistiquement significative

au niveau de signification de 5%. Dans notre cas, on observe que tous les facteurs sont significatifs et on distingue trois interactions importantes entre eux : diamètre - indice de réfraction, diamètre - épaisseur, diamètre - concentration.

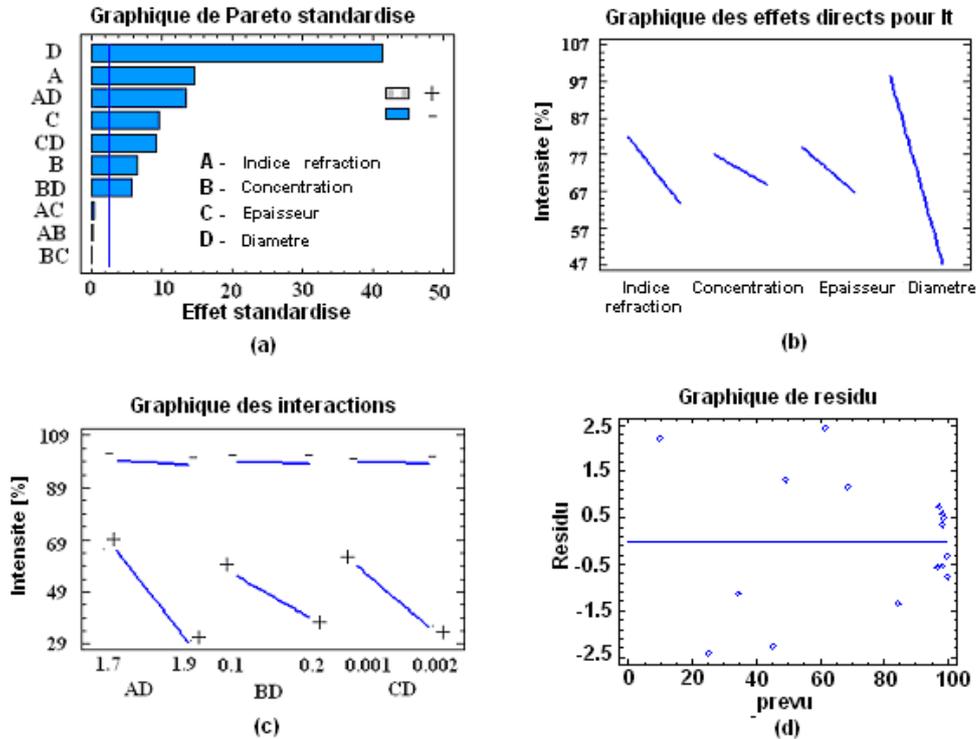


Figure 2.44 : Analyse des facteurs d'influence sur l'intensité transmise pour un diamètre de particules entre 0,05 – 0,45µm

Les effets directs (figure 2.44-b) indiquent les variations estimées de la fonction de réponse lorsque chaque facteur passe de son niveau bas à son niveau haut, sachant que tous les autres facteurs sont maintenus à des valeurs moyennes entre leurs niveaux hauts et bas respectifs. A noter que le diamètre a l'influence la plus importante sur la diminution de l'intensité à travers un milieu diffusant.

Le graphique des interactions (figure 2.44-c) montre la moyenne de la fonction de réponse (intensité transmise  $I_t$ ) pour chaque niveau du facteur - diamètre lorsque les trois facteurs (indice de réfraction, concentration et épaisseur) varient. On note que si le diamètre est à son niveau bas, ce qui est le cas des milieux chargés avec des particules de petit diamètre, les effets sur l'atténuation de la radiation des trois autres facteurs sont très faibles. En revanche, pour de particules dont le diamètre se rapproche de 0,45µm une petite variation de l'indice ou de la concentration ou de l'épaisseur du milieu aura des effets importants sur la fonction de réponse.

Le modèle associé à l'évolution de l'intensité transmise dans ce sous domaine est une régression linéaire multiple pour laquelle le coefficient de corrélation ajusté  $R^2_{adj}$  (2.71) est 99,37. Pour tester s'il y a des auto corrélations entre les résidus (figure 2.44), on applique le test Durbin-Watson (2.70). Les valeurs obtenues sont  $DW=2,5818$  ( $P=0,9625$ ). Cette valeur proche de 2 indique

une variation aléatoire du résidu, on peut donc dire qu'il n'y a pas d'autre influence qui ne soit pas prise en compte dans le modèle.

$$DW = \frac{\sum_{i=2}^n (e_i - e_{i-1})}{\sum_{i=1}^n e_i^2} \tag{2.70}$$

avec  $e_i = y_i - \hat{y}_i$  où  $y_i$  sont les valeurs mesurées et  $\hat{y}_i$  les valeurs prédites.

$$R_{adj}^2 = 100 \left[ 1 - \left( \frac{n-1}{n-p-1} \right) \frac{\sum_{i=1}^n (y_i - \hat{y}_i)^2}{\sum_{i=1}^n (y_i - \bar{y}_i)^2} \right] \% \tag{2.71}$$

avec n est le nombre d'observations et p nombre des variables indépendantes.

**II. La branche croissante - 0,45 μm < d < 15 μm**

Les résultats de l'analyse dans ce sous domaine sont donnés sur la figure 2.45 :

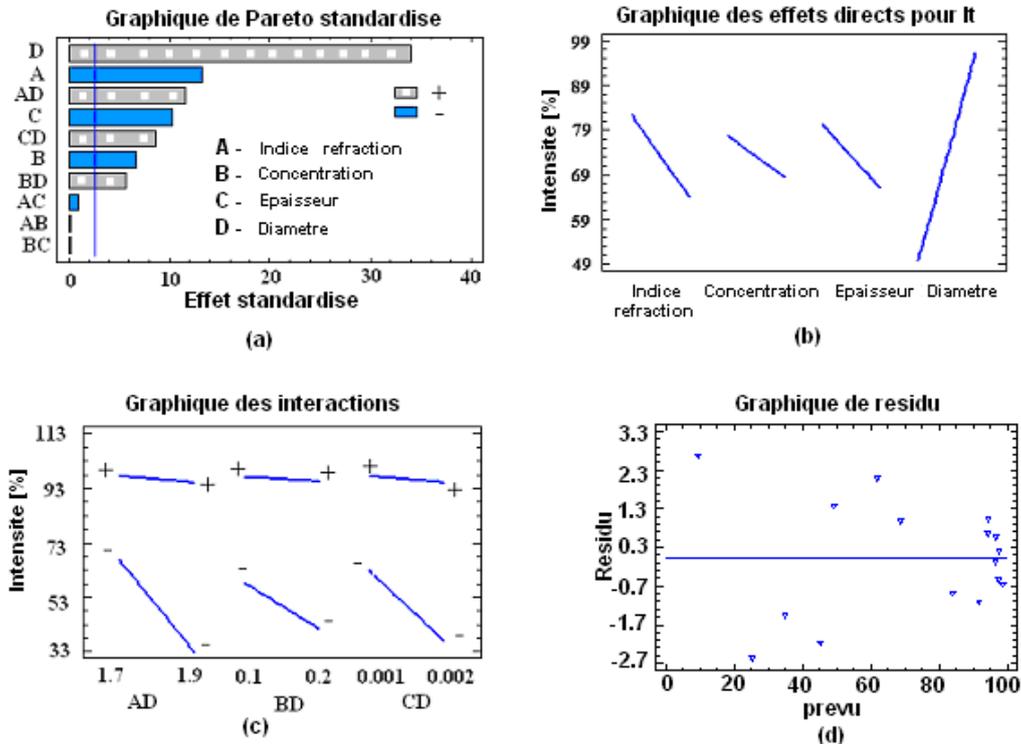


Figure 2.45 L'analyse des facteurs de l'influence sur l'intensité transmise pour le diamètre de particules entre 0,45 – 15μm

Dans ce sous domaine le diamètre a un effet inverse de celui observé dans le sous domaine précédent (figure 2.45-a, b). Au fur et à mesure que le diamètre s'éloigne du diamètre critique l'atténuation de l'intensité diminue. En ce qui concerne l'ordre de l'importance des facteurs et leurs interactions on remarque la même hiérarchisation. En revanche, on observe la même inversion pour les effets des interactions entre les facteurs.

A noter que dans ce sous domaine, si le diamètre est à son niveau haut, cas pour des milieux chargés avec des particules de gros diamètre, les effets des trois autres facteurs sur l'atténuation de la radiation deviennent faibles. Mais les effets de ces facteurs restent importants pour des diamètres voisins du diamètre critique (figure 2.45-c).

## 2.5. Conclusions

Nous avons décrit dans ce chapitre un modèle hybride, basé sur la théorie de Mie et la méthode de Monte Carlo, capable de modéliser le comportement d'un faisceau laser à travers un milieu hétérogène en ce qui concerne l'atténuation de l'intensité et l'élargissement. Ayant comme application, l'étude de l'interaction laser - matière dans le cas des polymères semi-transparents, nous avons établi un domaine d'exploration à partir des situations les plus communes que nous pouvons rencontrer dans le cas d'un soudage laser. Le modèle est fondé sur l'approximation de la diffusion multiple indépendante. Le domaine exploré s'inscrit dans les limites de validité de cette approximation.

Les mesures réalisées sur des échantillons chargés ont confirmée les résultats obtenus par simulations numériques.

L'analyse des facteurs d'influence a permis de retirer des informations intéressantes sur le comportement du faisceau laser. Nous avons vu qu'on peut délimiter trois domaines ayant un comportement différent du point de vue optique, en fonction du diamètre des particules :

- i. un domaine pour lequel les particules sont plus petites que  $\lambda / 10$ , où le milieu se comporte comme un milieu homogène;
- ii. un domaine pour lequel le milieu est diffusant, et tel que le diamètre des particules a une valeur proche d'un diamètre critique de l'ordre de  $\lambda/2$ , et où l'atténuation de l'intensité et l'élargissement du faisceau peuvent être importants;
- iii. un domaine tel que les particules sont plus grandes que  $20 \lambda$ , où le milieu redevient homogène.

L'analyse de l'influence de chaque facteur nous a permis l'identification des combinaisons (diamètre - indice relatif - concentration - épaisseur) qui peuvent conduire aux atténuations fortes du faisceau avec des conséquences sur le processus de soudage.

Un aspect très important pour la suite est le comportement similaire, vis-à-vis de la diffusion du faisceau laser, des différents milieux diffusants. Nous avons vu qu'un milieu chargé avec de particules polydispersées va produire la même atténuation et le même élargissement du faisceau laser qu'un milieu qui contient des particules monodispersées mais de diamètre plus grande. Cet aspect servira comme point de départ dans l'identification d'un matériau équivalent

## 3. L'INTERACTION LASER – POLYMERES OPAQUES

---

### 3.1. Aspects théoriques

#### 3.1.1. Modélisation thermique

Les phénomènes qui gouvernent la formation du cordon soudé étant activés thermiquement, il est important de connaître l'évolution de la température dans les deux composants à souder.

En ce que concerne la modélisation thermique du processus de soudage, les modèles développés sont adaptés au moyen de soudage utilisé. Une comparaison entre eux est donc difficile à réaliser. En principe, tous ces modèles sont basés sur la résolution de l'équation de diffusion de la chaleur par différentes méthodes. Les différences apparaissent en ce qui concerne la définition de la source thermique et les conditions aux limites établies. Pour la plupart des procédés de soudage, les sources thermiques définies sont surfaciques : le soudage par résistance [Lamethe 04], [Lamethe 05], [Stavrov 05], [Stokes 98], par ultrasons [Matsuoka 95], [Bates 04], par induction [Lin 91], etc.... Dans le cas du soudage laser, l'effet thermique apparaît dans le volume du matériau comme une conséquence de la transformation énergie électromagnétique- énergie thermique, la source thermique définie doit être volumique [Potente 99], [Kneip 04] [Becker 02], [Prabhakaran 06].

La modélisation de la source volumique dépend de la relation entre l'épaisseur de peau du matériau et la profondeur de pénétration définie par :  $l_{th} = \sqrt{a\tau}$  (encore appelée longueur de diffusion) où  $a$  est la diffusivité du matériau et  $\tau$  la durée d'interaction. Lorsque l'épaisseur de peau est beaucoup plus petite que la profondeur de pénétration alors on considère que la source est surfacique, c'est le cas de la plupart des métaux (pour les métaux, l'épaisseur de peau est de l'ordre de quelques centaines d'Angström), dans ce cas, la puissance du laser intervient alors comme source surfacique. En revanche, dans le cas des matériaux plastiques, un matériau peut être semi-transparent au rayonnement laser : l'apport d'énergie par la source s'effectue alors non seulement en surface mais aussi en volume.

Notre objectif est de modéliser d'abord le comportement thermique du matériau thermoplastique et d'appliquer ensuite cette modélisation au cas du soudage de deux composants : l'un est transparent et diffusant, le second est absorbant.

#### A. Equation de diffusion de la chaleur

Pour modéliser le comportement thermique du matériau absorbant, on utilise l'équation générale de diffusion de la chaleur.

$$\vec{\nabla} \left[ k(T) \vec{\nabla} T \right] + q_v = \rho \cdot c(T) \cdot \frac{\partial T}{\partial t} \quad (3.1)$$

où  $k(T)$  est la conductivité thermique,  $\rho$  la masse volumique et  $c(T)$  la capacité thermique massique.

Les matériaux concernés par cette étude sont des matériaux amorphes pour lesquelles le passage vers l'état liquide implique une transition du second ordre – la transition vitreuse. Autour de la température de transition vitreuse, le polymère subit un accroissement de sa capacité thermique sans consommer de chaleur latente. Le terme qui normalement doit prendre en compte la chaleur latente de fusion n'apparaît pas pour ce type de matériaux.

On suppose également que les matériaux modélisés sont isotropes, homogènes et que leurs paramètres thermo-physiques peuvent varier avec la température.

Dans la définition de la source thermique d'intensité  $q_v$ , on considère une absorption de la radiation incidente dans une couche très mince (figure 3.1), le rayon du faisceau restant constant sur cette épaisseur et égal au rayon incident et un comportement linéaire du matériau. La réduction de l'intensité est donc due à l'absorption décrite par la loi de Beer – Lambert :

$$q_v(r, z) = p_i(r) \cdot \alpha \cdot e^{-\alpha \cdot z}$$

où  $p_i$  est la densité de puissance du faisceau incident

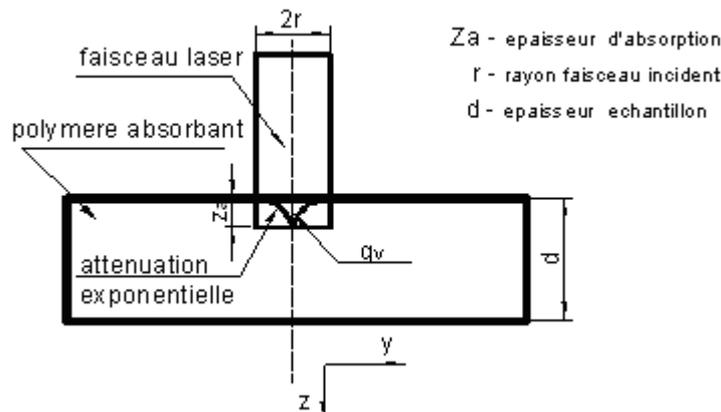


Figure 3.1 Représentation schématisée de l'absorption du faisceau laser dans le matériau absorbant

Le transfert thermique entre l'échantillon et le milieu environnant est pris en compte par le coefficient global de transfert de chaleur, les conditions aux limites peuvent donc être écrites sous la forme :

$$-k(T) \cdot \vec{\nabla} T \cdot \vec{n} = h \cdot (T_\infty - T) + \varepsilon \sigma (T_\infty^4 - T^4) \quad (3.2)$$

$\vec{n}$  le vecteur normal à la surface,  $h$  coefficient de transfert de chaleur par convection,  $\varepsilon$  l'émissivité et  $T_\infty$ , la température du milieu environnant.

### B. Géométrie du problème

Nous avons choisi de modéliser l'irradiation de l'échantillon sans qu'il y ait déplacement du faisceau laser par rapport à l'échantillon. Ceci nous permet la réduction de la géométrie à deux dimensions grâce à la symétrie axiale du problème (figure 3.2).

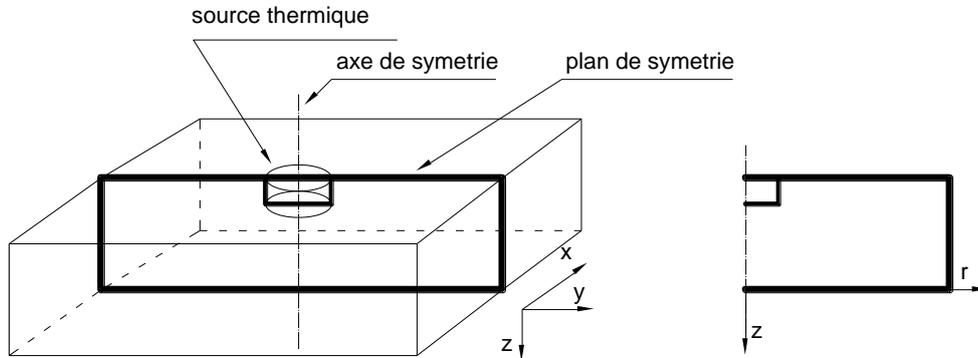


Figure 3.2: Géométrie utilisée pour la simulation à base des éléments finis

### C. Résolution numérique du problème

Le modèle mentionné ci-dessus est employé dans un code de simulation numérique par éléments finis (COMSOL). Le code génère automatiquement un maillage, dans notre cas, des éléments triangulaires, dont les dimensions et le raffinement peuvent être contrôlé par l'utilisateur. Dans la zone proche autour de l'axe du faisceau, on peut imposer une taille d'élément plus fine (comme le montre la figure 3.3) – (le maillage est raffiné).

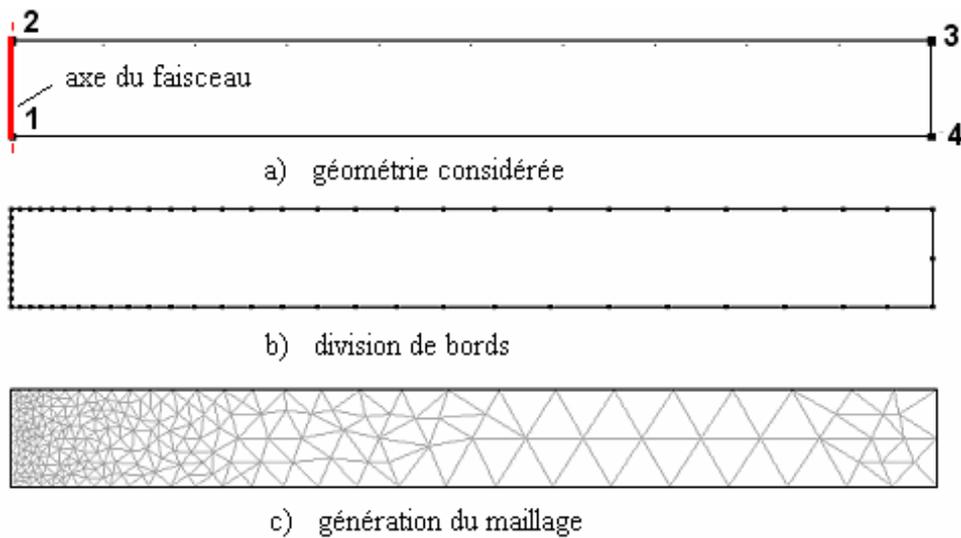
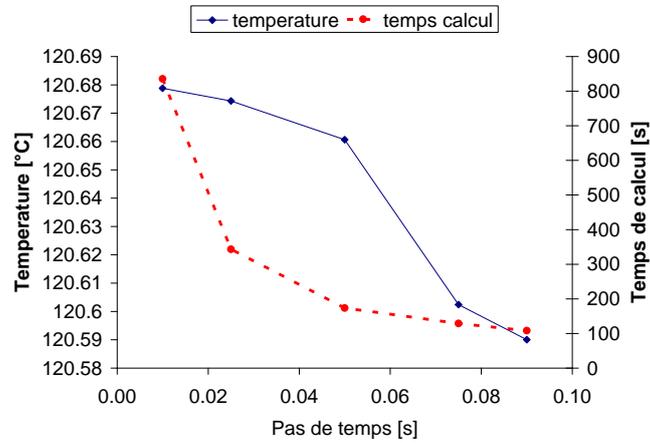
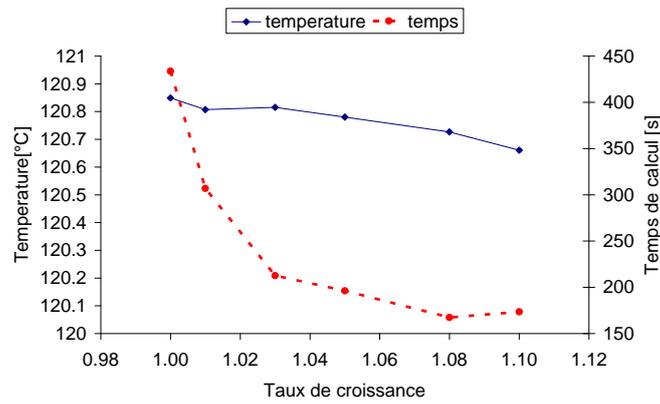


Figure 3.3 : Maillage utilisé pour la simulation à base des éléments finis

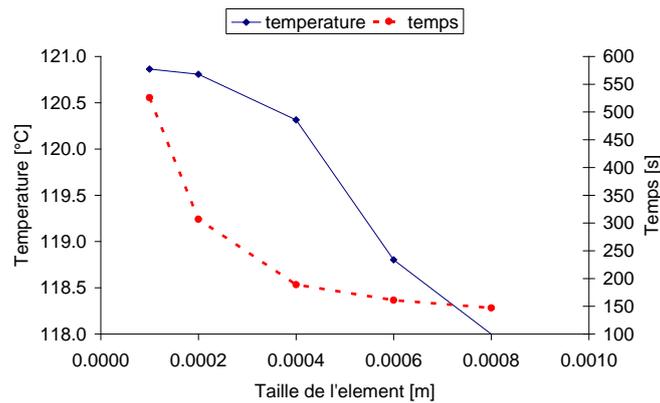
Une analyse des tailles de maillage et des pas de temps est nécessaire pour obtenir une combinaison optimale entre la précision du résultat et le temps du calcul. Les résultats de cette analyse sont présentés dans la figure 3.4 :



a) L'influence du pas de temps



b) L'influence du taux de croissance



c) L'influence de la taille de l'élément

Figure 3.4 : Influence des paramètres de calcul sur la précision des résultats et le temps de calcul

Si on considère la figure 3.4-a, on constate qu'une réduction du pas de temps à des valeurs plus petites que 0,05 s va doubler le temps total de calcul pour une augmentation de la précision de 0,02°C. Les résultats sont obtenus pour une taille des éléments sur l'axe du faisceau de 0,0002 m et un taux de croissance de 1,1.

