

cycle tel que : le temps de refroidissement, la température du moule avant l'injection et la température de contact. Les résultats obtenus à partir de ces modèles seront comparés à l'expérience à l'aide d'un moule instrumenté.

2. Matériaux et mesures

La pièce injectée est une plaque carrée de dimension 60mm x 60mm x 3mm. La cavité moulante est équipée d'un capteur de pression et de deux capteurs de flux positionnés l'un en face de l'autre. Ces derniers sont composés de trois thermocouples de type K de 25 μ m de diamètre soudés à différentes distances de l'interface polymère/moule. Pendant le cycle d'injection, les réponses des capteurs sont enregistrées sur une chaîne d'acquisition multivoies Yokogawa© DL750. Pour valider les modèles analytiques dédiés aux polymères amorphes et semi-cristallins, un Acrylonitrile Butadiene Styrene (ABS) et un Polypropylène (PP) ont été injectés dans les conditions rassemblées dans la Tableau 1. L'ABS est fourni par Kumho Petrochemical sous le nom de « ABS 710 » et le PP nommé ISPLEN « 070 G2M » provient de chez Repsol YPF chargé avec 4wt% de noir de carbone.

A partir des mesures des thermocouples composant les fluxmètres, la température de surface du moule et la densité de flux à l'interface avec le polymère sont obtenues à partir la méthode séquentielle de Beck [1]. Celles-ci sont données pour l'ABS sur les Fig. 1 et Fig. 8 et pour le PP sur les Fig. 2 et Fig. 9. Pour chaque polymère, la température de surface du moule augmente brutalement après l'injection jusqu'à atteindre la température de contact T_c , tandis que la densité de flux atteint aussi un maximum. Ensuite, la température de surface décroît quasi-linéairement pour atteindre la température avant injection T_{mi} . L'allure des pressions dans la cavité moulante est différente entre les polymères amorphes et semi-cristallins, s'expliquant par un retrait plus important induit par la cristallisation de ces derniers.

Paramètres d'injection	ABS	PP
Température d'injection T_{inj}	240°C	220°C
Temps d'injection	1s	1s
Température du circuit de refroidissement	70°C	40°C
Pression hydraulique de maintien P	$5 \cdot 10^6$ Pa	2 - 4 - $6 \cdot 10^6$ Pa
Temps de maintien	12s	14s
Temps total de refroidissement $t_{cooling}$	33.4s	34.5s

Tableau 1: Paramètres principaux d'injection

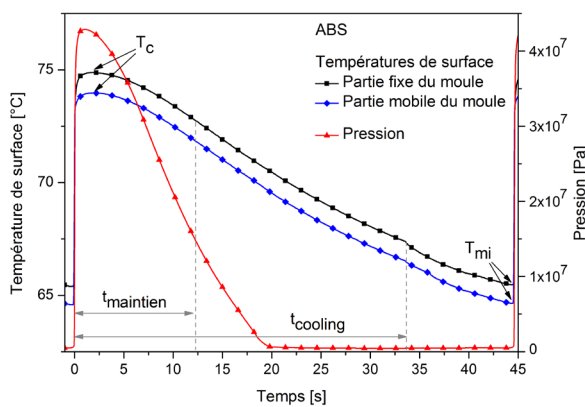


Figure 1 : Température de surface de moule et pressions expérimentales lors de la mise en forme de la pièce d'ABS

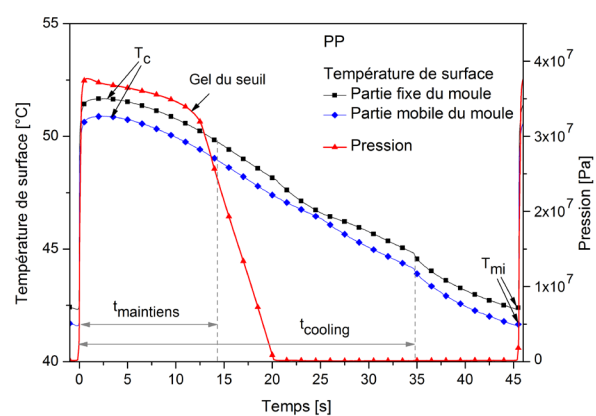


Figure 2 : Température de surface de moule et pressions expérimentales lors de la mise en forme de la pièce de PP

3. Modèle couplé

Les transferts de chaleur durant le refroidissement sont modélisés par l'équation de conduction unidimensionnelle selon l'épaisseur de la pièce (Eq. 1). A l'instant initial, la température est supposée uniforme à la température d'injection T_{inj} (Eq. 5). De part et d'autre de la pièce, les densités de flux sont imposées à partir des estimations des fluxmètres (Eq. 3-4). Dans le cas du polymère semi-cristallin, la cristallisation est prise en compte par la forme différentielle du modèle Nakamura [2] (Eq. 2) et un terme source est introduit dans l'équation de conduction. La résolution de ce système est réalisée par volumes finis avec des frontières mobiles décrite dans Pignon *et al.* [3]. Un schéma itératif est utilisé à chaque pas de temps lié aux non-linéarités associées à la dépendance des propriétés thermophysiques à la température et à la cristallinité relative ainsi qu'au couplage avec la cristallisation.

$$(\rho_p c_{p_p}) \frac{\partial T}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial x} \left(\lambda_p \frac{\partial T}{\partial x} \right) + \rho_p \Delta H \frac{\partial \alpha}{\partial t} \text{ for } 0 < x < e \quad (1)$$

$$\frac{\partial \alpha}{\partial t} = n K_{nak} (1 - \alpha) (-\ln(1 - \alpha))^{\frac{n-1}{n}} \quad (2)$$

$$-\lambda_p \frac{\partial T(0, t)}{\partial x} = \varphi_1 \text{ at } x = 0 \quad (3)$$

$$-\lambda_p \frac{\partial T(e, t)}{\partial x} = \varphi_2 \text{ at } x = e \quad (4)$$

$$T(x, t = 0) = T_{inj} \text{ for } 0 < x < e \quad (5)$$

Les champs de températures sont présentés sur la Fig. 3 pour le polymère amorphe et sur la Fig. 5 pour le semi-cristallin incluant les évolutions de la cristallisation relative, représentant l'avancement de la cristallisation entre l'état amorphe ($\alpha = 0$) et l'état semi-cristallin ($\alpha = 1$). Dans chacun des cas, des gradients thermiques importants sont présents dans la pièce et la température de surface du polymère n'atteint jamais la température de surface du moule (Fig.1 et Fig. 2). Cela s'explique par la présence d'une résistance thermique de contact RTC à cause du contact imparfait entre le polymère et le moule, et par la suite du décollement de la pièce. Les RTC augmentent avec le temps à cause des retraits (Fig.4 et Fig. 6). Dans le cas du PP, comme attendu, la RTC diminue avec la pression. Les résultats du modèle couplé seront considérés dans ce travail comme références pour la validation des modèles analytiques lorsque l'information nécessaire n'est pas disponible par l'expérience.

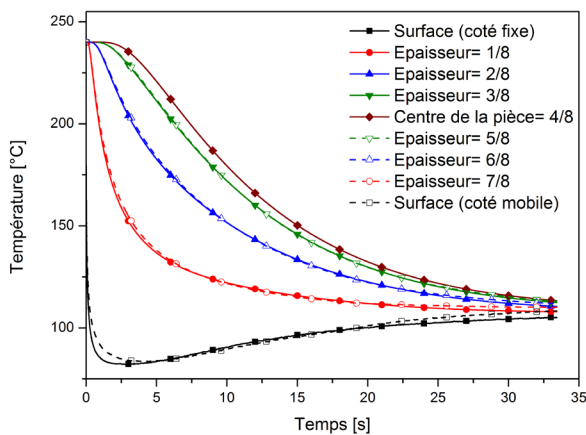


Figure 3 : Champs de température dans la pièce d'ABS calculé à partir du modèle couplé