En ce qui concerne le taux de croissance des éléments adjacents une valeur de 1,1 semble suffisante. Le choix d'une valeur plus petite ne conduit pas à l'augmentation de la précision comme il peut être observé sur la figure 3.4-b.

L'analyse sur l'influence de la taille de l'élément (figure 3.4-c) donne comme valeur optimale une taille de 0,0002 m pour les éléments définis sur l'axe du faisceau.

### 3.1.2. Résultats numériques

#### **A – Introduction**

La précision des résultats numériques dépend directement d'une bonne évaluation des paramètres liés aux propriétés du matériau.

Afin d'établir la sensibilité du modèle aux paramètres du modèle, nous avons étudié l'évolution du champ de températures en fonction de la variation de ceux-ci. Le comportement du matériau sera observé numériquement autant lors de l'échauffement que pendant le refroidissement. Un exemple de distribution des champs de températures dans le volume du matériau pendant les deux phases est donné sur la figure 3.5. Les profils thermiques que nous considérons dans le cadre de cette analyse sont les profils dans le centre du faisceau sur les deux faces de l'échantillon (figure 3.6)

Les simulations sont réalisées pour un faisceau incident collimaté, ayant un profil trapézoïdal de la distribution de l'énergie et les rayons caractéristiques  $r_1 = 2,3$  mm et  $r_2 = 3,8$  mm et un échantillon de 2 mm épaisseur, irradié en mode continu.

A partir des quelques simulations préliminaires, nous constatons tout d'abord que les profils thermiques obtenus varient différemment selon la valeur du coefficient d'absorption attribuée au matériau. Pour des matériaux faiblement absorbants, on remarque qu'une petite variation de ce coefficient conduit à des différences importantes des températures. En revanche, pour la même variation de celui-ci, mais autour d'une valeur élevée, les différences de températures obtenues sont moins significatives. En ce qui concerne l'influence des autres paramètres liés aux propriétés du matériau, la capacité thermique et la conductivité, on observe aussi des influences plus ou moins importantes selon l'absorptivité du matériau. L'étude de ces influences sera traitée plus loin.

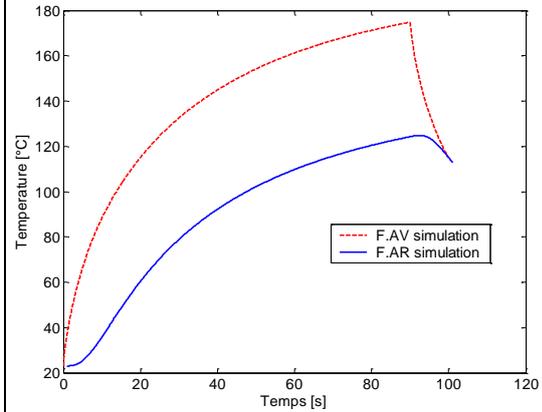
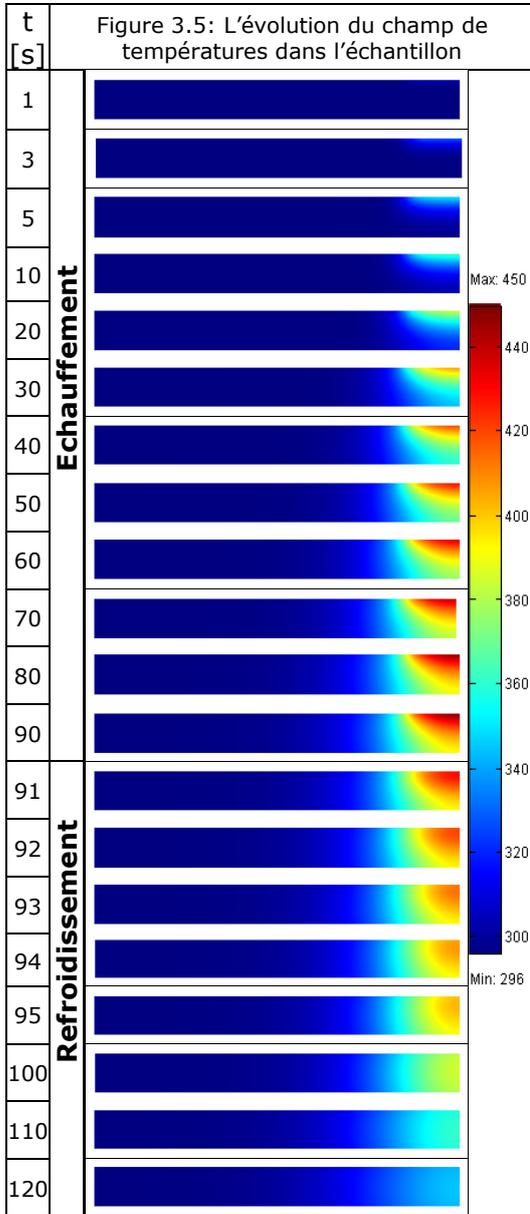


Figure 3.6 : Evolution de la température dans le centre du faisceau sur la face avant et la face arrière de l'échantillon pendant les deux phases : échauffement et refroidissement (épaisseur plaque 2mm, P=0,6W, , c=1600 J.kg<sup>-1</sup>.K<sup>-1</sup>, k=0,21W.m<sup>-1</sup>K<sup>-1</sup>)

**B. Résultats de l'analyse factorielle**

On envisage une analyse factorielle pour quantifier l'influence de chaque paramètre sur les profils de températures obtenus. Nous avons étudié deux cas différents : le cas d'un matériau faiblement absorbant et celui d'un matériau ayant un coefficient d'absorption élevée. Les valeurs choisies sont :

-  $a_1 = 500 m^{-1}$  qui implique une atténuation en 1/e pour une épaisseur de 2 mm ;

$-a_2 = 10000m^{-1}$  qui induit une absorption pratiquement totale (épaisseur pour  $1/e=0,1$  mm)

Les niveaux établis pour les facteurs sont donnés dans le tableau suivant.

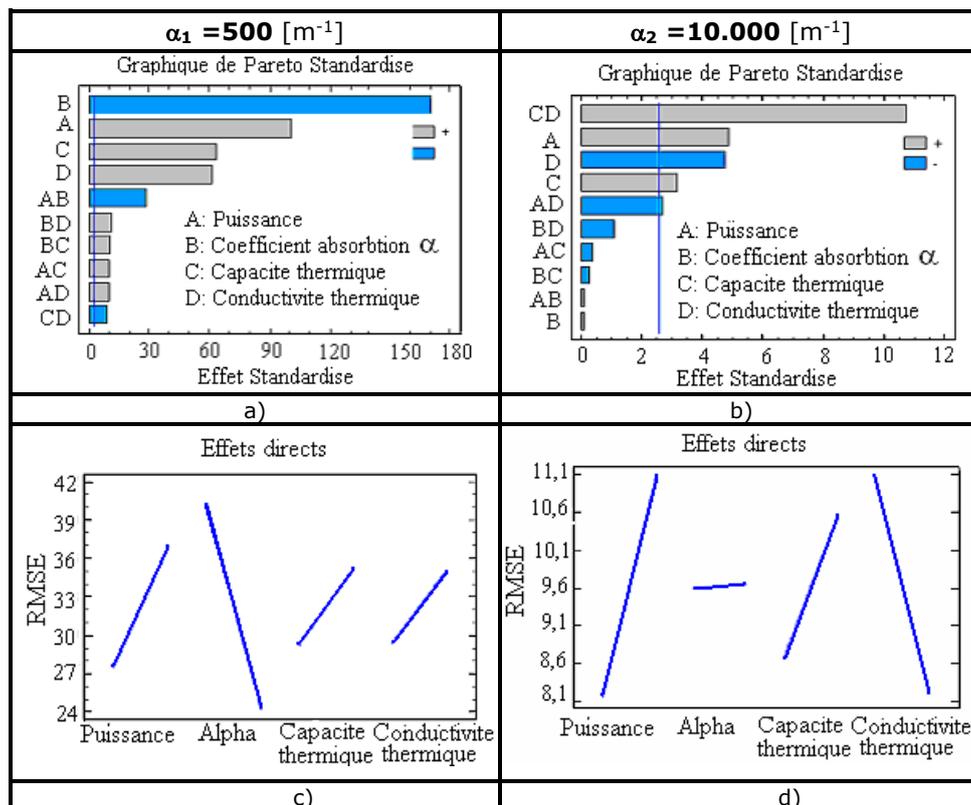
Tableau III.1 Niveaux de variation pour les facteurs d'influence

Niveaux facteurs	$\alpha$ [ $m^{-1}$ ]		$k$ [ $Wm^{-1}K^{-1}$ ]	$c$ [ $Jkg^{-1}K^{-1}$ ]	Puissance [W]
	$\alpha_1 = 500$	$\alpha_2 = 10000$			
Niveau inférieur	300	8000	0,16	1200	0,27
Niveau supérieur	700	12000	0,26	2000	0,39

La fonction objectif de cette analyse est la racine de l'erreur quadratique moyenne RMSE (Root Mean Squared Error) (3.3) calculée entre les données simulées et les deux profils thermiques (face avant, face arrière) mesurés par thermographie infrarouge pour les deux niveaux de la puissance laser.

$$RMSE = \sqrt{\frac{1}{n} \sum_{i=1}^n (y_i - \hat{y}_i)^2} \tag{3.3}$$

Les résultats obtenus pour chaque type de matériau sont présentés ensemble dans les figures suivantes.



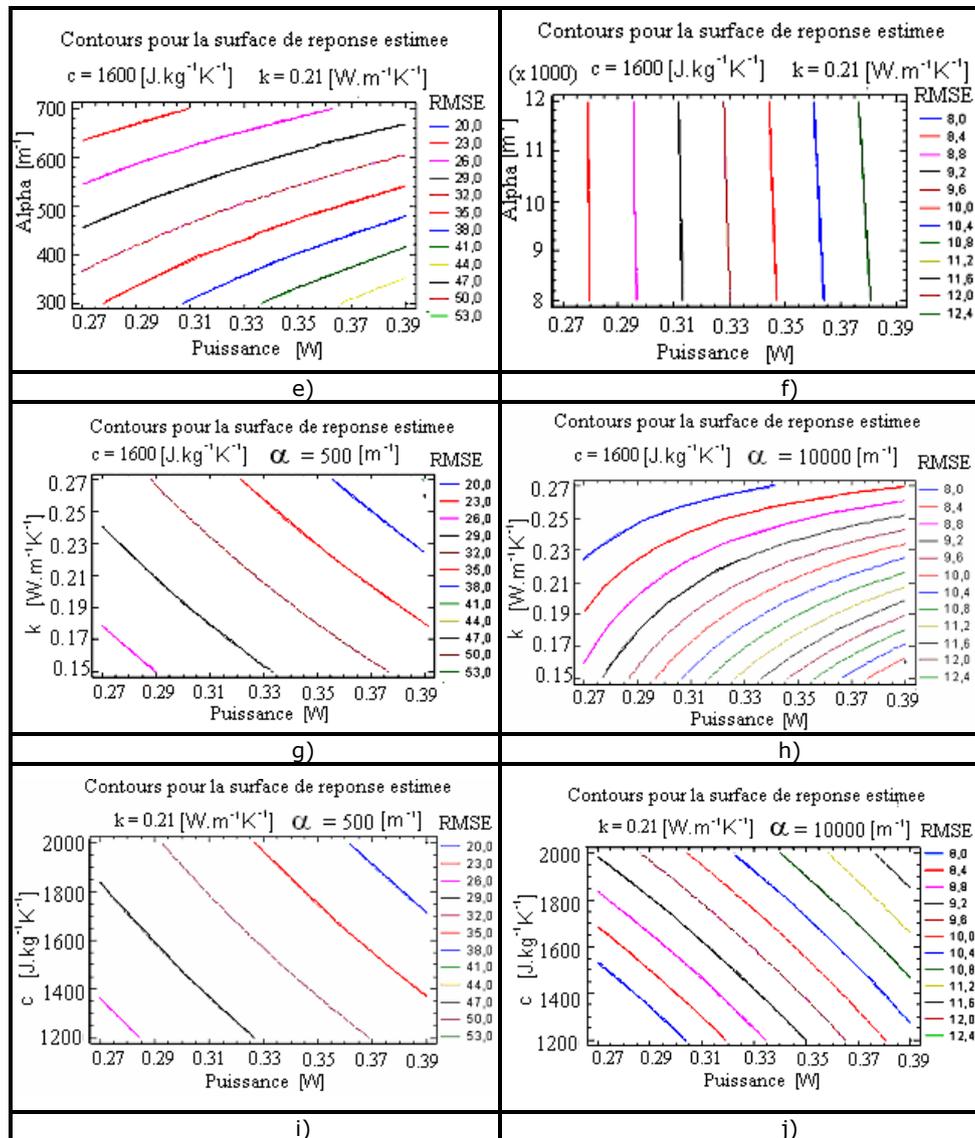


Figure 3.7 : L'analyse des facteurs influençant l'évolution du champ de températures

Examinons à présent l'importance des facteurs dans les deux cas analysés : il apparaît qu'il s'agit de deux comportements très différents selon la valeur l'absorption du matériau. Le graphique de Pareto (figure 3.7-a et b) relève très bien ces différences.

Pour un matériau faiblement absorbant tous les facteurs sont importants, leurs variations produisant des effets importants sur les températures obtenues. Le plus important est le coefficient d'absorption et on observe qu'une augmentation de sa valeur conduira à des variations plus faibles de la température donc à une diminution des erreurs. Ce fait est plus évident dans le cas d'un matériau absorbant pour lequel ce coefficient perd son importance : en effet, de grandes variations de celui-ci ne conduisent pas à des températures très différentes. Donc, selon la valeur

de l'absorptivité du matériau, on peut obtenir des erreurs plus ou moins importantes. Cette présente est un atout majeur de la simulation numérique car elle permet de déterminer s'il est nécessaire ou non de prendre en compte les variations avec la température des paramètres. En effet il est difficile, voire impossible, de trouver dans la littérature les valeurs des données thermophysiques en fonction de la température. Aussi cette étude permet de justifier, ou non, le choix de valeurs constantes que l'on peut plus aisément inclure dans le modèle.

Même si on se rapproche par simulation des valeurs mesurées pour une puissance laser avec une erreur considérée acceptable, la même combinaison des paramètres produira une autre erreur, en général plus grande, si on augmente la puissance de la source. Tous ces aspects sont très bien représentés sur les graphiques des contours (isolignes), pour la surface de réponse estimée (figure 3.7 e, f, g, h, i, j).

- a. **le coefficient d'absorption** (figures 3.7 e, f)
  - **matériau faiblement absorbant** : l'augmentation de sa valeur conduit vers des erreurs plus petites; ces erreurs augmentent avec l'augmentation de la puissance ;
  - **matériau fortement absorbant** : même pour de grandes variations de celui-ci, les erreurs restent constantes pour une puissance donnée; elles augmenteront avec la puissance mais de façon moins significative que dans le cas précédent (trois fois moins) ;
- b. **la conductivité thermique** (figures 3.7 g, h)
  - **matériau faiblement absorbant** : l'augmentation de sa valeur conduit vers des erreurs plus grandes pour une puissance donnée; ces erreurs augmenteront aussi avec l'augmentation de la puissance ;
  - **matériau fortement absorbant** : dans ce cas, l'augmentation de la conductivité thermique tend à réduire les erreurs, avec; pour les mêmes variations que dans le cas précédent, des erreurs diminuées de moitié. On observe une augmentation de l'erreur avec la puissance, mais cependant moins significative que dans le cas d'un matériau faiblement absorbant ;
- c. **la capacité thermique** (figures 3.7 i, j) – ce paramètre a la même influence pour les deux types de matériaux, c'est-à-dire un accroissement de sa valeur produira des erreurs plus grandes ; la différence consiste dans l'ordre de grandeur.

A partir de cette analyse on peut dire que dans le cas de la modélisation du comportement thermique d'un matériau faiblement absorbant, la précision des résultats numériques est fortement conditionnée par la connaissance des lois de variation de ces propriétés avec la température. Cette exigence peut être ignorée pour les matériaux fortement absorbants où l'utilisation de constantes peut donner des profils thermiques proches de ceux mesurés, quelques soient les paramètres du processus.

En ce qui concerne les coefficients des conditions aux limites, on obtient un écart maximum entre les profils thermiques de 3,2°C pour une variation de 50% du

coefficient d'échange de chaleur dans le cas du matériau faiblement absorbant ( $\alpha=500\text{m}^{-1}$ ) et un écart maximum de  $5,3^\circ\text{C}$  pour la même variation de 50% dans le cas du matériau fortement absorbant ( $\alpha = 10000\text{m}^{-1}$ ).

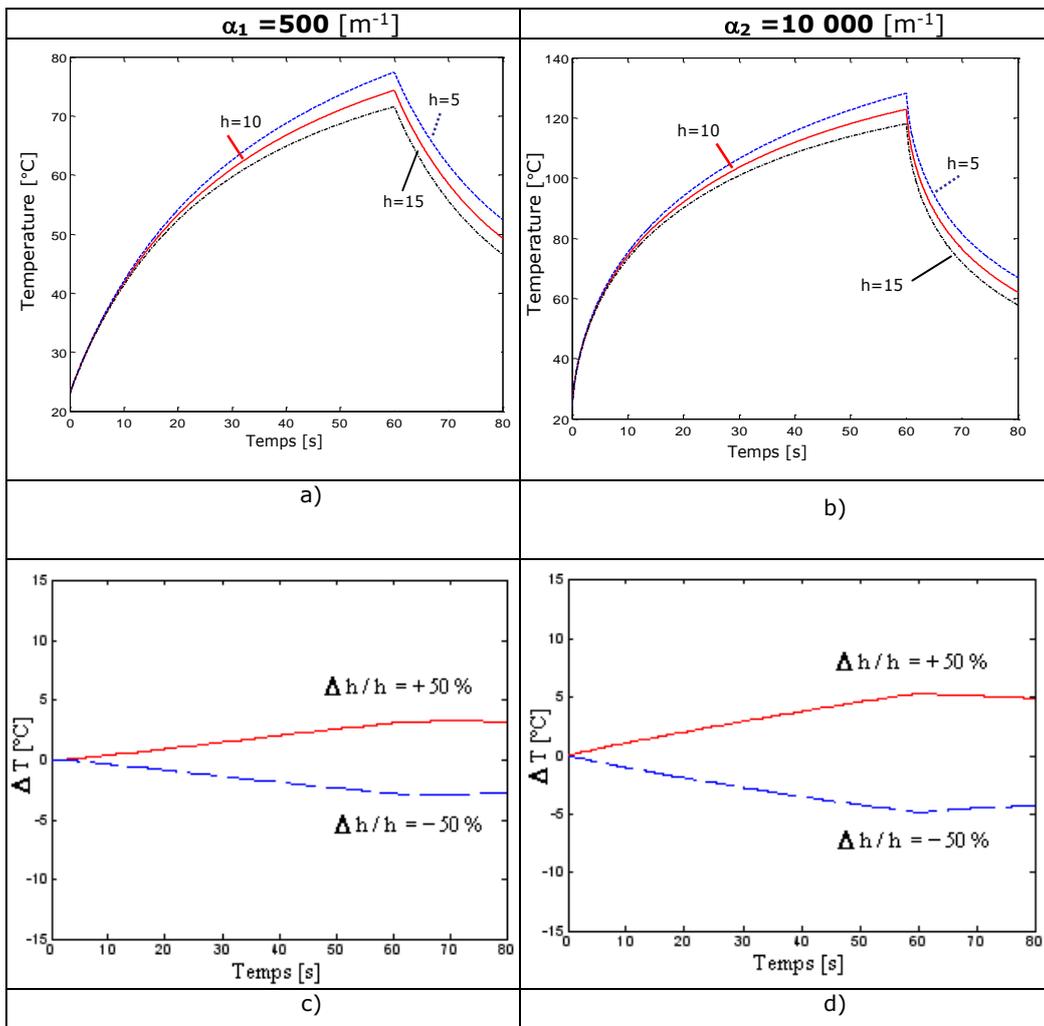


Figure 3.8 : Evolution de la température au centre du spot laser sur la face avant de la plaque (a) et (b) et de l'écart maximum (c) et (d) pour une variation de 50% du coefficient d'échange et les coefficients d'absorption indiqués ( $P=0,33\text{W}$ ,  $c=1600 \text{ J}\cdot\text{kg}^{-1}\cdot\text{K}^{-1}$ ,  $k=0,21\text{W}\cdot\text{m}^{-1}\cdot\text{K}^{-1}$ )

La variation de l'émissivité du matériau a peu d'effet sur les profils thermiques simulés comme le montre la figure 3.9.