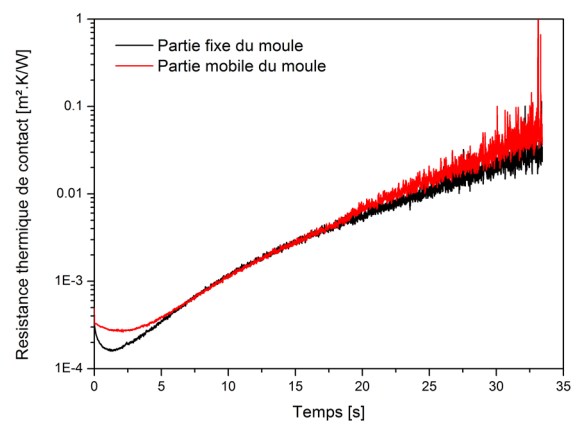


Figure 4 : Résistances thermiques de contact estimées à partir du modèle couplé pour la pièce d'ABS

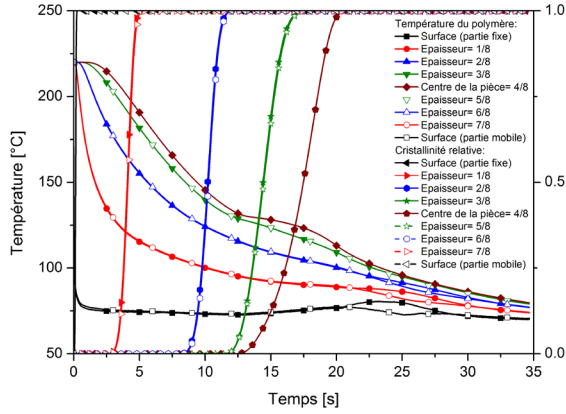


Figure 5 : Champs de température et de cristallinité relative dans la pièce PP obtenus avec le modèle couplé pour une pression de maintien de 4.10^6 Pa

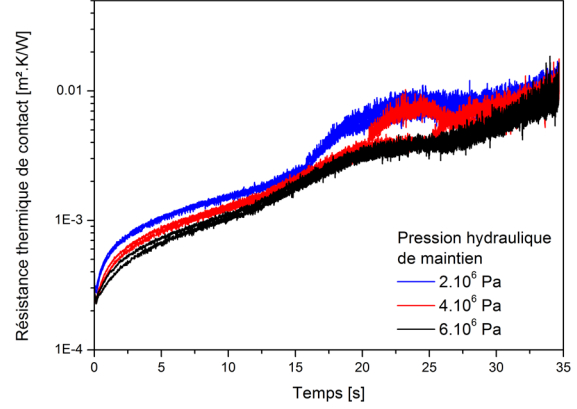


Figure 6 : Résistances thermiques de contact estimées à partir du modèle couplé fonction de la pression de maintien

4. Modèle analytique pour les polymères amorphes

Le temps de refroidissement d'une plaque de polymère amorphe d'épaisseur e peut être calculé à partir de l'équation unidimensionnelle de conduction. Les propriétés thermiques et des conditions aux limites sont considérées constantes pour permettre la résolution analytique. A l'instant initial, la température est supposée constante à la température d'injection T_{inj} . Le transfert est considéré symétrique au centre de la pièce. A la surface du polymère, le contact pourra être choisi parfait avec une température imposée à la température moyenne de surface du moule \bar{T}_s ou imparfait avec une résistance thermique de contact RTC . Dans chacun des cas, les solutions analytiques [4] proviennent du champ de température sous la forme de série dont seulement le premier terme est pris en compte. L'erreur liée à cette simplification est négligeable lorsque le nombre de Fourier est supérieur à 0,2. Deux critères d'éjection sont possibles : considérant la température au centre de la pièce comme température d'éjection T_{ej} (Eq.6 et Eq.8) ou la température moyenne de la pièce \bar{T}_{ej} (Eq. 7 et Eq.9). Le second critère, donnant de meilleurs résultats, a été choisi.

Pour un contact parfait :

- Critère 1 : $e < 3mm$

$$t_{cooling_1} = \frac{e^2}{a_p \pi^2} \ln \left(\frac{4 T_{inj} - \bar{T}_s}{\pi T_{ej} - \bar{T}_s} \right) \quad (6)$$

- Critère 2 : $e \geq 3mm$

$$t_{cooling_2} = \frac{e^2}{a_p \pi^2} \ln \left(\frac{8 T_{inj} - \bar{T}_s}{\pi^2 \bar{T}_{ej} - \bar{T}_s} \right) \quad (7)$$

Pour un contact imparfait :

- Critère 1 : $e < 3mm$

$$t_{cooling_{rtc1}} = \frac{e^2}{4a_p(u_1)^2} \ln \left[\frac{4 \sin(u_1)}{2u_1 + \sin(2u_1)} \frac{T_{inj} - \bar{T}_s}{T_{ej} - \bar{T}_s} \right] \quad (8)$$

- Critère 2 : $e \geq 3mm$

$$t_{cooling_{rtc2}} = \frac{e^2}{4a_p(u_1)^2} \ln \left[\frac{4 \sin(u_1)}{\alpha_1(2u_1 + \sin(2u_1))} \frac{T_{inj} - \bar{T}_s}{\bar{T}_{ej} - \bar{T}_s} \right] \quad (9)$$

Pour les équations Eq. 8 et Eq. 9, α_1 est la première racine de l'équation transcendante :

$$u \tan(u) = B_i = \frac{e}{RTC \ 2\lambda_p} \quad (10)$$

Dans le cas de la pièce moulée de 3mm, le modèle analytique selon le critère 2 considérant le contact imparfait, avec une *RTC* imposée comme la moyenne de celle estimée Fig.4, possède un meilleur accord avec l'expérience que celui avec un contact parfait (Tableau 2). Ce dernier a une erreur de 5%, ce qui valide l'utilisation de ce modèle. L'influence de la résistance thermique de contact est illustrée sur la Fig. 7 et ne peut être négligée. Cependant, si la *RTC* moyenne sur le cycle est inférieure à $1.5 \cdot 10^{-4} \text{ m}^2 \cdot \text{K/W}$, l'utilisation des modèles avec un contact parfait devient raisonnable pour déterminer le temps de refroidissement, avec une erreur sur la nature du contact inférieure à 5%.

Paramètre	Expérience	Analytique sans RTC	Analytique avec RTC
$t_{cooling}$ [s]	33.4	16.5	35.1
T_c [°C]	74.9		74.8
T_{mi} [°C]	65.6		65.5

Tableau 2: Comparaison des temps de refroidissement et de la variation de température de moule pour la pièce d'ABS pour les différents modèles

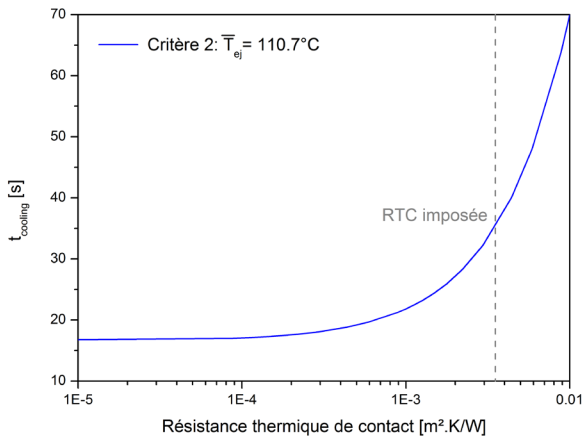


Figure 7 : Influence de la résistance thermique de contact sur le temps de refroidissement d'une plaque d'ABS

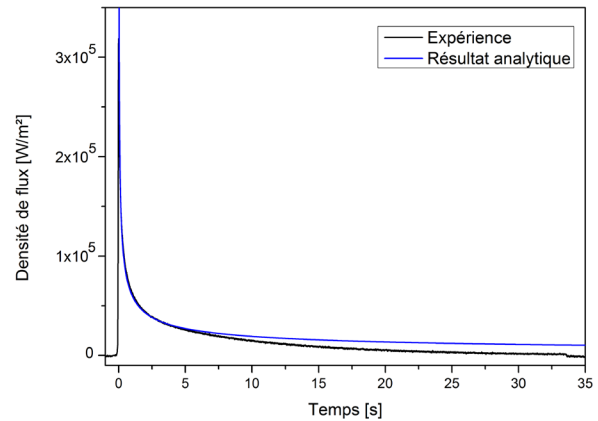


Figure 8 : Comparaison entre la densité de flux expérimentale et analytique pour la pièce d'ABS