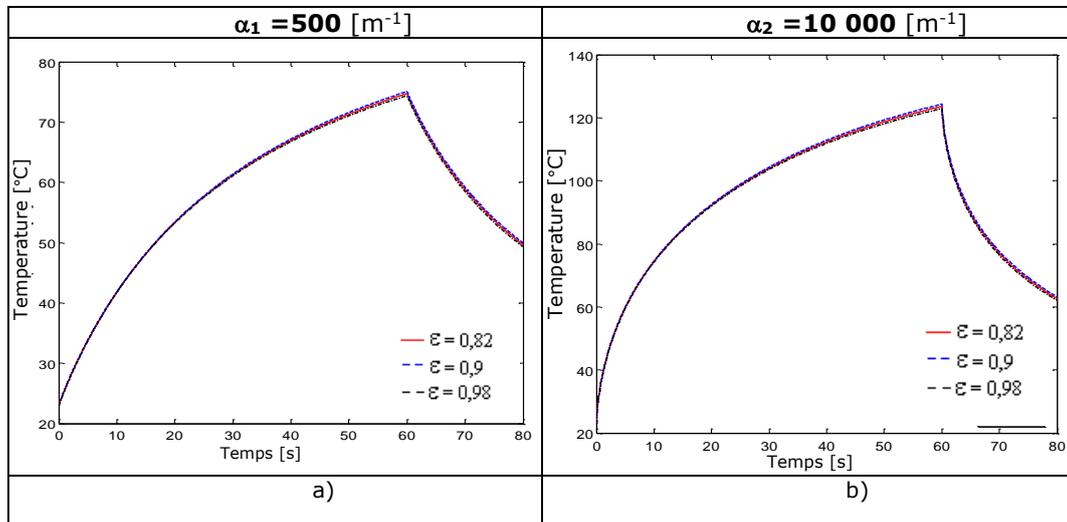


Figure 3.9 : Evolution de la température au centre du faisceau sur la face avant de la plaque pour une variation de 50% de l'émissivité et les coefficients d'absorption indiqués ( $P=0,33\text{W}$ ,  $c=1600\text{ J.kg}^{-1}.\text{K}^{-1}$ ,  $k=0,21\text{W.m}^{-1}\text{K}^{-1}$ ,  $h = 10\text{ W.m}^{-2}\text{K}^{-1}$ )

## 3.2. Aspects expérimentaux

### 3.2.1. Caractéristiques thermiques des matériaux utilisés

Le matériau absorbant dans notre cas est un alliage de ABS-PC (acrylonitrile butadiène styrène – polycarbonate) chargé avec du noir du carbone. Les mesures en transmission réalisées sur différentes épaisseurs indiquent une opacité totale du matériau, on suppose donc une concentration élevée du pigment dans sa matrice. L'analyse par thermogravimétrie relève un résidu de 11%. Étant donnée sa totale opacité, une estimation du coefficient d'absorption est très difficile à obtenir.

Des mesures expérimentales [Korte 97] donnent des valeurs aux alentours de  $2400\text{ m}^{-1}$  pour une concentration en noir de carbone de 0,1 %, et de  $7800\text{ m}^{-1}$  pour 0,3 %. Le pourcentage de résidu obtenu dans notre cas est susceptible de contenir aussi du carbone pyrolytique résultant de la décomposition du polycarbonate. Même dans ces conditions, la concentration reste trop élevée et on doit soupçonner une valeur importante du coefficient d'absorption.

Une solution, pour résoudre cet aspect, peut consister en une calibration réalisée pour différentes puissances laser. On détermine les lois de variation avec la température pour les autres paramètres du matériau et on cherche la valeur du coefficient d'absorption pour laquelle on obtient le meilleur ajustement.

La variation de la capacité thermique massique (figure 3.11) est obtenue par DSC (differential scanning calorimetry) pour une variation de la température [20 - 290°C]. Les sauts de la capacité thermique autour de la température de transition vitreuse ne sont pas très grands et on peut approximer sa variation à l'aide d'une loi linéaire de la forme :

$$c = 7,8027 \cdot T + 894,51$$

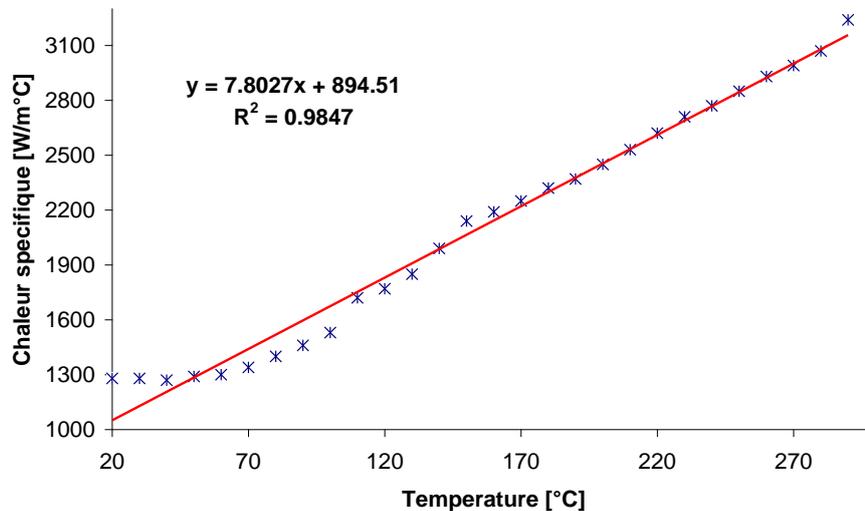


Figure 3.10 : L'évolution de la capacité thermique massique de ABS-PC en fonction de la température

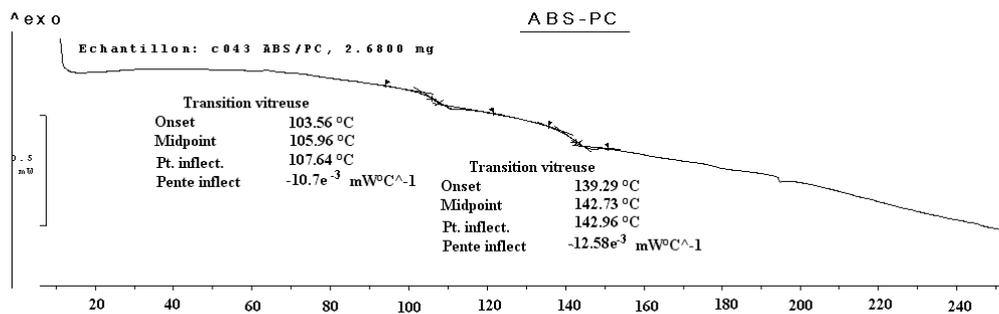


Figure 3.11 : Les températures de transition vitreuse pour l'échantillon de ABS-PC

En ce qui concerne l'évolution de la conductivité thermique, on utilise les mesures réalisées par National Physicien Laboratoire, UK sur ABS et PC [Dawson 06]. Leur étude concerne la variation de la conductivité thermique avec la température et la pression et a permis de développer un modèle pour décrire cette variation (formule 3.4).

$$k = k_0 \left[ \exp(u_i (T - T_0)) \right] \left[ \exp(v_i T (p - p_0)) \right] \quad (3.4)$$

où  $T_0$  [K],  $p_0$  [MPa] sont la température et la pression de référence,  $k_0$  la valeur de la conductivité à la température  $T_0$  et à la pression  $p_0$ , et  $u_i$  et  $v_i$  des constantes.

Pour l'ajustement réalisé, les valeurs de références sont  $T_0 = 523,15\text{K}$  et  $p_0 = 80\text{MPa}$ . On obtient pour l'ABS  $u_i = 0,00167 \text{ K}^{-1}$  et  $v_i = 1,84 \cdot 10^{-6} \text{ K}^{-1}\text{MPa}^{-1}$  et pour le PC  $u_i = 0,00195 \text{ K}^{-1}$  et  $v_i = -3,99 \cdot 10^{-9} \text{ K}^{-1}\text{MPa}^{-1}$ . La variation de la conductivité thermique pour ABS-PC est obtenue en faisant une loi de mélange :

$$k_{\text{ABS-PC}} = 0,6 \cdot k_{\text{ABS}} + 0,4 \cdot k_{\text{PC}}$$

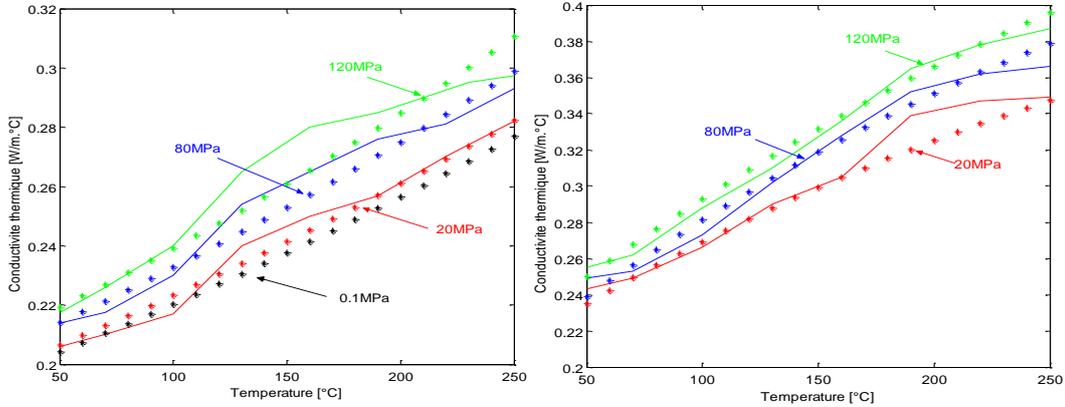


Figure 3.12: Evolution de la conductivité thermique de ABS (a) et PC (b) en fonction de la température et pression réalisées par NPL et leur ajustement à partir de la formule 3.4

### 3.2.2. Le dispositif expérimental

Les mesures expérimentales des profils thermiques sur les deux faces de l'échantillon absorbant sont réalisées en utilisant le même dispositif expérimental que pour les mesures de diffusion en ce qui concerne la source laser et le montage optique (figure 3.13). Cette fois, le capteur est une caméra infrarouge ThermaCAM S60 équipée d'un objectif macroscopique qui donne une résolution spatiale de 100 µm. Les spécifications techniques sont données dans le tableau suivant :

Domaine de longueur d'onde	7,5 – 13µm
Fréquence d'acquisition	50 – 60 Hz
Précision	± 2°C ou ± 2%
Sensitivité thermique	0,06°C a 30°C

Les profils thermiques sur la face avant et la face arrière de l'échantillon de l'ABS-PC sont obtenus en positionnant la caméra dans les positions 1 et 2.

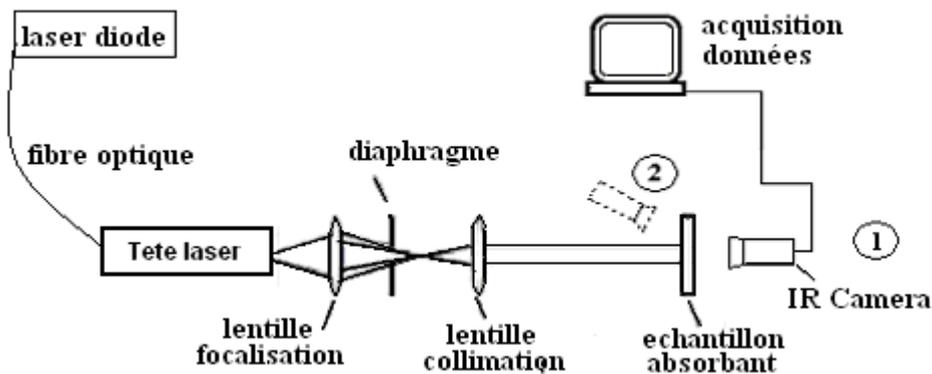


Figure 3.13 : Dispositif expérimental pour les mesures par caméra infrarouge

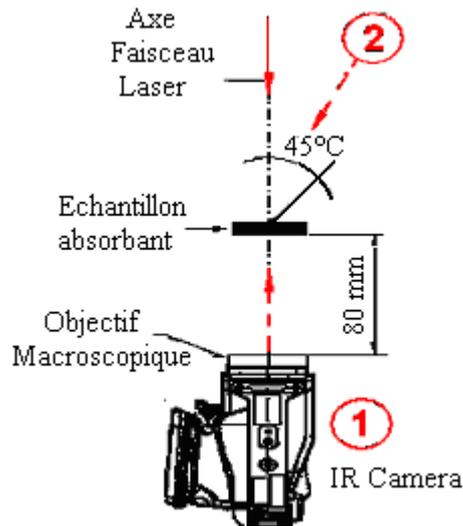


Figure 3.14 : Schéma de principe des mesures par caméra infrarouge

Les puissances utilisées sont faibles en raison du choix du montage optique. Pour un faisceau gaussien, donc une ouverture du diaphragme très petite, on n'obtient pas un échauffement significatif de l'échantillon. En augmentant l'ouverture, le faisceau devient plus grand, avec un profil trapézoïdal et une puissance maximale de 0,4 W. Les deux rayons caractéristiques sont.  $r_1 = 2,3$  mm et  $r_2 = 3,8$  mm

### 3.2.3. Mesures des températures de surface par thermographie infrarouge

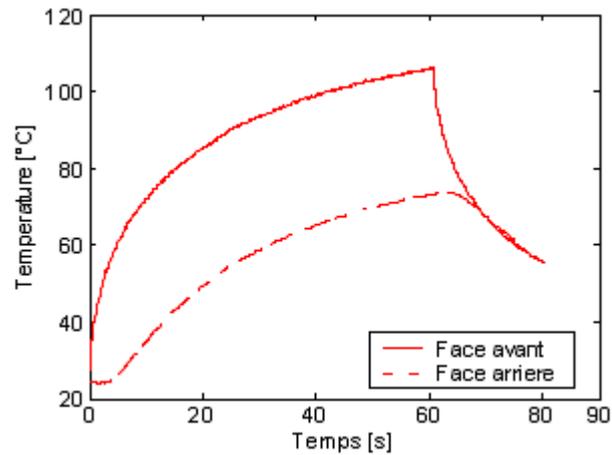
Une difficulté fondamentale rencontrée dans le contrôle du processus de soudage des polymères par transparence provient du fait que les composants doivent impérativement rester en contact pendant toute l'intervention. Les techniques classiques utilisées pour mesurer la température d'un objet sont souvent mal appropriées dans ce cas. Par exemple, les thermocouples ne peuvent pas être utilisés, puisqu'ils absorbent eux-mêmes la radiation laser et donc les températures qu'ils fournissent ne correspondent pas à la température réelle dans le plastique.

Un autre moyen pour estimer la distribution des champs de températures dans les matériaux plastiques est la détermination de l'épaisseur de la couche fondue mais elle n'est applicable qu'aux polymères semi cristallins.

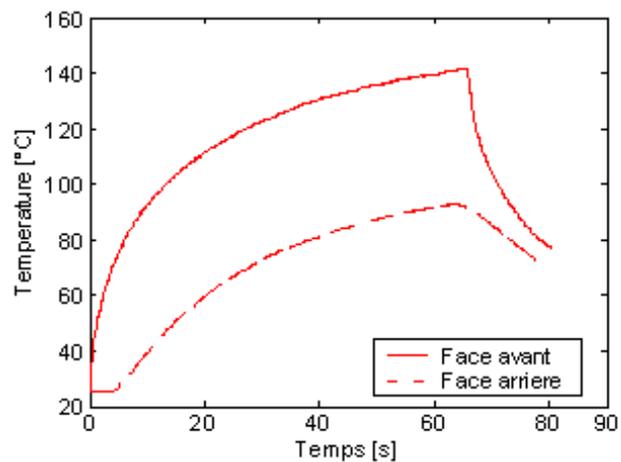
Une solution peut être l'utilisation d'une méthode de mesure sans contact, comme les pyromètres ou les systèmes infrarouges. Dans ce cas, on enregistre les températures de surface, et la précision des résultats est conditionnée par la connaissance de l'émissivité de la surface. Pour notre matériau, les mesures d'émissivité ont été réalisées en comparant l'indication de la camera infrarouge avec la température connue à laquelle le matériau a été préchauffé. La valeur trouvée a été de 0,98.

Les mesures sont réalisées sur des plaques d'ABS-PC d'épaisseur 2 mm, irradiées en mode continu. L'évolution de la température sur les deux faces opposées de l'échantillon est suivie aussi bien pendant l'échauffement que pendant

le refroidissement. Les résultats obtenus pour deux puissances laser sont représentés dans la figure 3.15.



a) puissance 0,27 W



b) puissance 0,39 W

Figure 3.15 : Les profils thermiques pour le centre du spot laser enregistrés sur les deux faces opposées de l'échantillon

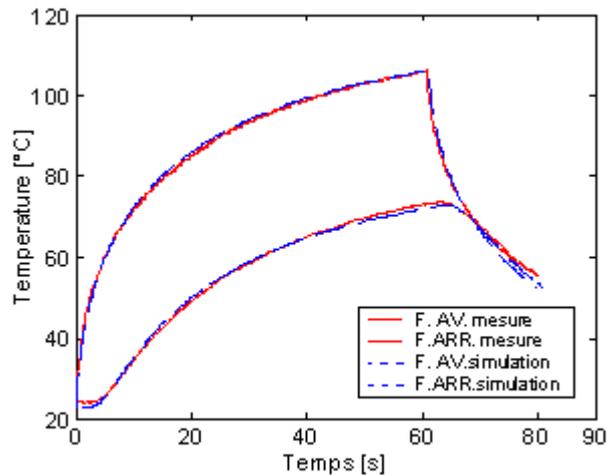
### 3.3. Comparaison expérience - théorie

Pour l'échantillon absorbant, nous avons considéré un coefficient d'échange de chaleur dépendant de la température de surface de l'échantillon selon la formule [Eyglunent 97]:

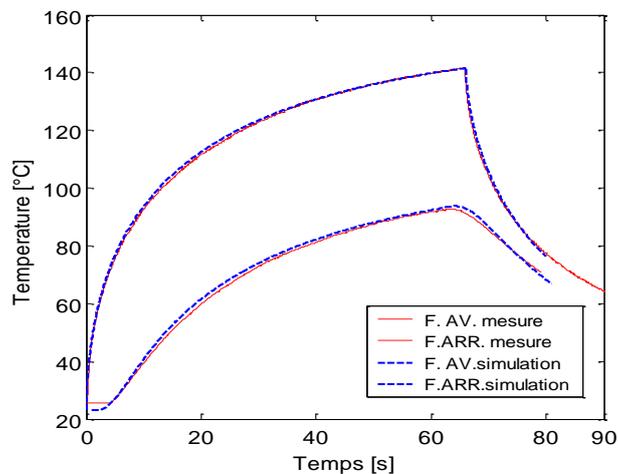
$$h(T) = 1,42 \left( \frac{T - T_a}{H} \right)^{0,25}$$

ou H est l'hauteur de la plaque.

En utilisant les résultats de la simulation numérique par éléments finis, nous avons réalisé une calibration pour le coefficient d'absorption d'ABS-PC. Le meilleur ajustement a été obtenu pour une valeur de  $19,5 \text{ mm}^{-1}$ .



a) puissance laser 0,27 W



b) puissance laser 0,39 W

Figure 3.16 : Ajustement des courbes expérimentales avec une valeur de  $19,5 \text{ mm}^{-1}$  pour le coefficient d'absorption

Tenant compte de la bonne corrélation entre les données simulées et mesurées, on peut considérer que le modèle développé est bien adapté à la modélisation du processus de soudage par laser. En faisant une corrélation entre les températures de surface mesurées par thermographie infrarouge et les températures simulées, on peut remonter par l'intermédiaire de ce modèle au champ de températures dans le volume du matériau polymère.

### 3.4. Assemblage de deux polymères non diffusants avec déplacement du faisceau

#### 3.4.1. Montage expérimental et caractéristiques des matériaux choisis

Un montage expérimental de soudage par transparence de deux polymères a été mis en oeuvre : une lame de PMMA est placée sur le dessus et une lame en ABS/PC rouge en dessous : La lame d'ABS/PC rouge est fortement absorbante, mais cependant moins que la lame d'ABS/PC chargée de noir de carbone étudiée dans le paragraphe précédent. Le faisceau laser (Laserline, puissance max 100W, longueur d'onde 0,808  $\mu\text{m}$ ) se déplace avec une vitesse de 0,4 m/mn pendant 6 s. Le faisceau est focalisé à la surface de la lame supérieure avec un diamètre de 1,7 mm. L'assemblage est posé sur une table à dépression en aluminium de manière à créer un bon contact entre les deux plaques de polymères (figure 3.17).

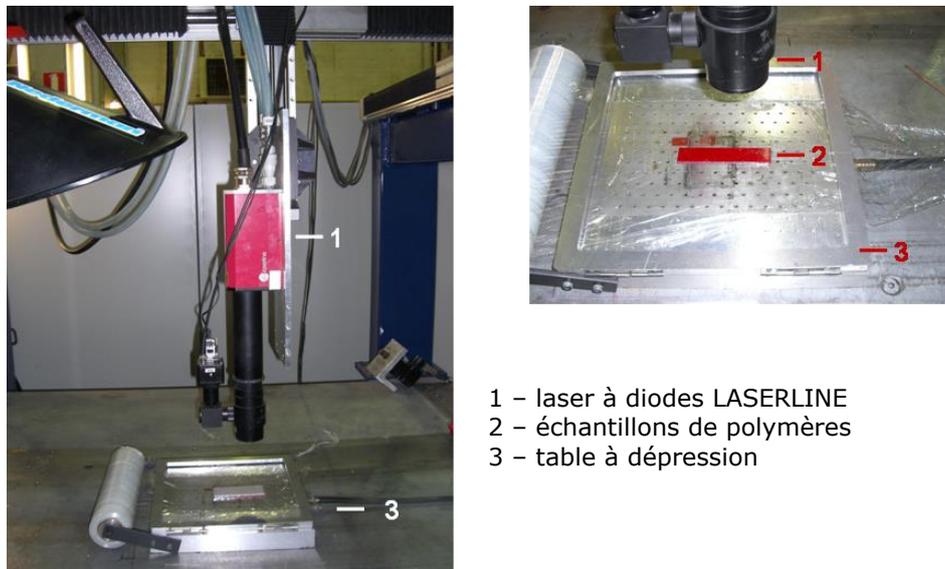


Figure 3.17: Montage expérimentale pour le soudage des polymères

Une étude a été menée au préalable de manière à chercher le couple de paramètres puissance – vitesse qui rendent l'assemblage le plus résistant. A l'issue de cette étude la puissance choisie est 48 W.

#### 3.4.2. Comparaison mesures - modèle

Le champ de température dans les deux éléments à assembler est déterminé par la résolution de l'équation de diffusion de la chaleur :

$$\vec{\nabla} \left[ k_i(T) \vec{\nabla} T \right] + q_{vi} = \rho_i \cdot c_{i1} \cdot \frac{\partial T}{\partial t} \quad (3.5)$$

où :  $q_{vi}(r, z) = p_{inti}(r) \cdot k_{exti} \cdot e^{-k_{exti}z}$

expressions dans lesquelles  $i$  est relatif soit au milieu faiblement absorbant, soit au milieu fortement absorbant.  $k_i$ ,  $\rho_i$ ,  $c_i$ , sont respectivement la conductivité thermique, la masse volumique et la capacité thermique massique de 2 milieux.

Pour l'échange de chaleur entre les deux éléments et le milieu environnant on utilise un coefficient global d'échange, la condition limite est :

$$-k_i(T) \cdot \vec{\nabla} T \cdot \vec{n} = h_{global} \cdot (T_\infty - T) \quad (3.6)$$

$\vec{n}$  est vecteur normal à la surface,  $h_{global}$ , le coefficient global d'échange de chaleur et  $T_\infty$ , la température du milieu environnant.

La résolution de l'équation nécessite la connaissance des paramètres thermophysiques des deux matériaux à assembler.

Les valeurs de la capacité thermique et de la température de transition vitreuse ont été déterminées par DSC (DSC 92).

La figure 3.18 montre l'évolution de la capacité thermique massique avec la température pour trois polymères étudiés dans un domaine de température de 20 à 200°C.

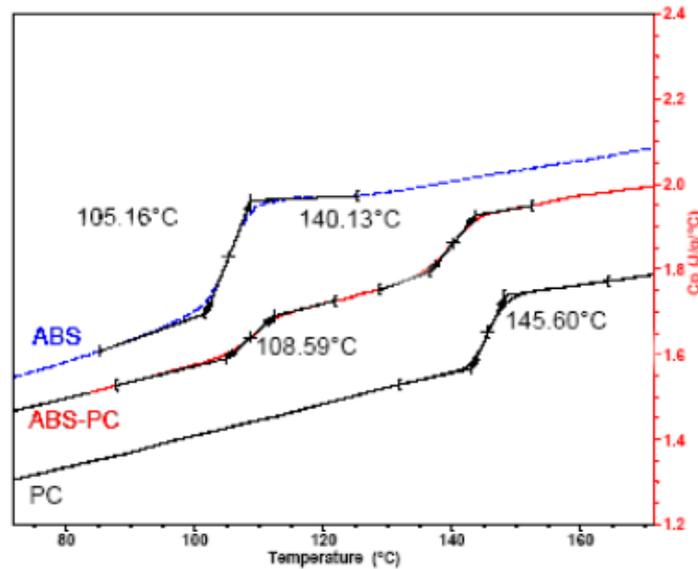


Figure 3.18: Capacité thermique massique pour l'ABS naturel, ABS-PC rouge et le PC

Les valeurs de la conductivité ont été déterminées à partir de valeurs données dans la littérature [Zhang 03] [Dawson 00].

La lame de PMMA est faiblement absorbante. Des mesures en transmission sont possibles et permettent de déterminer le coefficient d'extinction  $k_{ext}$ .

En revanche, la lame d'ABS/PC est très absorbante et les mesures par transmission sont impossibles. Nous avons choisi de déterminer ce coefficient expérimentalement en utilisant la comparaison entre le profil thermique obtenu par modélisation et le profil thermique obtenu expérimentalement par thermographie infrarouge. Nous avons donc choisi de comparer les mesures de la température de surface obtenues par thermographie infrarouge en cours d'irradiation de la plaque de polymère ABS/PC rouge seule, aux valeurs de température calculées par le

modèle. Les calculs de la température de surface ont été réalisés pour 3 valeurs du coefficient d'absorption. Les mesures thermographiques ont été réalisées à l'aide d'une caméra de thermographie FLIR Thermacam S40 (domaine de longueur d'onde : 7,5 – 13  $\mu\text{m}$ ).

L'émissivité pour le domaine de longueur d'onde de travail de la caméra a été mesurée en comparant l'émission du PMMA nu avec celle du PMMA recouvert de peinture noire d'émissivité connue. L'émissivité ainsi trouvée pour le PMMA et pour le domaine de longueur d'onde de travail de la caméra est de 0,96.



Figure 3.19: Observation du procédé par camera IR

Les valeurs mesurées perpendiculairement au passage du faisceau, et calculées, sont montrées sur la figure 3.20. Il apparaît clairement que la valeur du coefficient donnant un meilleur accord mesures -modèle est  $380 \text{ m}^{-1}$

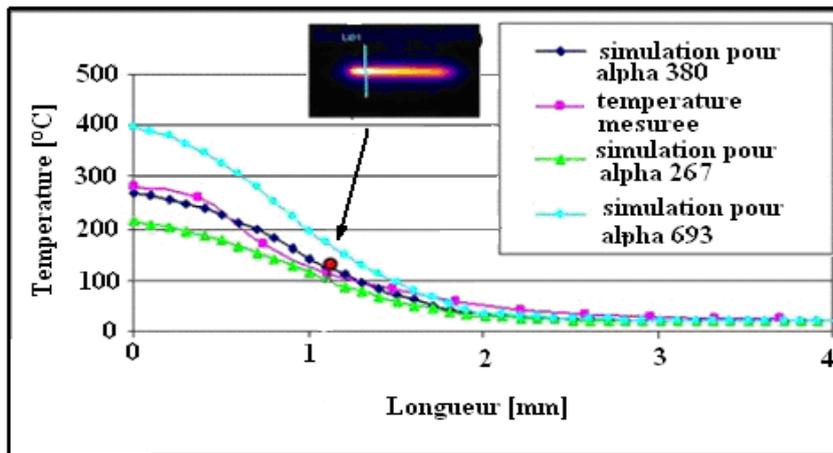


Figure 3.20: Profil de température en surface au niveau du passage du laser après 4s d'irradiation

Les caractéristiques géométriques et thermophysiques des deux lames utilisées sont réunies dans le tableau III.2 :

Tableau III.2 : Caractéristiques des matériaux utilisés

PMMA	ABS/PC
<b>épaisseur</b> [mm] : 2,25	<b>épaisseur</b> [mm] : 2,16
<b>coefficient d'extinction</b> [ $m^{-1}$ ] : 6	<b>coefficient d'absorption</b> [ $m^{-1}$ ] : 380
<b>masse volumique</b> [ $kg \cdot m^{-3}$ ] : pour $T \leq 97^\circ C$ $\rho = -2,135 \cdot T + 1203,7$ pour $T > 97^\circ C$ $\rho = -0,5 \cdot T + 1069$	<b>masse volumique</b> [ $kg \cdot m^{-3}$ ] : $\rho = -2,135 \cdot T + 1203,7$
<b>conductivité</b> [ $W \cdot m^{-1} \cdot K^{-1}$ ] : $k = -6 \cdot 10^{-9} T^3 + 3 \cdot 10^{-8} + 0,19$	<b>conductivité</b> [ $W \cdot m^{-1} \cdot K^{-1}$ ] : $k = -3 \cdot 10^{-4} T^3 + 0,19$
<b>capacité thermique massique</b> [ $J \cdot kg^{-1} \cdot K^{-1}$ ] : pour $T \leq 77^\circ C$ $c_p = 6,24 \cdot T + 1274$ pour $77^\circ C < T < 100^\circ C$ $c_p = 20,25 \cdot T + 200$ pour $T > 100^\circ C$ $c_p = 1,865 \cdot T + 1982,6$	<b>capacité thermique massique</b> [ $J \cdot kg^{-1} \cdot K^{-1}$ ] : pour $T \leq 115^\circ C$ $c_p = 5,436 \cdot T + 1057$ pour $115^\circ C < T < 145^\circ C$ $c_p = 0,27 \cdot T^2 - 63,5 \cdot T + 54$ pour $T > 145^\circ C$ $c_p = 2,857 \cdot T + 1515$

L'image suivante présente le profil de température calculé dans la section transverse au faisceau laser au cours de l'interaction.

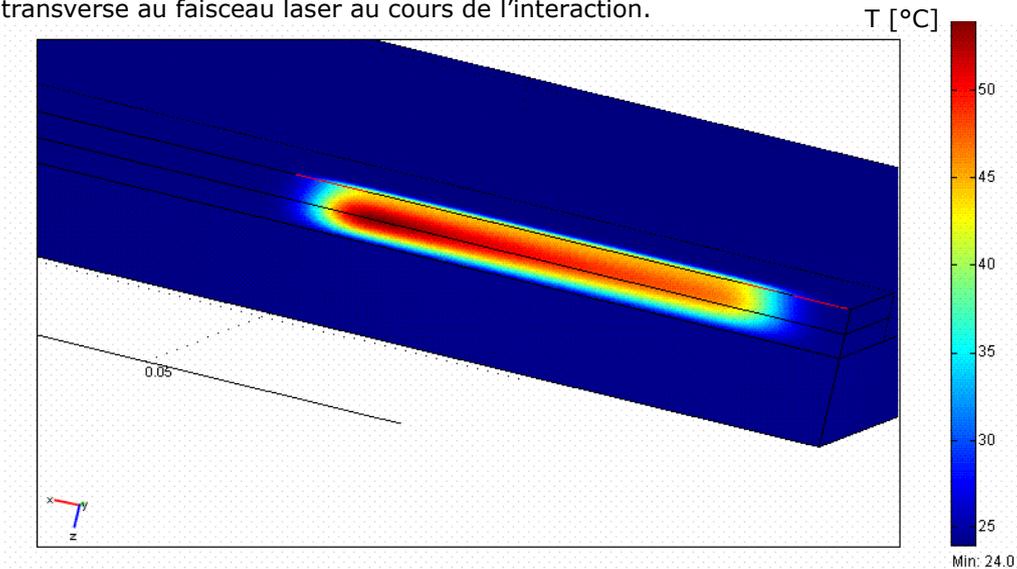
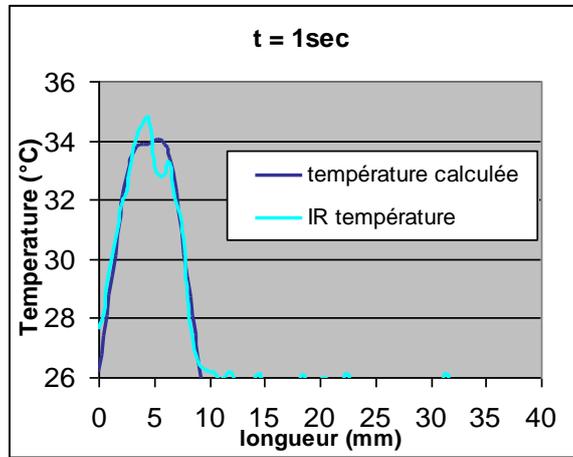


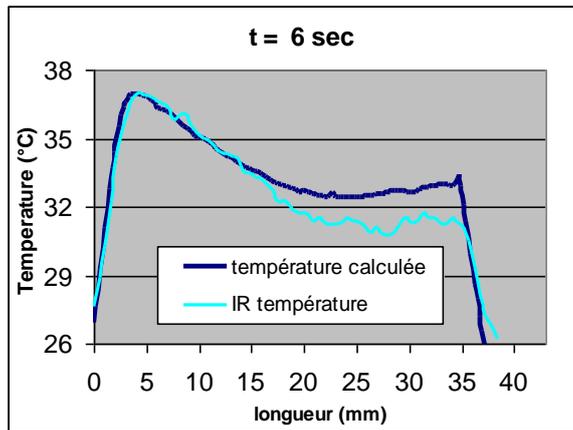
Figure 3.21: Profil transversal de température (à l'aplomb du faisceau laser) en cours d'assemblage

Les profils de température calculés et mesurés en différents instants ont pu ainsi être comparés. Ces profils sont représentés sur les figures 3.22, a, b, c :

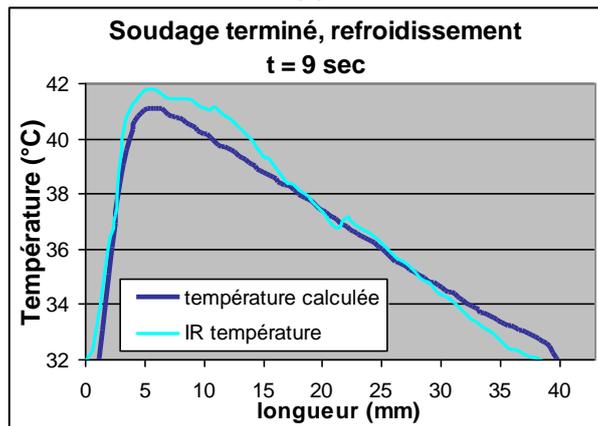
Il apparaît que la concordance valeurs mesurées - valeurs calculées est tout à fait satisfaisante.



(a)



(b)



(c)

Figure 3.22 : Température mesurée et calculée sur le passage du faisceau laser

Une analyse de la zone affectée thermiquement et des propriétés mécaniques de l'assemblage a été réalisée dans le cadre d'une étude postdoctorale [Speka 06]. Les observations microscopiques ont montré une bonne estimation de la zone affectée thermiquement (figure 3.23 ). L'évolution de la résistance à la rupture de l'assemblage en fonction de l'énergie linéaire est donnée dans la figure 3.24.

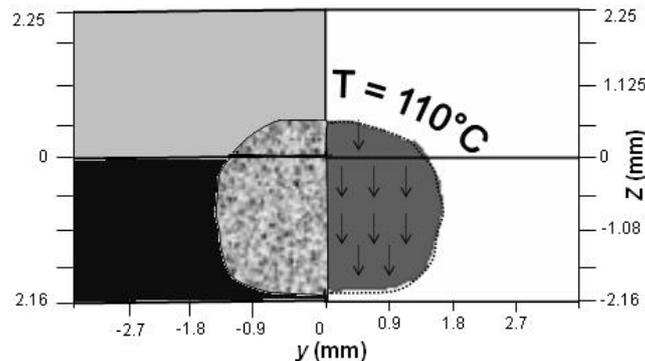


Figure 3.23 : Zone affectée thermiquement observée expérimentalement (à gauche) et numériquement (à droite) pour l'assemblage PMMA-ABS/PC [Speka 06]

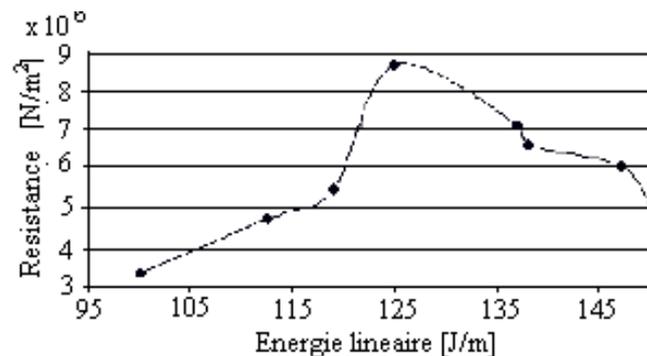


Figure 3.24 Résistance à la rupture du couple PMMA - ABS/PC en fonction de l'énergie linéaire [Speka 06]

### 3.5. Conclusion de l'étude des polymères absorbants

Le modèle thermique développé dans ce chapitre a permis de mieux comprendre le comportement d'un polymère absorbant à matrice amorphe irradié par laser et d'estimer l'évolution des champs des températures dans celui-ci.

L'analyse de l'influence des paramètres liés au matériau sur les profils thermiques a montré l'existence de comportements différents selon la valeur du coefficient d'absorption du matériau. Ainsi, dans une modélisation numérique du processus de soudage, les influences des facteurs principaux peuvent être importantes pour un type de matériau et non significatives pour un autre.

La modélisation décrite pourra donc être utilisée pour l'analyse des phénomènes intervenant dans la zone affectée thermiquement des différents composants assemblés.

## 4. APPLICATION A L'ETUDE D'UN ASSEMBLAGE D'UN POLYMERE DIFFUSANTS ET D'UN POLYMERE ABSORBANT

---

### 4.1. Couplage modèle optique – modèle thermique

Dans le cadre de la présente étude, on considère une forte absorption dans le deuxième composant et un transfert de chaleur par conduction entre les deux parties mises en contact.

Pour définir la source thermique dans la composante absorbante, on considère un faisceau incident de profil trapézoïdal. La densité de puissance peut être écrite comme :

$$p = \begin{cases} p_i & r < r_1 \\ p_i \cdot \left(1 - \frac{r - r_1}{r_2 - r_1}\right) & r_1 < r < r_2 \\ 0 & r > r_2 \end{cases} \quad (4.1)$$

où  $p_i$  est densité de puissance au centre du faisceau ( $r = 0$ ), que l'on désignera par la suite par densité de puissance sur l'axe et  $r_1$ ,  $r_2$  les rayons caractéristiques du faisceau incident.

La puissance totale est donnée par :

$$P = \int_0^{r_1} 2 \cdot \pi \cdot r \cdot p_i \cdot dr + \int_{r_1}^{r_2} 2 \cdot \pi \cdot r \cdot p_i \cdot \left(1 - \frac{r - r_1}{r_2 - r_1}\right) \cdot dr \quad (4.2)$$

Donc la densité de puissance sur l'axe devient :

$$p_i = \frac{3 \cdot P}{\pi \cdot (r_1^2 + r_2^2 + r_1 \cdot r_2)} \quad (4.3)$$

A partir du modèle de diffusion optique, on obtient deux intensités équivalentes, une intensité incidente  $I_i$  et une intensité transmise  $I_0$ , corrélées au nombre de photons "lancés" ou "reçue" et à leurs énergies respectives. La densité de puissance à la sortie du milieu diffusant s'écrit :

$$p_0 = p_i \cdot \frac{I_0}{I_i} \quad (4.4)$$

où  $p_0$  est la densité de puissance sur l'axe pour le faisceau sortant du milieu diffusant.

Pour un milieu faiblement diffusant, on retrouve le même profil trapézoïdal pour le faisceau transmis, donc la même formule (4.1) peut également être utilisée pour décrire sa densité de puissance.

Ainsi la distribution de puissance à l'interface devient :

$$p_{01}(r) = \begin{cases} \frac{3 \cdot P}{\pi \cdot (r_1^2 + r_2^2 + r_1 \cdot r_2)} \cdot \frac{I_0}{I_i} & r < r_1' \\ \frac{3 \cdot P}{\pi \cdot (r_1^2 + r_2^2 + r_1 \cdot r_2)} \cdot \frac{I_0}{I_i} \cdot \left(1 - \frac{r - r_1'}{r_2' - r_1'}\right) & r_1' < r < r_2' \\ 0 & r > r_2' \end{cases} \quad (4.5)$$

où  $r_1'$  et  $r_2'$  sont les rayons caractéristiques du faisceau transmis.

La source thermique est alors :

$$q_v(r, z) = \begin{cases} 0 & z < d_1 \\ p_{01}(r) \cdot \alpha \cdot e^{-\alpha \cdot (z - d_1)} & z > d_1 \end{cases} \quad (4.6)$$

Dans le cas d'un milieu plus diffusant, le profil du faisceau transmis devient gaussien donc la distribution de puissance à l'interface de deux composantes à souder est :

$$p_{01}(r) = p_0 \cdot e^{-\frac{2 \cdot r^2}{r_0^2}} = \frac{3 \cdot P}{\pi \cdot (r_1^2 + r_2^2 + r_1 \cdot r_2)} \cdot \frac{I_0}{I_i} \cdot e^{-\frac{2 \cdot r^2}{r_0^2}} \quad (4.7)$$

où  $r_0$  est le rayon correspondant à l'intensité sur axe divisée par  $e^2$  et  $r = \sqrt{x^2 + y^2}$ .

## 4.2. Validation du modèle par des mesures

Les mesures expérimentales ont été faites sur une disposition typique pour le soudage laser par transmission, en utilisant l'échantillon de PMMA chargé comme la composante transparente et l'alliage d'ABS-PC comme absorbant. L'échantillon de PMMA a une épaisseur de 3 millimètres et est chargé des particules de silice de  $5,5\mu\text{m}$  avec une concentration massique de 2,8 %. Les images infrarouges ont été enregistrées sur la face arrière du matériau absorbant (figure 4.1).

Comme il a été précisé dans le chapitre II, le montage optique placé sur le chemin du faisceau, ne permet pas l'obtention de puissances très élevées. Pour les mesures infrarouges, nous avons choisi une ouverture du diaphragme pour laquelle le faisceau incident a un profil trapézoïdal (figure 4.2-a) avec les rayons caractéristiques  $r_1=1.64$  mm et  $r_2=3.11$  mm. Les mesures de diffusion sur l'échantillon de PMMA montrent que le profil du faisceau transmis reste trapézoïdal avec une atténuation de 17,6% par rapport à l'intensité incidente. L'élargissement du faisceau n'est pas très accentué; les rapports entre les rayons caractéristiques (transmis/incident) ont des valeurs autour de 1 ( $r_1'/r_1=0,91$ ,  $r_2'/r_2=1,05$ ).

Les simulations réalisées pour ce cas (figure 4.2 b), donnent une atténuation 78,1% donc un écart entre les deux rapports  $I_t/I_i$  de 4,3% et des rapports entre les rayons caractéristiques de ( $r_1'/r_1=0,81$ ,  $r_2'/r_2=1,07$ ).