La variation de la température de surface du moule peut être obtenue par la résolution des deux équations Eq. 11 et Eq. 12. La première équation fournit la température maximum du moule T_c à partir de l'hypothèse où la température après le remplissage évolue de façon similaire à celle issue du contact soudain de deux milieux semi-infinis. La seconde équation est basée sur la considération d'une évolution de température de surface du moule linéaire, comme observé sur la Fig. 1. Comme présenté dans le tableau 2, les résultats analytiques sont en très bon accord avec l'expérience, ce qui valide la méthode.

$$T_c = \frac{T_{inj}b_p + T_{mi}b_m}{b_p + b_m} \quad (11)$$

$$\frac{T_c - \bar{T}_s}{\frac{t_{cooling}}{2}} = \frac{T_c - T_{mi}}{t_{cycle}} \quad (12)$$

De plus, la densité de flux obtenue à partir des milieux semi-infinis (Eq. 13) est en bon accord avec l'expérience comme présenté sur la Fig. 8. Toutefois, comme attendu, une différence est observable lorsque l'hypothèse n'est plus valide. La densité de flux moyenne sur le cycle calculée (Eq.14) est de 13711 W/m² avec une erreur de 7.5%, ce qui est raisonnable pour cette estimation rapide.

$$\varphi_{msi}(t) = \frac{\lambda_p(T_{inj} - T_c)}{\sqrt{\pi a_p t}} \quad (13)$$

$$\bar{\varphi} = \frac{\rho_p c_{p_p} \frac{e}{2} (T_{inj} - T_{ej})}{t_{cooling}} \quad (14)$$

5. Modèle analytique pour les polymères semi-cristallins

Lors de la mise en forme de pièces semi-cristallines, la cristallisation et son exothermie ΔH doivent être prises en compte. Par soucis de simplification, la cristallisation est considérée comme un changement de phase ayant lieu à une température constante T_f . Cette hypothèse est valide pour un nombre de Deborah faible [5]. La solution du modèle de Stefan [6] donne l'évolution du front de cristallisation x_f d'un milieu semi-infini (Eq. 14), fonction de la solution ξ de l'équation transcendante Eq. 15.

$$x_f = 2\xi\sqrt{a_{pl}t} \quad (14)$$

$$Ste_s v \frac{e^{-\xi^2/v^2}}{\text{erf}\left(\frac{\xi}{v}\right)} - \frac{Ste_l e^{-\xi^2}}{\text{erfc}(\xi)} = \sqrt{\pi\xi} \quad (15)$$

$$\text{Avec: } v = \sqrt{\frac{a_{p_s}}{a_{p_l}}}; Ste_l = \frac{c p_{p_l} (T_{inj} - T_f)}{\Delta H}; Ste_s = \frac{c p_{p_s} (T_f - T_c)}{\Delta H}$$

A partir de cette solution, Sobotka *et al.* [7] proposent d'estimer le temps de solidification d'une plaque de dimension finie, avec une demi-épaisseur $e/2$ (Eq. 16). Une constante paramétrique c est introduite, définie comme le rapport entre le temps de solidification d'un matériau de dimension finie et la solidification de la même épaisseur pour un matériau semi-infini.

$$t_{solid} = \frac{1}{a_{pl}} \left(\frac{e}{2\xi c} \right)^2 \quad (16)$$

Ce modèle a été étendu pendant les travaux de thèse de Merlin [8] qui ont mis en évidence une relation entre les temps de solidification obtenus pour un nombre de Biot fini (RTC connue) et un nombre de Biot infini (contact parfait).

$$\frac{t_{solid}(B_i)}{t_{solid}(B_i = \infty)} = 1 + g(Ste_s, Ste_l, \nu) \cdot \frac{1}{B_i} \quad (17)$$

Dans le cas de l'injection du PP, le modèle considérant le contact parfait possède une erreur de 22% pour les trois pressions de maintien (Tableau 3). La prise en compte de la résistance de contact permet d'estimer le temps de solidification avec une erreur relative de 4% pour les deux plus fortes pressions de maintien, ce qui valide la méthode. Toutefois, pour la pression la plus faible, l'erreur relative est d'environ 20% à cause du décollement de la pièce pendant la cristallisation (observable Fig. 6). Ce phénomène est aussi une difficulté pour les modèles couplés, car dans ce cas les modèles de résistance thermique de contact ne sont plus utilisables et une lame d'air entre le polymère et le moule doit être considérée.