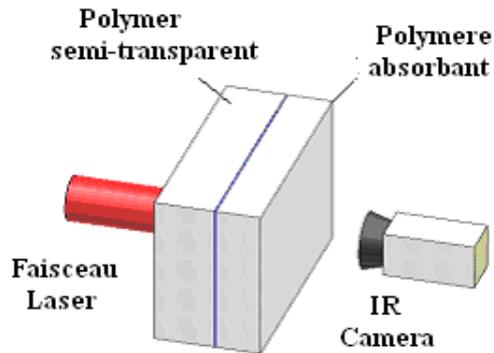
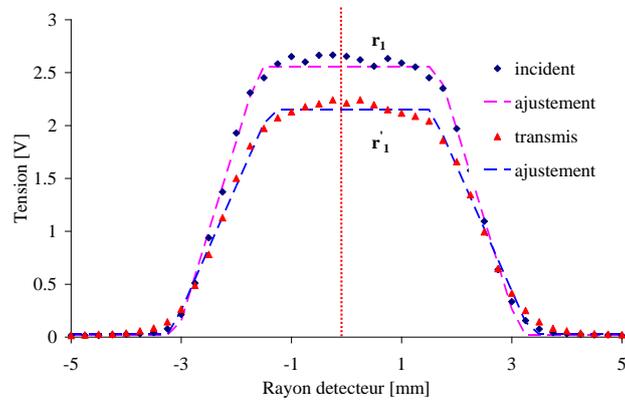
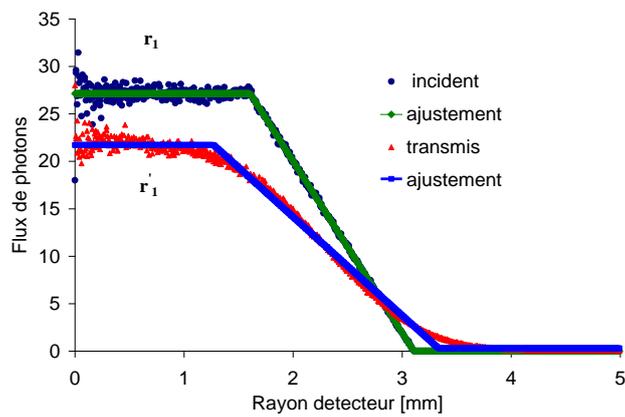


Figure 4.1 : Schéma de principe pour les mesures IR



a)



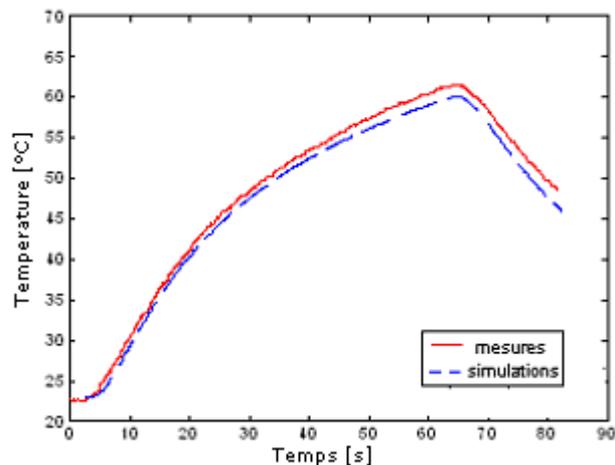
b)

Figure 4.2 Profils du faisceau laser, incident et transmis, mesurés (a) et simulés (b) et leurs ajustements

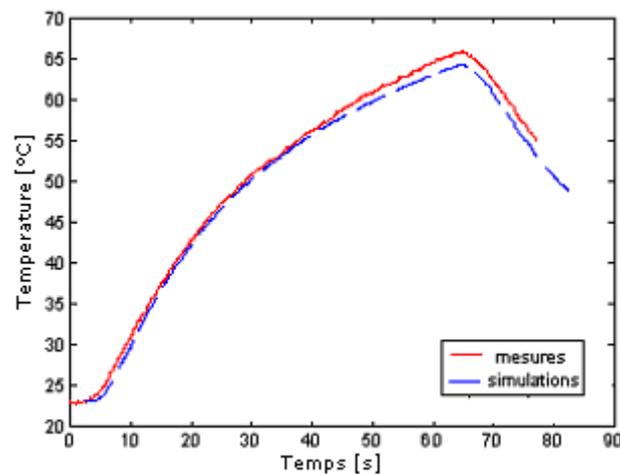
Pour les mesures infrarouges, les deux composants PMMA chargé et ABS-PC, sont placés dans un dispositif de serrage afin d'assurer un contact intime à

l'interface. Les deux courbes expérimentales, obtenues pour deux puissances laser, sont représentées dans la figure 4.3 a et b. Elles présentent les évolutions de la température dans le centre du faisceau laser sur la face arrière du matériau absorbant pendant l'échauffement et le refroidissement de deux échantillons.

Les simulations numériques, utilisant le code d'éléments finis, sont réalisées avec les données issues de la simulation de la diffusion en ce qui concerne l'atténuation du faisceau incident et ses rayons caractéristiques. L'écart obtenu entre les profils thermiques mesurés et simulés (figure 4.3 a et b) est explicable si on prend en compte l'écart de 4,3% entre les atténuations du faisceau mentionnées plus haut.



a) puissance laser 0,39 W



b) puissance laser 0,43 W

Figure 4.3 : Evolution des profils thermiques expérimentaux dans le centre du spot laser sur la face arrière de l'assemblage et leurs ajustements pour deux puissances laser

Les bonnes corrélations entre les profils thermiques simulés et mesurés indiquent une bonne évaluation des champs de températures dans les deux composants à souder avec le couplage réalisé entre le modèle optique et le modèle thermique.

### 4.3. Détermination d'un modèle empirique pour l'évolution de l'atténuation induite par diffusion dans le domaine exploré

Afin d'obtenir une image plus complète sur le comportement de la radiation laser à travers un milieu diffusant, le domaine de variation pour chaque facteur influençant la diffusion a été agrandi de la manière suivante :

- l'épaisseur de 1 à 5 mm;
- l'indice de réfraction de 1,7 à 2,1;
- la concentration massique de 0,1 à 0,5 %;
- le diamètre de particules de 0,01 et 100  $\mu\text{m}$ .

Les évolutions de l'intensité en fonction du diamètre des particules, simulées pour différentes combinaisons entre l'indice de réfraction, la concentration massique et l'épaisseur du milieu ont pu être ajustées avec une fonction empirique selon la forme (4.8) :

$$F = \begin{cases} \frac{A_1 - 100}{1 + \left[ \frac{\ln \frac{x}{x_C}}{x_{01}} \right]^{p_1}} + 100 & \text{pour } x \leq x_C \\ \frac{100 - A_1}{1 + \left[ \frac{\ln \frac{x}{x_C}}{x_{02}} \right]^{p_2}} + A_1 & \text{pour } x > x_C \end{cases} \quad (4.8)$$

où  $x_c$  est le diamètre critique pour lequel l'atténuation de la radiation est maximale.

Les coefficients  $A_1$ ,  $x_{01}$ ,  $p_1$ ,  $x_c$ ,  $x_{02}$ ,  $p_2$  obtenus pour chaque courbe sont liés aux facteurs d'influence par un modèle quadratique (4.9) :

$$C_i = b_0 + b_1x_1 + b_2x_2 + b_3x_3 + b_{12}x_1x_2 + b_{13}x_1x_3 + b_{23}x_2x_3 + b_{11}x_1^2 + b_{22}x_2^2 + b_{33}x_3^2 \quad (4.9)$$

où  $x_1$  est l'épaisseur,  $x_2$  la concentration massique de particules et  $x_3$  l'indice de réfraction.

Cette fonction empirique peut remplacer le code de calcul dans le domaine exploré de variation de facteurs influents. Elle représente un moyen efficace pour la prédiction rapide de l'évolution de l'intensité diffusée en fonction de caractéristiques de la particule et du milieu hôte.

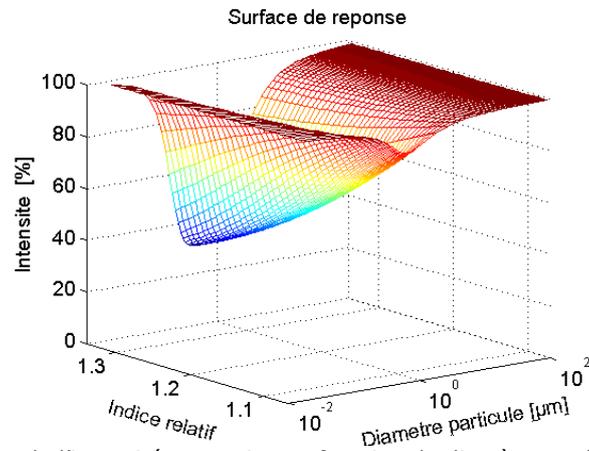


Figure 4.4: Evolution de l'intensité transmise en fonction du diamètre et de l'indice relatif pour une épaisseur du milieu hôte de 1,5mm et une concentration de 0,1% ( $\lambda = 808 \text{ nm}$ )

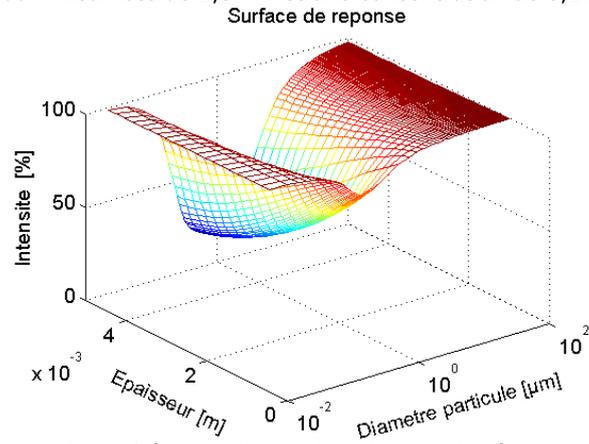


Figure 4.5: Evolution de l'intensité transmise en fonction du diamètre et de l'épaisseur pour un indice relatif de 1,14 et une concentration de 0,1% ( $\lambda = 808 \text{ nm}$ )

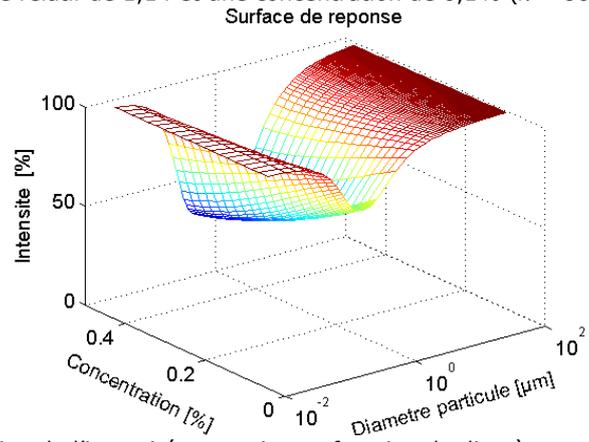


Figure 4.6: Evolution de l'intensité transmise en fonction du diamètre et de la concentration pour un indice relatif de 1,14 et une épaisseur de 1,5 mm ( $\lambda = 808 \text{ nm}$ )

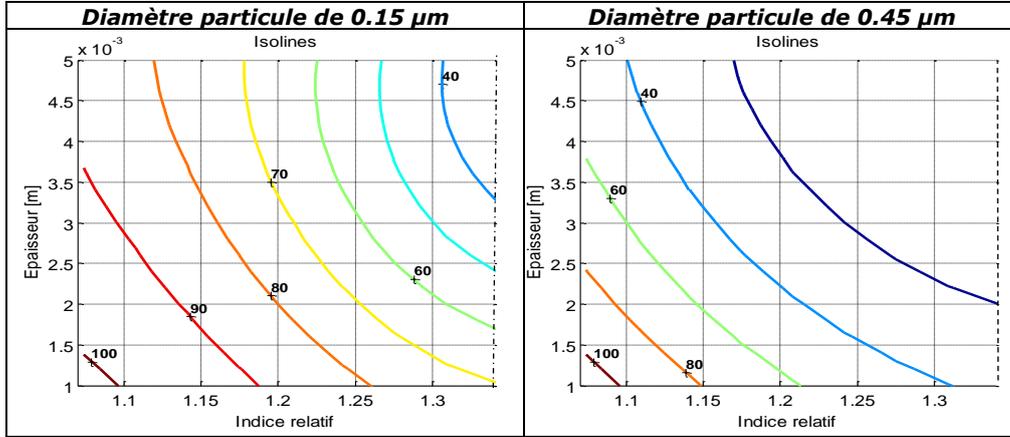


Figure 4.7: Evolution de l'intensité transmise en fonction de l'épaisseur et de l'indice relatif pour une concentration de 0,1%

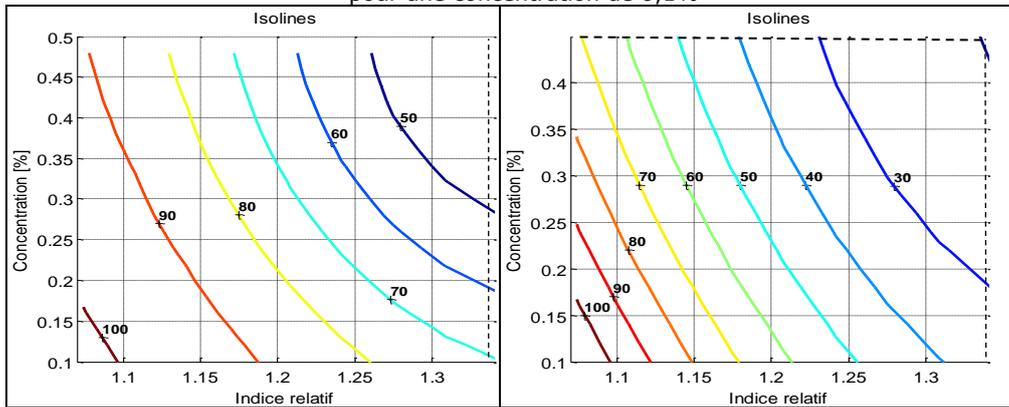


Figure 4.8: Evolution de l'intensité transmise en fonction de la concentration et de l'indice relatif pour une épaisseur de 1mm

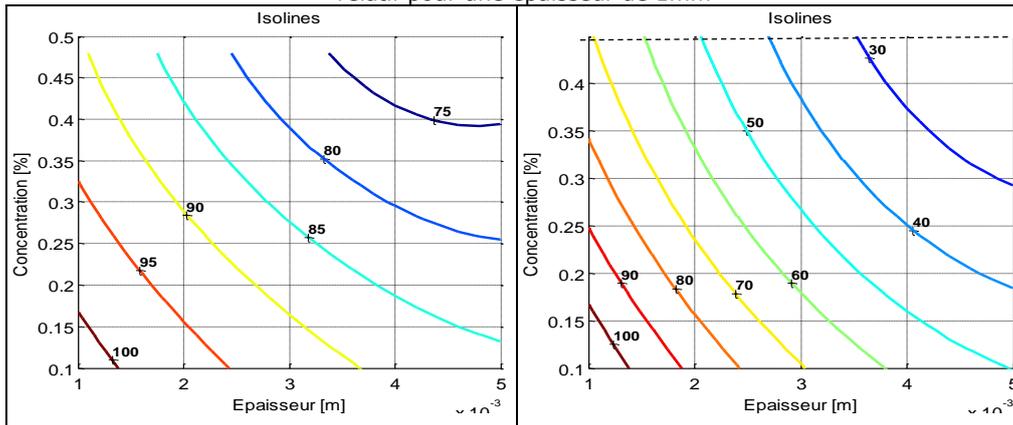


Figure 4.9: Evolution de l'intensité transmise en fonction de la concentration et de l'épaisseur pour un indice relatif de 1,07

Dans les figures 4.4, 4.5, 4.6, sont représentées des surfaces de réponse pour l'évolution de l'intensité pour différentes valeurs de facteurs d'influences obtenues avec la fonction empirique.

Pour une particule de diamètre donné, on peut estimer rapidement l'atténuation du faisceau incident obtenue pour différentes concentrations, épaisseurs du milieu et rapports entre les deux indices de réfraction  $n_p / n_h$  (figures 4.7, 4.8, 4.9).

On retrouve dans ces graphiques l'ordre d'importance des facteurs influents, établie dans le chapitre II. Ils confirment encore une fois que le diamètre de la particule joue le rôle le plus important pour le phénomène de diffusion. On remarque que l'atténuation du faisceau est plus prononcée pour les particules de diamètre voisin de  $\lambda/2$  par rapport aux particules de diamètre plus petit. Les interactions entre les facteurs sont aussi bien visibles ; par exemple, les effets de la concentration, de l'indice relatif et de l'épaisseur sont accentués pour les diamètres qui se rapprochent de  $\lambda/2$ .

A partir de cette fonction empirique, on peut déterminer très facilement les combinaisons entre les facteurs (diamètre - indice relatif - concentration - épaisseur) qui peuvent conduire aux atténuations fortes du faisceau avec des conséquences ne favorables pour le processus de soudage.

#### 4.4. La méthode inverse utilisée

Un aspect très important dans le soudage laser par transparence de polymères est l'énergie déposée à l'interface de deux matériaux, nécessaire pour assurer l'échauffement. Une bonne estimation de cette énergie et de sa distribution peut permettre l'optimisation des processus de soudage par des simulations numériques.

Les simulations numériques sont utiles pour une meilleure compréhension de comportements thermiques spécifiques des polymères. Par cette voie on pourra approcher et résoudre des situations technologiques complexes, sans recourir à des recherches expérimentales coûteuses.

La grande diversité de matériaux polymériques, au niveau de leurs caractéristiques structurales et de leurs compositions pose souvent des problèmes dans l'estimation de leur soudabilité.

Dans le cadre de notre étude, nous avons cherché à modéliser le comportement du faisceau laser dans les milieux diffusants pour lesquels l'absorption est négligeable. Le modèle optique développé permet l'estimation de l'atténuation du faisceau à la sortie du milieu ainsi que son profil, mais il nécessite de connaître les caractéristiques du milieu hôte et celles des diffuseurs.

Du point de vue pratique, les informations concernant la composition d'un polymère donné ne sont pas toujours accessibles. De plus, l'extrême diversité des additifs, plastifiants, charges, etc. susceptibles d'être ajoutés dans la matrice rend la situation encore plus compliquée.

A partir du modèle développé, nous avons essayé de trouver une solution à ce problème. Notre but est d'identifier un matériau avec un comportement similaire à celui du matériau concerné, nous permettant d'obtenir ainsi une estimation sur le comportement optique du faisceau.

La résolution du problème est fondée sur la fonction empirique décrite dans le paragraphe précédent. Cette fonction, qui décrit l'évolution de l'atténuation du

faisceau dans le domaine exploré dépend de quatre variables indépendantes : le diamètre de la particule, sa concentration, son indice de réfraction par rapport à l'indice de la matrice et l'épaisseur du milieu. Pour l'expérimentateur, les informations concernant les trois premières variables ne sont pas toujours facilement accessibles. Par contre, pour un matériau donné, on peut connaître l'évolution de l'intensité transmise en fonction de l'épaisseur de celui-ci.

Pour déterminer les trois variables inconnues, on a besoin de connaître l'intensité transmise pour trois épaisseurs, donc le problème se réduit à la détermination d'un système de trois équations avec trois inconnues.

La résolution de ce système est fondée sur la méthode du gradient [Sima 86] [Sun 06] ayant comme critère la minimisation de l'erreur quadratique moyenne entre les valeurs obtenues avec le code basé sur la théorie de Mie et celles prédites par la fonction empirique.

Dans ce but, un code de calcul a été écrit. Les données d'entrée sont les trois épaisseurs du matériau concerné et les intensités transmises correspondantes, considérées dans l'axe du faisceau, introduites en pourcentage par rapport à l'intensité incidente, considérée aussi dans l'axe du faisceau. Les données de sortie obtenues (le diamètre de la particule, l'indice relatif et la concentration massique de diffuseurs) vont définir un matériau équivalent avec un comportement similaire, c'est-à-dire un matériau qui produira les mêmes atténuations du faisceau incident pour les trois épaisseurs considérées.

Afin de valider cette méthode, des mesures expérimentales ont été réalisées sur des plaques d'ABS naturel sur trois épaisseurs. Les ABS sont des polymères amorphes biphasiques, constitués d'une phase continue (copolymères de styrène/acrylonitrile ou SAN) et d'une phase discontinue (nodules de polybutadiène greffé avec de copolymères de styrène/acrylonitrile). La présence des ces occlusions de caoutchouc (figure 4.10), avec une taille qui peut aller de 0,1 à 1 $\mu\text{m}$ , voire au-delà, le rend inhomogène du point de vue optique.

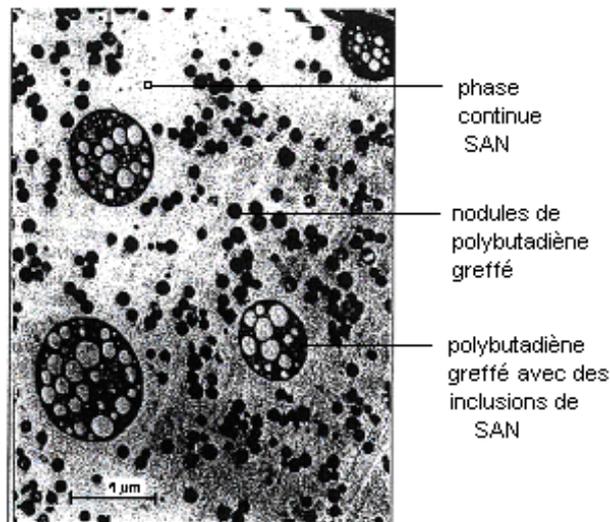


Figure 4.10: Vue d'un ABS au microscope électronique à transmission [Sapin 96]

Les mesures de diffusion ont été réalisées avec le montage décrit dans le chapitre II, pour un faisceau incident collimaté avec une distribution d'énergie

gaussienne. Les intensités transmises obtenues correspondant aux trois épaisseurs ont été introduites dans le code de calcul. On obtient un matériau équivalent avec les caractéristiques suivantes : le diamètre du diffuseur de  $0,46\mu\text{m}$ , un indice relatif de 1,42 et une concentration massique de 0,44%.

Afin de vérifier la similitude des deux comportements, nous avons refait les simulations numériques de diffusion pour le milieu indiqué et vérifié les valeurs pour les rayons à  $1/e^2$  de deux faisceaux transmis (mesuré et simulé) pour chaque épaisseur.

Les résultats obtenus sont donnés dans le tableau IV.1 et indiquent une bonne corrélation entre les données expérimentales et numériques. Finalement, même si les deux matériaux sont différents, en les traversant, le faisceau laser a un comportement similaire du point de vue de l'atténuation atteinte et de son élargissement à la sortie du milieu.

Tableau IV.1 Résultats expérimentaux pour l'ABS et résultats numériques pour le matériau équivalent

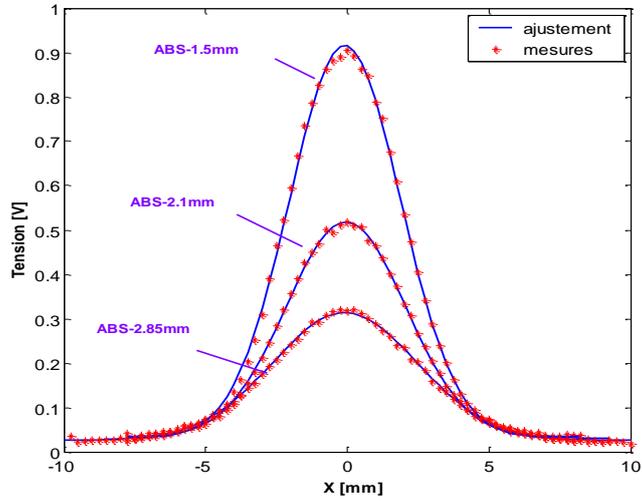
Épaisseur [mm]	Mesures			Simulations			Ecart	
	$I_t$ [%]	$1/e^2 r_t$ [mm]	$r_t / r_i$	$I_t$ [%]	$1/e^2 r_t$ [mm]	$r_t / r_i$	$I_t$ [%]	$1/e^2 r_t$ [mm]
1,5	10,83	2,73	1,58	10,46	2,69	1,57	0,4	0,04
2,1	5,88	3,17	1,83	6,16	3,05	1,78	0,3	0,12
2,86	3,00	3,91	2,26	3,19	3,81	2,22	0,2	0,10

Pour permettre de réaliser les mesures de températures de surface, nous avons mis en oeuvre un faisceau incident plus large, avec une distribution trapézoïdale de l'énergie et nous avons refait les mesures de diffusion pour chaque épaisseur. Les profils du faisceau transmis sont représentés dans la figure 4.11-a et révèlent le caractère diffusant du matériau : tout devient gaussien à la sortie du milieu.

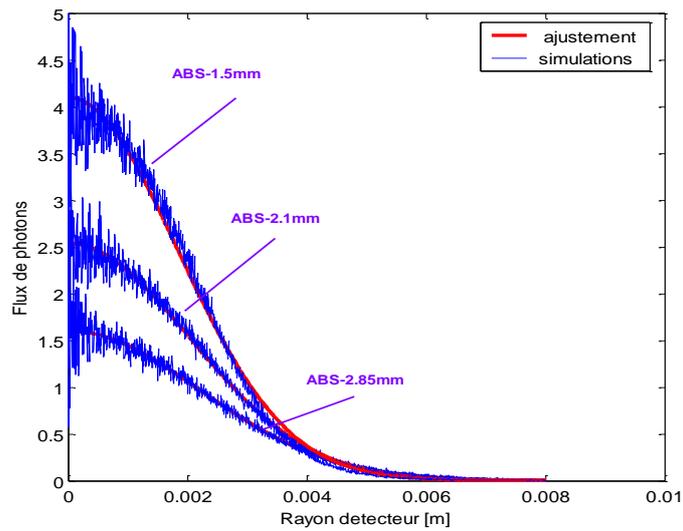
Les simulations numériques de diffusion pour le matériau équivalent sont représentées dans la figure 4.11-b. Pour les deux cas, les profils du faisceau transmis sont ajustés avec une fonction gaussienne. Les critères de comparaisons sont les intensités transmises dans le centre du faisceau et les rayons où on trouve  $1/e^2$  de la valeur sur l'axe.

Dans le tableau IV.2 sont donnés conjointement les résultats expérimentaux et ceux issus des simulations de diffusion pour chaque épaisseur du matériau :

Les valeurs pour les écarts absolus obtenus entre les deux types des données sont très petites dans le cas des rayons et ne dépassent pas 6% dans le cas du rapport des intensités (transmis/incident).



a) mesures



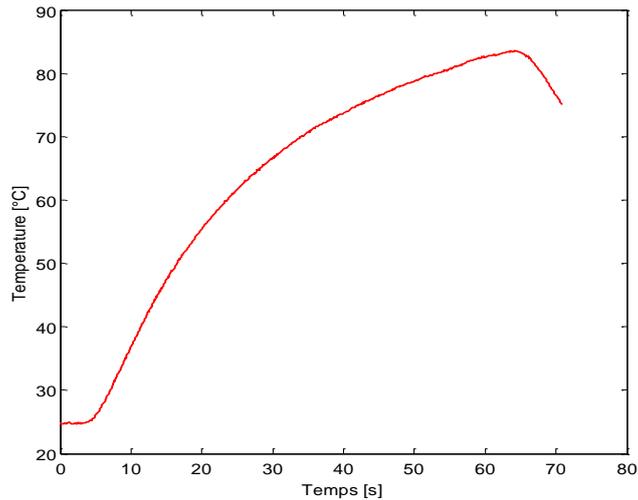
b) simulations

Figure 4.11: Profils des faisceaux transmis mesurés expérimentalement sur l'ABS (a) et simulés pour le matériau équivalent et leurs ajustements gaussiens

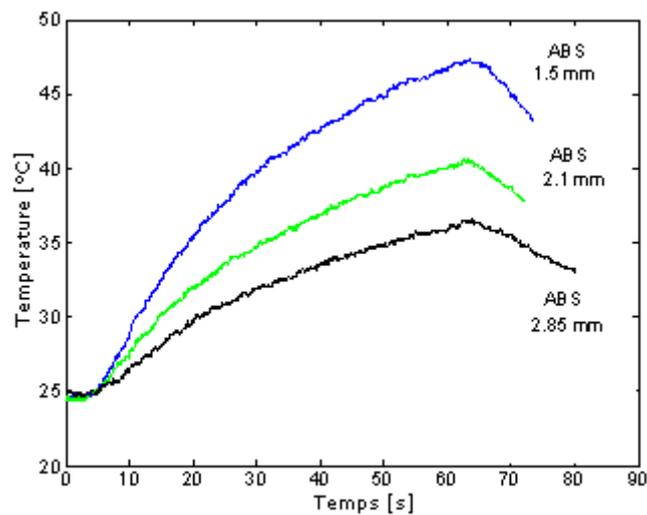
Tableau IV.2 Résultats expérimentaux pour l' ABS et résultats numériques pour le matériau équivalent dans le cas d'un faisceau incident avec une distribution trapézoïdal de l'énergie

Epaisseur [mm]	Mesures		Simulations		Ecart		Faisceau incident	
	$I_t$ [%]	$1/e^2 r_t$ [mm]	$I_t$ [%]	$1/e^2 r_t$ [mm]	$I_t$ [%]	$1/e^2 r_t$ [mm]	$r_1$ [mm]	$r_2$ [mm]
1,5	28,94	3,91	22,11	3,65	6,83	0,26	1,44	3,11
2,1	16,55	4,20	15,07	4,06	1,48	0,13		
2,86	10,08	5,10	8,70	4,42	1,38	0,68		

Les mesures de températures de surface sont réalisées sur des couples ABS naturel – ABS/PC. Les profils thermiques obtenus sur la face arrière du matériau absorbant pour chaque épaisseur de l'ABS naturel sont représentés dans la figure 4.12-b. Dans la figure 4.12-a est représenté le profil thermique enregistré pour l'ABS/PC seul.



a) ABS/PC seul



b) ABS naturel – ABS/PC

Figure 4.12: Profils thermiques mesurés expérimentalement sur la face arrière du ABS/PC seul (a) et les couples ABS naturel – ABS/PC (b) pour une puissance laser de 0,27 W

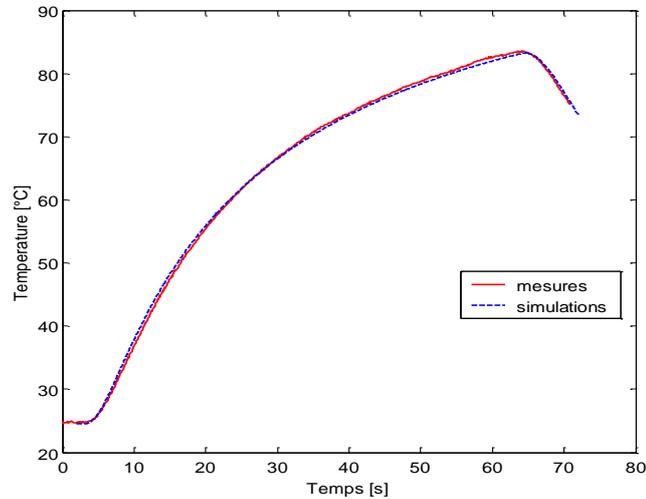


Figure 4.13: Ajustement du profil thermique simulé et mesuré expérimentalement sur la face arrière du ABS/PC seul

Dans le modèle thermique, on utilise les mêmes lois de variation que celles exposées dans le chapitre III, en ce qui concerne l'évolution avec la température des propriétés du matériau absorbant. Pour les couples de matériaux ABS naturel – ABS/PC, il est nécessaire de prendre aussi en compte une absorption dans le premier matériau, donc de définir deux sources thermiques : une source sur la face avant de l'ABS naturel en fonction des caractéristiques du faisceau incident et avec un coefficient d'absorption faible  $\alpha=263\text{m}^{-1}$  et une source à l'interface en fonction de caractéristiques du faisceau transmis.

Les simulations numériques ont été réalisées à la fois pour les caractéristiques du faisceau transmis mesuré et simulé (les données du tableau IV.2). Les profils thermiques obtenus pour chaque épaisseur de l'ABS sont représentés dans les figures 4.14, 4.15, 4.16.

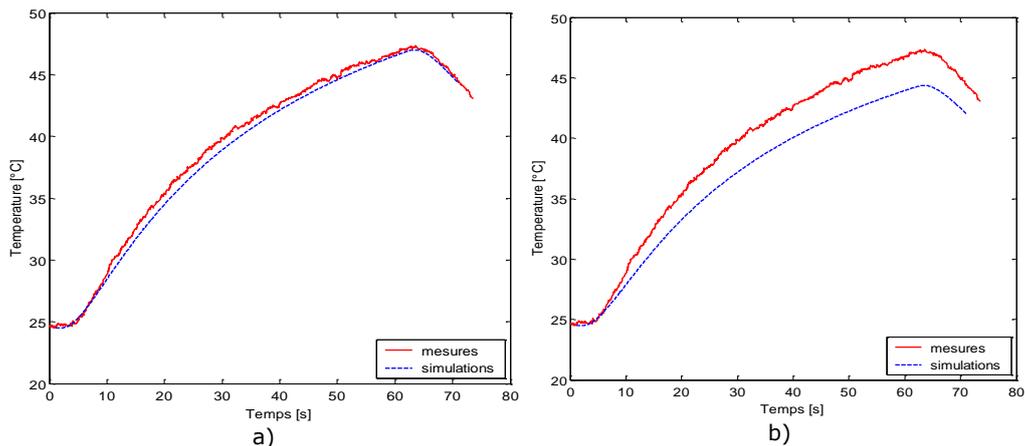


Figure 4.14: Profils thermiques mesurés expérimentalement et simulés pour les caractéristiques du faisceau transmis mesuré (a) et simulé (b) pour une épaisseur du ABS naturel de 1,5 mm

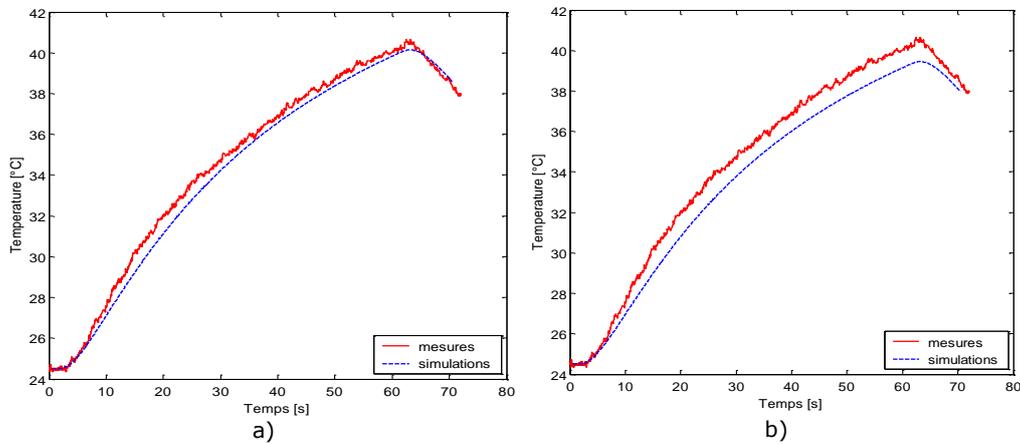


Figure 4.15 : Profils thermiques mesurés expérimentalement et simulés pour les caractéristiques du faisceau transmis mesuré (a) et simulé (b) pour une épaisseur du ABS naturel de 2,1 mm

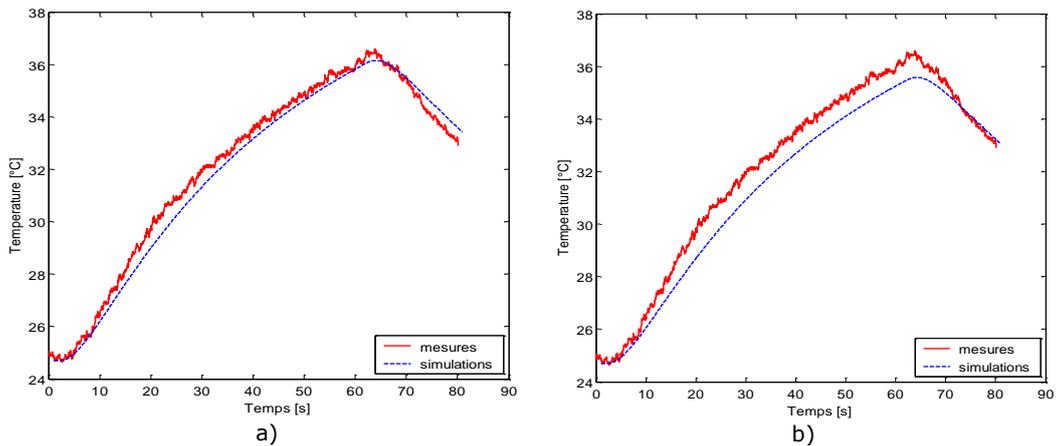


Figure 4.16 : Profils thermiques mesurés expérimentalement et simulés pour les caractéristiques du faisceau transmis mesuré (a) et simulé (b) pour une épaisseur du ABS naturel de 2,86 mm.

Les écarts obtenus entre les caractéristiques du faisceau transmis mesurées et simulées se retrouvent dans l'évolution des températures. A l'exception du cas de l'ABS de 1,5 mm où l'écart est plus prononcé, on obtient des différences négligeables.

## 4.5. Conclusions

Dans ce chapitre nous avons réalisé un couplage entre le modèle optique et le modèle thermique afin de caractériser le comportement d'un couple de matériaux pendant une irradiation laser. Le modèle optique décrit le comportement du faisceau laser à travers le matériau semi-transparent et permet d'estimer l'atténuation et la

distribution de l'énergie de celui-ci à sa sortie. Le profil du faisceau, obtenu à l'interface, devient notre source incidente, définie dans le modèle thermique, pour la partie absorbante. La modélisation thermique est basée sur une absorption de type Beer-Lambert et l'équation de diffusion thermique et permet d'estimer la température à l'interface des deux matériaux.

Les résultats numériques ont été validés par des mesures expérimentales dans le cas d'un couple de matériaux PMMA chargés et alliage ABS/PC.

Une fonction empirique a été trouvée pour remplacer le code du calcul dans le domaine exploré de variation des facteurs influençant la diffusion. Cette fonction permet une prédiction rapide de l'évolution de l'intensité diffusée en fonction des caractéristiques de la particule et du milieu hôte. De plus, il permet la détermination d'un matériau équivalent dans lequel le faisceau laser a un comportement similaire.

## 5. CONCLUSIONS GENERALES

---

Actuellement, afin de modéliser le procédé de soudage « par transparence » des polymères, il n'existe pas de modèle permettant de décrire la propagation du faisceau laser à travers les polymères semi-transparentes. Les approximations basées sur la loi de Beer-Lambert, appropriées pour les milieux dont l'absorption est prédominante, peuvent conduire à des résultats erronés quand le faisceau laser est atténué principalement par un phénomène de diffusion multiple.

Pour répondre à ce problème, l'essentiel de notre travail a porté sur la modélisation du comportement optique d'un faisceau laser à travers un milieu diffusant en absence d'absorption. Cette modélisation est basée sur la théorie de Mie, qui permet d'obtenir les paramètres de diffusion pour une seule particule diffusante, et sur une approche statistique, de type « marche au hasard » telle que la méthode de Monte Carlo pour réaliser le passage vers une collection de particules.

L'étude est limitée au cas des milieux diffusants contenant des particules sphériques aléatoirement dispersées pour lesquels l'approximation de la diffusion multiple indépendante est valide.

Des simulations systématiques ont été réalisées avec un code de calcul réunissant les deux théories, pour les systèmes diffusants les plus susceptibles d'être rencontrés dans le cas des polymères utilisés pour le soudage laser, pour ce qui est de la taille des diffuseurs, leur concentration et l'indice relatif de réfraction. Ainsi il a été possible d'obtenir des informations sur le comportement optique du faisceau laser en fonction des caractéristiques du milieu diffusant et d'établir l'importance de chaque facteur dans l'atténuation du rayonnement incident.

La limite de validité de la loi de Beer-Lambert, selon un critère global reste difficile à faire. Les critères utilisés jusqu'à présent, tels que la concentration des particules ou l'épaisseur optique n'établissent pas une frontière claire. Leur valeur « critique » dépend elle-même d'autres paramètres : le diamètre, l'indice relatif, l'épaisseur du milieu, ...

L'approche proposée dans le cadre de notre étude dépasse cette nécessité de connaître cette valeur « critique ». Elle permet d'obtenir la distribution de l'intensité laser tant dans le milieu considéré qu'à la sortie de celui-ci, si l'on connaît les caractéristiques du milieu hôte et celles des particules diffusantes. Cela constitue un aspect très important, du point de vue technologique : cela offre la possibilité de définir le profil de la source thermique à l'interface des deux matériaux à souder.

Malheureusement, dans la pratique, les informations concernant la composition d'un polymère donné ne sont pas toujours accessibles et, de toute façon, la diversité des additifs, plastifiants, charges, etc. ajoutés dans la matrice rendent la situation encore plus compliquée : les milieux s'éloignant des hypothèses posées.

Ainsi, une partie de notre travail a également consisté à déterminer un matériau équivalent dans lequel le faisceau laser puisse avoir un comportement similaire, du point de vue de son atténuation et son élargissement. Dans ce but, le code de calcul a été remplacé par une fonction empirique qui décrit l'évolution de

l'intensité diffusée en fonction des quatre caractéristiques : le diamètre des diffuseurs, leur concentration, l'indice relatif et l'épaisseur du milieu hôte.

A partir de l'intensité transmise, pour trois épaisseurs d'un matériau donné, il est possible de remonter par l'intermédiaire de cette fonction, aux trois premières variables et de déterminer ainsi un matériau équivalent pour lequel on connaît les caractéristiques du faisceau. De cette façon, il devient possible d'avoir une estimation sur le comportement optique de celui-ci sans connaître exactement les caractéristiques du milieu diffusant traversé.

Utilisant les données fournies par le modèle optique dans un modèle thermique basé sur une absorption de l'intensité selon la loi de Beer-Lambert et un transfert thermique décrit par l'équation de la diffusion de la chaleur, il est également possible d'estimer les champs de températures développés dans le volume des composants à souder.

Les mesures expérimentales ont visé à la fois les deux modèles. A l'aide d'un dispositif incorporant un convertisseur optique linéaire intensité lumineuse-tension électrique, les mesures de diffusion ont visé une validation du code de calcul sur des systèmes diffusants réels respectant les hypothèses posées, c'est-à-dire le cas d'un milieu hôte homogène et non absorbant, chargé avec des particules sphériques, non absorbantes et mono-dispersés et une validation de la méthode inverse pour déterminer le matériau équivalent.

La capacité du modèle thermique d'estimer les champs de températures développés a été vérifiée par thermographie infrarouge tant pour le matériau absorbant que pour un assemblage d'un couple de matériaux semi transparent - absorbant.

Les résultats obtenus ont montré un très bon accord entre théorie et expérience. Avec ces résultats, qui confirment les modélisations mises au point dans le cadre de ce travail, une étape importante a été franchie dans la modélisation du processus de soudage laser des polymères.

Malgré sa validité limitée aux polymères semi-transparents ayant une matrice amorphe, cette étude ouvre des perspectives sur la caractérisation du comportement optique du faisceau laser dans les polymères semi-cristallins ou les composites à matrice organique. Dans une prochaine étude il serait intéressant d'utiliser des modèles de diffusion qui prennent en compte une forme irrégulière des diffuseurs voire des structures plus complexes telles que des agrégats, ainsi que les aspects liés à l'absorptivité du milieu hôte ou des diffuseurs. Un autre aspect à considérer, qui peut avoir des influences significatives sur le comportement du matériau, est lié à la variation des indices avec la température, il serait donc intéressant d'envisager un couplage optique/thermique qui prend en compte ces aspects et permettrait de mieux comprendre et prévoir le comportement de matériaux réels.

Malgré son orientation prioritaire vers les aspects théoriques et physiques de l'interaction faisceau laser matériaux polymériques semi transparents, la recherche effectuée présente une importance significative pour le développement, la maîtrise et l'optimisation technologique des processus réels d'assemblage par soudage laser pour ce type des matériaux.

## REFERENCES

---

- [Abed 01]** S.Abed, P.Laurens, Diode laser welding of polymers: Microstructure of the welded zones for PP, 2001, Jacksonville, Proceeding of ICALEO
- [Ageorges'00]** C. Ageorges, Lin Ye, Meng Hou. Experimental investigation of the resistance welding for thermoplastic-matrix composites. Part I: heating element and heat transfer. *Composites Science and Technology*, 2000, vol. 60, p. 1027-1039
- [Ageorges'00]** C. Ageorges, Lin Ye, Meng Hou. Experimental investigation of the resistance welding for thermoplastic-matrix composites. Part II: optimum processing window and mechanical performance. *Composites Science and Technology*, 2000, vol. 60, p. 1191-1202
- [Ageorges'01]** C. Ageorges, et al. Advances in fusion bonding techniques for joining thermoplastic matrix composites: a review. *Composites Part A: applied science and manufacturing*, 2001, vol. 32, p.839-857
- [Ageorges'01]** C. Ageorges, L. Ye. Resistance welding of thermosetting composite/thermoplastic composite joints. *Composites Part A: applied science and manufacturing*, 2001, vol. 32, p. 1603-1612
- [Bates 04]** P.J. Bates, J.C. Mah, X.P.Zou, C.Y. Wang, Bobbye Baylis. Vibration welding air intake manifolds from reinforced nylon 66, nylon 6 and polypropylene. *Composites Part A: applied science and manufacturing*. 2004, vol. 35, p. 1107-1116
- [Becker 02]** F. Becker, et al. A Step Towards Understanding the Heating Phase of Laser Transmission Welding in Polymers, *Polymer Engineering and Science*, 2002, Vol. 42, no. 2, p. 365-374
- [Bohren 96]** C. F. Bohren and D. R. Huffman. *Absorption and Scattering of Light by Small Particles*. John Wiley & Sons, Inc. 1996, p. 530, ISBN 0-471-29340-7
- [Brown'00]** N. Brown, D. Kerr, M.R. Jackson, R.M. Parkins. Laser welding of thin polymer films to container substrates for aseptic packaging. *Optics & Laser Technology*, 2000, vol. 32, p 139-146
- [Brun'05]** G. Brun. Phénomènes de diffusion de la lumière (1re partie). *Photoniques*, 2005, no.18, p.
- [Carette]** L. Carette. Généralités sur les adjuvants. *Techniques de l'ingénieur, traite Plastiques*, A 3230, p.1-3
- [Caron 03]** J. Caron. Diffusion de la lumière dans les milieux stratifiés : prise en compte des interfaces rugueuses et des effets de polarisation. Thèse de doctorat. 2003.
- [Cartigny 86]** J.D.Cartigny, Y.Yamada, Radiative transfer with dependant scattering by particles: Part I- Theoretical investigation, *Journal of heat transfer, transactions of the ASME*, 1986, vol.108, pp 608-613
- [Chicea'05]** D. Chicea and I. Turcu, A random walk Monte Carlo approach to simulate multiple light scattering on biological suspension. *Romanian Reports in*

Physics, 2005, Vol. 57, no. 3, p. 418-425

**[Churchill'60]** S. W. Churchill and G. C. Clark. Light-scattering by very dense monodispersions of latex particles. Discuss. Farady Soc. 1960, vol. 30, p. 192-199

**[Cicală'05]**, E. Cicală. Metoda experimentelor factoriale. Editura Politehnica Timișoara, 2005, 320 p, ISBN : 973-625-263-9.

**[Cicală'99]**, E. Cicală. Metode de prelucrare statistică a datelor experimentale. Editura Politehnica Timișoara, 1999, 303 p, ISBN : 973-9389-30-8.

**[Dawson 00]** A.Dawson, M.Rides, Urquhart J. *Thermal conductivity of polymer melt and implications of uncertainties in data for process simulation..* National Physical Laboratory Report, 2000.

**[Dawson 06]** A.Dawson, M. Rides, The Effect of Pressure on the Thermal Conductivity of Polymer Melts, National Physical Laboratory Report, 2006, DEPC-MPR 041

**[Defosse 96]** R. Defosse. Colorants et pigments. Techniques de l'ingénieur, traite Plastiques, A 3233, p.1-9

**[Dick'98]** V. P. Dick, et al. Applicability limits of Beer's law for dispersion media with a high concentration of particles. 1998, Applied Optics, Vol. 37, no. 21, p. 4998-5004

**[Drolen'87]** B.L. Drolen, S. Kumar, and C.L. Tien. Experiments on dependent scattering of radiation, AIAA Paper 1485 American Institute of Aeronautics and Astronautics, Reston, Va. 1987. p. 1-8

**[Durant'03]** S. Durant. Propagation de la lumière en milieu aléatoire. Rôle de l'absorption, de la diffusion dépendante et du couplage surface-volume. Thèse de doctorat. 2004.

**[Elaloufi'02]** R. Elaloufi, R. Carminati, J.-J. Greffet. Time-dependent transport through scattering media: from radiative transfer to diffusion. Journal of Optics A: Pure and Applied Optics, 2002, vol. 4 p. 103-108

**[Eyglunet'97]** B. Eyglunet, Manuel de thermique –théorie et pratique, 2<sup>e</sup> édition revue et augmentée, Edition Hermes, Paris, 1997

**[Folatjar 91]** D. A. Folatjar et K. Horn. Polycarbonates. Techniques de l'ingénieur, traite Plastiques, A 3381, p.1-9

**[Garbea'90]** D. Garbea. Analiza cu elemente finite. Editura Technica-Bucuresti, 1990, p.247, ISBN 973-31-0211-3

**[Gouesbet 00]** G. Gouesbet, G Gréhan, Generalized Lorenz Mie theories, from past to future, Atom. Sprays, 2000, vol. 10(3-5), pp 277-334

**[Gouesbet 04]** G. Gouesbet, L. Mees, C. Roze, T. Girasole et.G. Grehan. Diagnostic par laser pulse femtoseconde en diffusion simple et multiple: application aux diagnostics particuliers. Congrès Français de Thermique SFT. 2004.

**[Gouesbet 99]** G. Gouesbet, G. Grehan : Generalized Lorenz-Mie theory for assemblies of spheres and aggregates, Journal of Optics, vol. 1, 1999, pp 706-712

**[Goupy 88]** J.Goupy, La méthode des plans d'expériences. Optimisation du choix des essais et de l'interprétation des résultats, Dunod, Paris, 1988, 303 p, ISBN : 2-04-018732-4.

- [Grimm 90]** R.Grimm, Fusion welding techniques for plastics, *Welding Journal*, 1990,, Vol.69, 23-8
- [Grimm 95]** R.Grimm, Welding processes for plastics, *Advanced material processing*, 1995, Vol. 147, pp 27-30
- [Grimm 98]** R.Grimm, Infrared welding of thermoplastics: colored pigments and carbon black levels on transmission on infrared radiation, 1998, *SPE/Antec'98 Conference Proceeding*, Vol.1, pp 1026-1029
- [Hollande 98]** S. Hollande, Jean-louis Laurent and Thierry Lebey. High-frequency welding of an industrial thermoplastic polyurethane elastomer -coated fabric. *Polymer*, 1998, vol. 39, p. 5343-5349
- [Hou 97]** M. Hou, L.Ye and Y.W. Mai, Manufacturing process and mechanical properties of thermoplastic composite components. *Journal of Materials Processing Technology*, 1997, vol. 63, p.334-338
- [Hou 99]** M. Hou, M. Yang, A. Beehag, Resistance welding of carbon fibre reinforced thermoplastic composite using alternative heating element, *Composite Structure*, 1999, vol 47, p. 667-672
- [Hulst 00]** H.C. Van de Hulst, *Light Scattering by small particles*, Dover Publications, 2000, 410pp.
- [Johnson 03]** J. A. Johnson et al. A multiple-scattering model analysis of zinc oxide pigment for spacecraft thermal control coatings. *Progress in Organic Coatings*, 2003, vol.47, p. 432-442
- [Joly]** G. Joly, *Soudage des thermoplastiques*, *Technique de l'ingénieur*, BM 7775, France, pp 1-14
- [Jones 00]** I A Jones, Use of infrared dyes for transmission laser welding of plastics, *SPE ANTEC 2000 Conference*, May 7-11, 2000, Orlando, Florida, USA, Proc.,Vol.1, pp.1166-1170;
- [Jones 02]** I A Jones, Laser welding for plastic components, *Assembly Automation*, vol. 22. no.2., 2002
- [Kagan 00]** V.A.Kagan, G. Phino, Selecting Nylon-Based Plastics for Laser Welding Technology, *SAE Technical Papers 2000-01-1168*, 2000, SP-1682
- [Kagan 01]** V.A.Kagan, A.Chambers, Forward to better understanding of optical characterization and development of colored polyamides for infrared welding, 2001, *Proceeding of the 58<sup>th</sup> Annual Conference and Exhibits*, pp 1269-1275.
- [Kagan 02]** V.A.Kagan, Innovation in laser welding of thermoplastics, *SAE Technical Papers 2002-01-2011*, 2002, SP-1766
- [Kastler 52]** A. Kastler. La diffusion de la lumière par les milieux troubles, Influence de la grosseur des particules. *Actualités scientifiques et industriel* 1178, Hermann & C<sup>IE</sup>, 1952.
- [Knipe 04]** J.C. Knipe et al.. Heat transfer in semi-transparent materials during laser interaction, *Journal of Materials Processing Technology*, 2004, Vol. 155-156, p.1805-1809
- [Korte 97]** J.Korte, *Laserschweißen von termoplasten*, Dissertation, 1997, University of Paderborn
- [Lamethe 04]** J-F Lamethe. Etude de l'adhésion de composites thermoplastiques semi-cristallins ; Application a la mise en oeuvre par soudure. Thèse de doctorat. 2004.

- [Lamethe 05]** J.-F. Lamethe et al.. Polymer dynamics applied to PEEK matrix composite welding. *Aerospace Science and Technology*, 2005, vol. 9, p.233-240
- [Lavigne 99]** C. Lavigne, A Roblin, et al., Comparison of iterative and Monte Carlo methods for calculation of the aureole about a point source in the Earth's atmosphere, *Applied. Optics*, 1999, vol. 38(30), pp 6237-6246.
- [Lin 01]** L. Lin, D.K.Y. Low, An investigation into melt flow dynamics during repetitive pulsed laser drilling of transparent media. *Optics & Laser Technology*, 2001, vol. 33, p. 515-522
- [Maheu 88]** B. Maheu, G. Gouesbet, A concise presentation of the generalized Lorenz-Mie theory for arbitrary location of a scatterer in an arbitrary incident profile, *Journal of Optics* , 1988, vol.19, pp 59-67
- [Matsuoka 95]** Shin-ichi Matsuoka. Ultrasonic welding and characteristics of glass-fiber reinforced plastic: comparison between the paper-making method and the impregnation method. *Journal of Materials Processing Technology*. 1995, vol. 55, p. 427-431
- [McNeil 01]** L.E. McNeil and R.H. French. Light scattering from red pigment particles: Multiple scattering in a strong absorbing system. *Journal of applied Physics*, Vol. 89, no. 1, p. 283-293
- [Mie 1908]** G. Mie, Beiträge zur Optik trüber Medien, speziell kolloidaler Metallösungen, *Ann. Phys*, 1908, vol. 25, 377.
- [Mishchenko 04]** M. I. Mishchenko, Larry D. Travis, Andrew A, Lacis. Scattering, Absorption, and Emission of Light by Small Particles. NASA Goddard Institute for Space Studies, 2004, p359, [www.giss.nasa.gov/~crmim/books.html](http://www.giss.nasa.gov/~crmim/books.html)
- [Naudin]** C-A Naudin et C. Clozza. Charge. *Techniques de l'ingénieur* 30, traite Plastiques, A 3220, p1-13
- [Nussenzveig 80]** H.M. Nussenzveig and W. J. Wiscombe. Efficiency Factors in Mie Scattering. *Physical Review Letters*, 1980, Vol 45, no. 18, p. 1490-1494
- [Perrin 81]** C. Perrin. Polyacryliques Poly(méthacrylate de méthyle). *Techniques de l'ingénieur, traite Plastiques*, A 3350, p.1-7
- [Portrait 01]**, J. Portrait. Soudage des polymères par laser à diode. *Laserap* 4, Marquay, 2001, Tome 3, p. 119-127.
- [Potente 99]** H. Potente, et al. Laser Transmission Welding of Thermoplastics : Analysis of Heating Phase. *Coloring Technology for Plastics*, 1999, p.332, ISBN 1-884207-78-2
- [Prabhakaran 06]** R. Prabhakaran and M. Kontopoulou. Contour Laser- Laser-Transmission Welding of Glass Reinforced Nylon 6. *Journal of Thermoplastic Composite Materials*, 2006, Vol. 19, p. 427-439
- [Prahl 89]** S. A. Prahl, M. Keijzer, S. L. Jacques, A. J. Welch. A Monte Carlo Model of Light Propagation in Tissue. *SPIE Institute Series*, 1998, vol. IS 5, p.102-111
- [Quirantes 01]** A. Quirantes, F. Arroyo and J. Quirantes-Ros. Multiple Light Scattering by Spherical Particle Systems and Its Dependence on Concentration: A T-Matrix Study. *Journal of Colloid and Interface Science*, 2001, vol. 240, p. 78-82
- [Reinhold 04]** M. Reinhold, The Use of Lasers with Technical Polymers, AILU Conference, Laser Processing of Polymer-Based Materials, February 2004
- [Roman 05]** J. C. Ramella-Roman, S. A. Prahl, S. L. Jacques. Three Monte Carlo

programs of polarized light transport into scattering media: part I. *Optics Express*, 2005, vol. 13, p. 4420-4433

**[Russek 01]** U.A.Russek, Laser welding of polymers, *Joining innovations for micro and macro technologies*, 2001, Jacksonville, Proceeding of ICALEO - Applications of laser and electro-optics.

**[Schwartz 89]** H.D. Schwartz, Focused infrared melt fusion: another option for welding thermoplastics, *SME Technical Paper*, 1989, EM89, pp 1-16

**[Schwartz 94]** M.M Schwartz, *Joining of composite materials*, ASM Int, 1994, vol.35

**[Silverman 89]** E.M. Silverman, *Joining methods for thermoplastics*, SAMPE Journal, 1989, vol.25, pp 34-38

**[Sima 86]** V.Sima, A.Varga, *Practica optimizarii asistate de calculator*, Editura Tehnica, 1986, Bucuresti

**[Simonot'02]** Lionel Simonot. Etude expérimentale et modélisation de la diffusion de la lumière dans une couche de peinture colorée et translucide. Thèse de doctorat. 2002.

**[Speka'06]** M. Speka, The control infra-red thermography of the welding of polymers by the laser, *Post Doctoral Thesis*, 2006

**[Stavrov 05]** D. Stavrov, and H.E.N. Bersee. Resistance welding of thermoplastic composites-an overview. *Composites Part A: applied science and manufacturing*, 2005, vol. 36, p. 39-54

**[Stokes 98]** V. K. Stokes. Experiments on the hot-tool welding of three dissimilar thermoplastics. *Polymer*, 1998, vol. 39, no. 12, p. 2469-2477

**[Sun 86]** W. Sun, Y. Yuan, *Optimization Theory and Methods, Nonlinear programming*, 2006, vol.1, 687 p., ISBN-13: 978-0-387-24975-9

**[Vasiliiu 86]** I. Vasiliiu, *Polimeri. Structura si proprietati*, Editura Stiintifica, Bucuresti, 1986, Vol.2,

**[Verrier 92]** P. Verrier. *Plastifiants. Techniques de l'ingénieur, traite Plastiques*, A 3231, p.1-12

**[Wang 06]** X. Wang et al. FEM Investigation of the Temperature Field of Energy Director During Ultraosnic Welding of PEEK Composites. *Journal of Thermoplastics Composite Materails*, 2006, Vol. 19, p. 593-607

**[Warwick 06]** M. Warwick, *Application studies using through-transmission laser welding*, *Joining Plastics 2006*, London, National Physical Laboratory (NPL), 25-26 April 2006

**[West 94]** R. West, D. Gibbs, L. Tsang, and A.K. Fund. Comparison of optical scattering experiments and the quasy-crystalline approximation for dense media. *Journal of Optics A*, 1994, vol.11, p. 1854-1858

**[Wiscombe 80]** W.J. Wiscombe. Improved Mie scattering algorithms. *Applied Optics*, 1980, Vol. 19, no. 9, p. 1505-1509

**[Xu 04]** Min Xu. Electric filed Monte Carlo simulation of polarized light propagation in turbid media. *Optics express*, 2004, vol. 12, no. 26, p. 6530-6539

**[Yarlagadda 98]** P.K.D.V Yarlagadda, T.Chai, An investigation into welding of engineering thermoplastics using focused microwave energy. *Journal of Materials Processing Technology*, 1998, vol. 74, p. 199-212

**[Yousefpour 04]** A. Yousefpour et al, Fusion Bonding/Welding of Thermoplastic Composites. *Journal of Thermoplastic Composite Materials*, 2004, Vol. 17, p. 303-341

**[Zhang 03]** Zhang X, Fujii M. Measurements of the Thermal Conductivity and Thermal Diffusivity of Polymers. *Polymer Engineering and Science*, 2003. **43** (11). P.1755

## PUBLICATIONS

---

### Articles publiés dans la thématique de la thèse

**Mariana Ilie**, Jean-Christophe Kneip, Simone Mattei, Alexandru Nichici, *Effects of laser beam scattering on through- transmission welding of polymers*, 24<sup>th</sup> International Congress on Applications of Lasers and Electrono-Optics, ICALEO 2005, Laser Institute of America, LIA Pub # 802, **2005**, Miami - Florida, S. U. A., ISBN 0-912035-82-X, Vol.98 p. 388-393 (CD-ROM)

**Ilie M.**, Kneip J.C., Mattei S., Nichici A., *Through- transmission welding of polymers: effects of particles on laser beam scattering*, 25<sup>th</sup> International Congress on Applications of Lasers and Electrono-Optics, ICALEO 2006, Laser Institute of America, LIA Pub#:599, **2006**, Scottsdale, AZ USA, ISBN #0-912035-85-4, Vol. 99, p 355-361 (CD-ROM)

**Ilie M.**, Kneip J.C., Mattei S., Nichici A., Roze C., Girarsole T., *Soudage laser par transparence de polymères- effets de la diffusion*, Congres Français de Thermique, SFT 2006, **2006**, Ile de Ré, France, p. 343-347 (CD-ROM)

**Ilie M.**, Speka M., Mattei S., Kneip J.C., Nichici A., *Soudage laser par transparence des thermoplastiques- effet des charges sur le procédé*, Matériaux 2006, **2006**, Dijon, France, ISBN 978-2-9528-1400-3, 7p (DVD)

**Mariana Ilie**, Jean-Christophe Kneip, Simone Mattei, Alexandru Nichici, Claude Roze, Thierry Girasole, *Laser beam scattering effects in non-absorbent inhomogenous polymers*, Optics and Lasers in Engineering, Elsevier Ltd. , S. U. A., vol.45, **2007**, ISSN 0143-8166, p. 405- 412

**Mariana Ilie**, Jean-Christophe Kneip, Simone Mattei, Alexandru Nichici, Claude Roze, Thierry Girasole, *Through transmission laser welding of polymers – temperature field modeling and infrared investigation*, Infrared Physics &Technology (2007), Elsevier Ltd., S. U. A., article in press available on line at [doi:10.1016/j.infrared.2007.02.003](https://doi.org/10.1016/j.infrared.2007.02.003)

## ANNEXES

---

### Annexe A

#### La méthode de plans d'expériences

##### - Les plans factoriels complets -

###### **Notions introductives**

En principe, dans l'étude d'un phénomène ou processus on s'intéresse à une ou au plusieurs grandeurs,  $Y_1, Y_2, \dots$ , appelées **fonctions de réponse**, qui dépend d'un grand nombre de variables,  $X_1, X_2, \dots, X_n$ , appelées **facteurs d'influence**. La liaison entre ces deux types des grandeurs sous une forme mathématique est une fonction  $f$  telle que  $Y = f(X_1, X_2, \dots, X_n)$  [Cicala05].



Les grandeurs établies comme **facteurs d'influence** doivent satisfaire les conditions suivantes [Cicala 05]. :

- être indépendants, donc elles peuvent être dirigés à n'importe quel niveau du domaine d'existence, indépendamment des niveaux des autres facteurs ;
- exercer une influence univoque sur l'objet de la recherche ;
- être contrôlables, donc elles peuvent être mesurées et réglées à un niveau établi ;
- être compatibles, ce qui permet la réalisation des toutes les combinaisons possibles des niveaux des facteurs.

**Les fonctions de réponse** doivent avoir une signification physique claire avec la possibilité d'être exprimées de façon quantitative.

**La méthode des plans d'expériences** permet, avec une diminution considérable du nombre d'essais, d'étudier le comportement d'un processus ou phénomène où interviennent de nombreux facteurs et d'établir l'importance des ceux-ci et des leurs interactions dans l'évolution du système considérée. Elle propose une **expérimentation factorielle**, c'est-à-dire que tous les facteurs varient simultanément. Le traitement des résultats se fait à l'aide de la régression linéaire multiple et l'analyse de variance.

La compréhension de la méthode des plans d'expériences s'appuie sur deux notions essentielles, celle de **l'espace expérimental** et celle de **modélisation mathématique** des grandeurs étudiées.

### **Espace expérimental**

La valeur donnée à un facteur pour réaliser un essai est appelée **niveau**. Lorsqu'on étudie l'influence d'un facteur, en général, on limite ses variations entre deux bornes : niveau bas et niveau haut. L'ensemble de toutes les valeurs que peut prendre le facteur entre le niveau bas et le niveau haut, s'appelle domaine de variation du facteur ou plus simplement le **domaine** du facteur (Figure A.1).

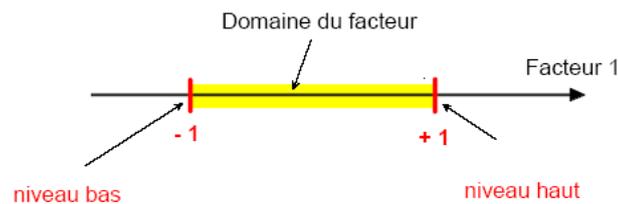


Figure A.1. Le domaine de variation d'un facteur [Goupy 88]

S'il on représente les autres facteurs sur des axes orientées, on obtient un espace appelé **l'espace expérimental** (Figure A.2)

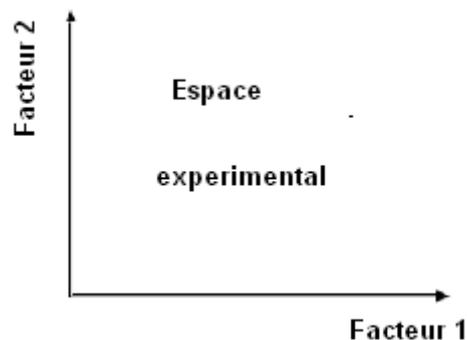


Figure A.2. L'espace expérimental pour deux facteurs [Goupy 88]

Dans *l'espace expérimental*, les niveaux des facteurs définissent *des points expérimentaux*. Par exemple, le niveau bas du facteur 1 et le niveau bas du facteur 2 sont les coordonnées d'un point de l'espace expérimental (Figure A.3).

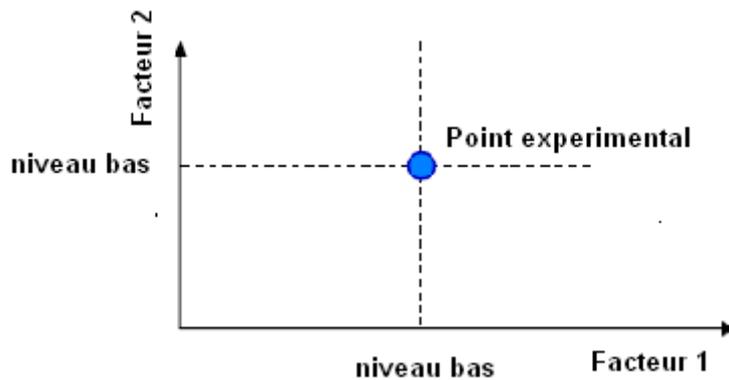


Figure A.3. Représentation d'un point expérimental [Goupy 88]

Un plan d'expériences est représenté par un ensemble de points expérimentaux. Le regroupement des domaines des facteurs définit le «**domaine d'étude**». Ce domaine d'étude est la zone de l'espace expérimental choisie par l'expérimentateur pour faire ses essais.

#### **Matrice associée au plan d'expérience**

Le nombre et de l'emplacement des points d'expériences est le problème fondamental des plans d'expériences. On cherche à obtenir la meilleure précision possible sur la surface de réponse tout en limitant le nombre d'expériences.

Dans le cas d'un plan factoriel à trois facteurs, l'emplacement optimal des points expérimentaux correspond aux sommets d'un cube (Figure A.4).

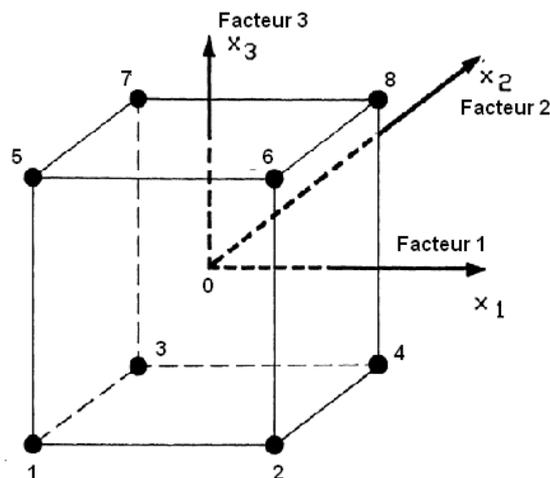


Figure A.4. Emplacement optimal des points expérimentaux [Cicala 05]

La matrice associée est donnée dans le tableau A.1 et contient toutes les combinaisons entre les niveaux des facteurs (codés par -1 pour le niveau bas et +1 pour le niveau haut) et les valeurs de la fonction de réponse pour ces combinaisons.

Tableau A.1 Matrice d'expérience

Nr.	Facteur 1 $x_1$	Facteur 2 $x_2$	Facteur 3 $x_3$	$x_1x_2$	$x_2x_3$	$x_1x_3$	Réponse $Y$
1	-1	-1	-1	+1	+1	+1	$y_1$
2	+1	-1	-1	-1	+1	-1	$y_2$
3	-1	+1	-1	-1	-1	+1	$y_3$
4	+1	+1	-1	+1	-1	-1	$y_4$
5	-1	-1	+1	+1	-1	-1	$y_5$
6	+1	-1	+1	-1	-1	+1	$y_6$
7	-1	+1	+1	-1	+1	-1	$y_7$
8	+1	+1	+1	+1	+1	+1	$y_8$

L'alternance de signes + et - pour la colonne d'un facteur  $x_j$  est faite d'après les puissances de  $2^{j-1}$ . Pour les colonnes des interactions entre les facteurs  $x_1x_2$ ,  $x_2x_3$ ,  $x_1x_3$ , on utilise la règle de signes en multipliant les colonnes correspondant aux facteurs visés.

### **Interprétation géométrique - Surface de réponse**

A chaque point du domaine d'étude correspond une réponse  $y_i$ . A l'ensemble de tous les points du domaine d'étude correspond un ensemble de réponses qui se localisent sur une surface appelée la surface de réponse (Figure A.5). La représentation géométrique du plan d'expériences et de la réponse nécessite un espace ayant une dimension de plus que l'espace expérimental.

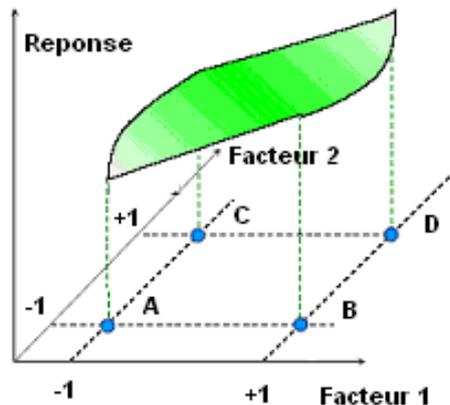


Figure A.5. Surface de réponse pour deux facteurs [Goupy 88]

### **Modélisation mathématique**

Pour la fonction mathématique qui relie la réponse aux facteurs, on prend un développement limité de la série de Taylor-Mac Laurin dont les dérivées sont

supposées constantes et le développement prend la forme d'un polynôme de degré plus ou moins élevé :

$$y = b_0 + \sum_{j=1}^k b_j x_j + \sum_{j=1}^k b_{jj} x_j^2 + \sum_{\substack{i,j=1 \\ i \neq j}}^k b_{ij} x_i x_j + b_{ji..k} x_i x_j \dots x_k \quad (\text{A.1})$$

où

- $y$  est la fonction de réponse ou la grandeur d'intérêt. Elle est mesurée au cours de l'expérimentation et elle est obtenue avec une précision donnée.
- $x_j$  représente le niveau attribué au facteur  $j$  par l'expérimentateur pour réaliser un essai. Cette valeur est parfaitement connue.
- $b_0, b_j, b_{ij}, b_{jj}$  sont les coefficients du modèle mathématique adopté a priori. Ils ne sont pas connus et doivent être calculés à partir des résultats des expériences.

L'intérêt de modéliser la réponse par un polynôme est de pouvoir calculer ensuite toutes les réponses du domaine d'étude sans être obligé de faire les expériences.

Entre ce modèle et le modèle réel qui régit le phénomène étudié, il y a deux écarts : un du a la manque d'ajustement et un du a la nature aléatoire de la réponse (erreur expérimentale).

Ces deux écarts, manque d'ajustement et erreur expérimentale, sont souvent réunis dans un seul écart, notée  $e$ . Le modèle utilisé par l'expérimentateur s'écrit alors :

$$y = b_0 + \sum_{j=1}^k b_j x_j + \sum_{j=1}^k b_{jj} x_j^2 + \sum_{\substack{i,j=1 \\ i \neq j}}^k b_{ij} x_i x_j + b_{ji..k} x_i x_j \dots x_k + e \quad (\text{A.2})$$

#### Systeme d'equations

Chaque point expérimental permet d'obtenir une valeur de la réponse. Cette réponse est modélisée par un polynôme dont les coefficients sont les inconnues qu'il faut déterminer.

Pour un plan d'expérience factoriel complet  $2^k$  ( $k$  facteurs a deux niveaux) avec  $N=2^k$  essais, on a un système de  $N$  équations à  $N$  inconnues.

Ce système s'écrit d'une manière simple en notation matricielle :

$$Y = XB \quad (\text{A.3})$$

ou

$$- Y = \begin{bmatrix} y_1 \\ y_2 \\ \dots \\ y_N \end{bmatrix} - \text{est le vecteur des réponses}$$

$$- X = \begin{bmatrix} x_{01} & x_{11} & \dots & x_{k1} \\ x_{02} & x_{12} & \dots & x_{k2} \\ \dots & \dots & \dots & \dots \\ x_{0N} & x_{1N} & \dots & x_{kN} \end{bmatrix} - \text{ est la matrice constituée par les valeurs que}$$

prennent les variables  $x_i$  et qui est une matrice Hadamard.

$$- B = \begin{bmatrix} b_0 \\ b_1 \\ \dots \\ b_k \end{bmatrix} - \text{ est le vecteur des coefficients, qui sont les inconnues.}$$

Pour expliciter les coefficients on multiplie à gauche par  $X^t$  - la transposée de  $X$  :

$$X^t Y = (X^t X) B \quad (\text{A.4})$$

Comme  $X$  est une matrice Hadamard, le produit  $X^t X = NI$  ou  $I$  est la matrice unité donc :

$$X^t Y = N B$$

L'estimation des coefficients est faite en utilisant la méthode de moindre carrée, la relation de calcul étant :

$$b_j = \frac{\sum_{i=1}^N x_{ij} \cdot y_i}{N}, \quad j=1, \dots, k \quad (\text{A.5})$$

et pour les coefficient des interactions :

$$b_{uj} = \frac{\sum_{i=1}^N x_{ij} x_{iu} \cdot y_i}{N}, \quad u, j=1, \dots, k \quad u \neq j \quad (\text{A.6})$$

#### Signification des coefficients

- $b_0$  est la valeur calculée de la réponse au centre du domaine d'étude
- $b_j$  - est l'effet du facteur  $j$ , c'est-à-dire la variation de la réponse quand le facteur passe du niveau moyen au niveau haut (Figure A.6)
- $b_{ij}$  - donne l'interaction d'ordre 2 entre les facteurs et traduit une variation de l'effet d'un facteur en fonction du niveau d'un autre facteur.

La détermination de l'influence d'un facteur est basée sur la connaissance de l'erreur expérimentale qui peut être évaluée par l'une des méthodes suivantes :

- par référence à la distribution des mesures autour d'une valeur centrale et de la connaissance de l'écart type de la réponse. On calcule ensuite l'erreur type sur l'effet.
- par mesure de quelques valeurs pour obtenir une estimation de l'écart type de la réponse. On calcule ensuite l'erreur type sur l'effet.

- par l'utilisation des interactions d'ordre élevé pour calculer une estimation de l'erreur type de l'effet.

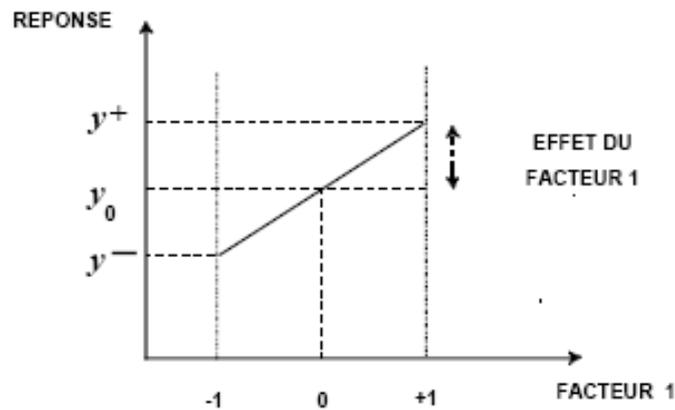


Figure A.6. L'effet d'un facteur [Goupy 88]

Par comparaison de l'effet à l'erreur type de l'effet, on estime la probabilité que l'effet soit influent. Si l'inégalité (A.7) est vraie, donc la valeur absolue du coefficient est plus grande que l'intervalle de confiance avec lequel il a été estimé, le facteur a une influence significative sur la réponse.

$$|b_j| \geq t_{\alpha, q(c-1)} \cdot s_{bj} \quad (\text{A.7})$$

ou :

- $t_{\alpha, q(c-1)}$  est la valeur du critère Student pour un seuil de signifiante  $\alpha$  choisi, avec  $q(c-1)$  nombre de répliqués,  $q$  nombre des points répliqués et  $c$  nombre de répliqués effectués dans le point centrale ;
- $s_{bj}$  est l'erreur type de l'effet.

## Annexe B

### Programme d'acquisition et traitement des données sous LabView

L'acquisition des données sur la diffusion du faisceau laser est réalisée par l'intermédiaire d'un programme développé sous LabView. L'interface utilisateur est présentée sur la figure B.1.

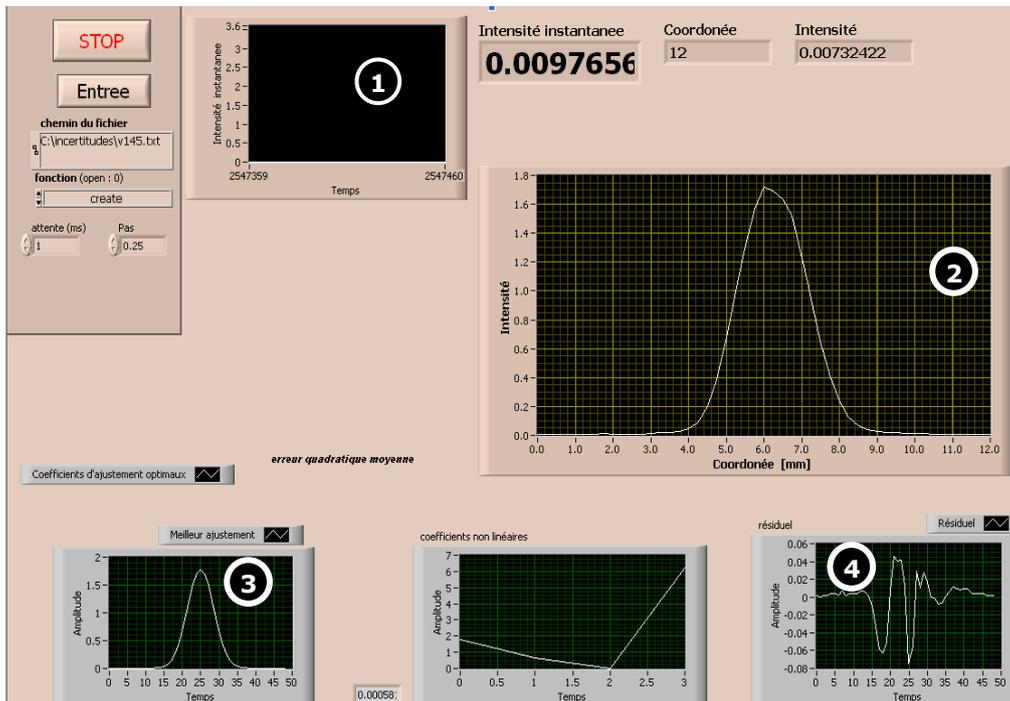


Figure B.1 L'interface utilisateur pour le programme d'acquisition des données

Pendant l'acquisition des données on a accès à :

- (1) un surveille continue du signal de la photodiode qui permet le réglage de la puissance laser pour éviter la saturation de celle-ci ;
- (2) le profil du faisceau laser sur une direction (x ou y) en fonction du déplacement de la table micrométrique choisie.  
Le traitement des données permet l'affichage :
- (3) de l'ajustement gaussien pour le profil du faisceau laser mesuré ;
- (4) du résidu entre les deux profils : mesuré et ajusté ;
- (5) de la valeur de l'intensité dans l'axe du faisceau et du rayon correspondant à une diminution avec  $1/e^2$  de cette valeur.

Les données sont sauvegardées dans des fichiers texte et peuvent être traitées sous différentes applications (MATLAB, Microsoft Excel, etc) :

## Annexe C

### Caractéristiques du capteur IR (photodiode)

Le capteur optique utilisé pour les mesures de diffusion est un convertisseur linéaire lumière - tension type TSL262R avec une aire active de 0,26mm<sup>2</sup> et un temps de réponse de 7μs (figure C.1 -a).

Les caractéristiques spectrales sont données dans la figure C.1.

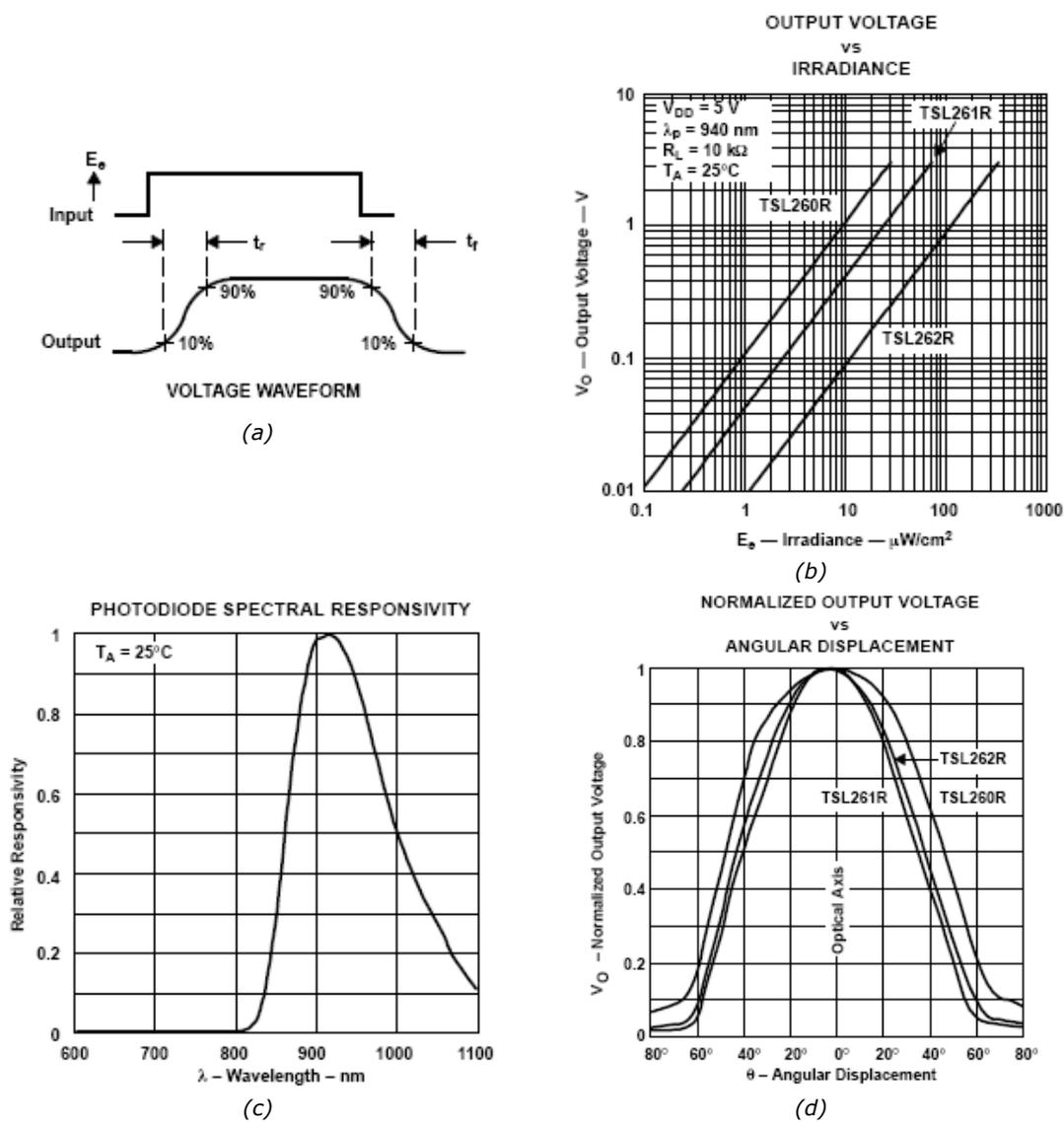


Figure C.1 Caractéristiques spectrales du senseur optique TSL262R

## Annexe D

### Présentation des codes de calcul réalisés

Le but de cette annexe est de présenter brièvement les codes de calcul réalisés afin de faciliter leur utilisation.

On distingue deux catégories : un ensemble de codes pour modéliser la diffusion du faisceau laser à travers une lame chargée avec des particules sphériques diffusantes et un code de calcul pour déterminer le matériau équivalent.

#### *Codes pour modéliser la diffusion*

Le code de calcul initial a été développé par le CORIA, Rouen (Complexe de Recherche Interprofessionnel en Aérothermochimie). Afin de se rapprocher des conditions expérimentales, nous avons dû adapter le code pour prendre en compte :

- les conditions aux interfaces :
  - réflexion
  - réfraction
- différentes enveloppes du faisceau laser
  - collimaté (variante prévue dans le code initial)
  - convergent
- différentes distributions de l'énergie du faisceau laser
  - uniforme (variante prévue dans le code initial)
  - gaussienne
  - trapézoïdale
- différentes distributions des particules
  - monodispersion (variante prévue dans le code initial)
  - polydispersion (distribution gaussienne de la taille des particules)

Actuellement, il y a quatre codes différents :

- a) Gaussien collimaté
- b) Gaussien convergent
- c) Trapézoïdal collimaté
- d) Polydispersion

Toutes les quatre variantes prennent en compte les conditions aux interfaces. Les premières deux permettent le changement entre une distribution uniforme et une distribution gaussienne de l'énergie du faisceau laser. Si la taille des particules suit une distribution gaussienne, la modélisation de la diffusion du faisceau est réalisée par l'intermédiaire du code Polydispersion.

L'organisation typique d'un code de calcul implique plusieurs fichiers :

- **entree.txt** - entrée de paramètres du problème
- **main.f90** :
  - définition de la distribution de l'énergie du faisceau laser incident
  - appels des procédures des calculs intermédiaires
  - calcul des grandeurs caractérisant une collection des particules
  - calcul de flux sortant
- **mie.f90** - calcul des sections efficaces et de la fonction de phase, calcul des coefficients du développement de la fonction de phase sur une base de polynômes de Legendre
- **mtfort.f90** - génère les nombres pseudo - aléatoires

- **dproba.f90** - calcul de la densité de probabilité à partir de la fonction de phase
- **teta.f90** - évaluation de l'angle de diffusion par interpolation linéaire
- **direction.f90** - calcul la nouvelle direction de propagation connaissant la direction incidente du photon et les angles de diffusion
- **g\_fitting.f90** - ajustement gaussien du profil laser incident et transmis
- **datesim.txt** - données de sortie (flux incident, flux transmis et flux rétro -diffusé dans l'axe du faisceau et rayon à  $1/e^2$ )

*Code de calcul pour déterminer un matériau équivalent*

Il s'agit d'un code développé en Fortran dont le principe de calcul est basé sur la méthode du gradient. Il est nécessaire d'introduire les trois épaisseurs du matériau pour lequel nous avons mesuré les intensités transmises et les valeurs des celles-ci par rapport à l'intensité incidente.

Le calcul est réalisé sur les deux branches de la fonction présentée dans le chapitre IV, à partir d'un diamètre très petit de la particule ( $0,0001 \mu\text{m}$ ) et puis à partir d'un diamètre grand ( $100\mu\text{m}$ ). On va choisir la variante qui donne  $R^2$  plus proche de 0.

Un exemple de calcul est donné dans la figure D.1

```

Introduisez les 3 epaisseurs du materiau en [m] et
les intensites transmises correspondantes en %
de l'intensite incidente

1 Epaisseur [m]=
0.001
1 Intensite =
53.05
2 Epaisseur [m]=
0.003
2 Intensite =
16.73
3 Epaisseur [m]=
0.005
3 Intensite =
4.28

Les valeurs pour la premiere branche

Indice= 1.718977   Diametre [Am]= 1.120499
Concentration [%]= 0.4083329   R2= 5.1866617E-02

Intensites transmises par le materiau equivalent

1 Intensite = 53.06189
2 Intensite = 16.67428
3 Intensite = 4.349460

Les valeurs pour la deuxieme branche

Indice= 1.871784   Diametre [Am]= 0.8369273
Concentration [%]= 0.1126464   R2= 7.4870341E-02

Intensites transmises par le materiau equivalent

1 Intensite = 53.05254
2 Intensite = 16.64935
3 Intensite = 4.381514
Press any key to continue

```

Figure D.1 Exemple de calcul pour déterminer un matériau équivalent