Pression de maintien	Modèle couplé	Modèle sans RTC	Modèle avec RTC
2.10 ⁶ Pa	22.6 s	18 s	27 s
4.10 ⁶ Pa	21 s	16.1 s	21.7 s
6.10 ⁶ Pa	18.7 s	14.5 s	17.9 s

Tableau 3: Comparaison des temps de solidification pour les différentes pressions de maintien du PP

La température de contact peut être obtenue à partir de l'hypothèse de milieux semi-infinis dont l'un d'eux est sujet à un changement de phase. Comme présenté dans le tableau 4, la solution analytique est en bon accord avec l'expérience. L'erreur diminue avec la pression, ce qui s'explique par une diminution de la résistance thermique de contact, non prise en compte dans l'Eq. 18.

$$T_c = \frac{b_{ps} T_f + b_m \operatorname{erf}\left(\frac{\xi}{\nu}\right) T_{mi}}{b_{ps} + b_m \operatorname{erf}\left(\frac{\xi}{\nu}\right)} \quad (18)$$

Après l'injection, la densité de flux estimée à partir des milieux semi-infinis (Eq. 19) est en bon accord pendant les premiers instants avec l'expérience, comme présenté Fig. 9. Ensuite, une différence apparaît entre celles-ci à cause de la fin de la validité de cette hypothèse. Il est aussi intéressant d'observer que la densité de flux expérimentale présente le décollement de la pièce à 21s, ce qui est en accord avec la résistance thermique de contact présentée Fig. 6. Finalement, la densité de flux moyenne sur le cycle, donnée Eq. 20, est en très bon accord avec l'expérience (tableau 4).

$$\varphi_{msi}(t) = \frac{b_{ps}(T_f - T_c)}{\sqrt{\pi t} \operatorname{erf}(\xi)} \quad (19)$$

$$\bar{\varphi} = \frac{m[cp_l(T_{inj} - T_f) + cp_s(T_f - T_{ej}) + \Delta h]}{S t_{cooling}} \quad (20)$$

Pression de maintiens	Température de contact [°C]		Densité de flux moyenne [W/m ²]	
	Expérimentale	Calculée	Expérimentale	Calculée
2.10 ⁶ Pa	50.7	52.2	15818	15838
4.10 ⁶ Pa	51.7	52.9	16789	16933
6.10 ⁶ Pa	52.4	53.5	17553	17739

Tableau 4: Comparaison des températures de contact et des densités de flux moyennes entre l'expérience et le calcul

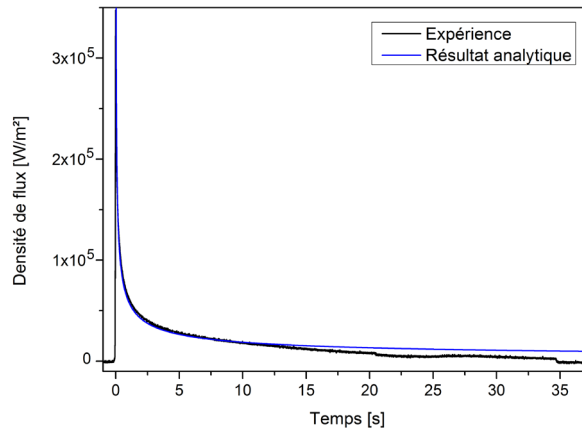


Figure 9 : Comparaison de la densité de flux expérimentale et analytique pour la pièce de PP

6. Conclusion

Dans ce travail, deux modèles différents ont été présentés pour déterminer le temps de refroidissement, la variation de température de surface du moule et les densités de flux échangées. Le premier modèle spécifique aux polymères amorphes est basé sur la résolution analytique de l'équation unidirectionnelle de la chaleur et sur l'hypothèse d'une évolution linéaire de la température de surface du moule. Le second modèle dédié aux polymères semi-cristallins s'appuie sur la résolution analytique du problème en milieux semi-infinis avec changement de phase associée à une estimation paramétrique. Pour chacun d'eux, la résistance thermique de contact peut être prise en compte et possède une influence significative. Les résultats de ces modèles sont en bon accord avec les expériences, ce qui valide leurs utilisations.

Références

- [1] J. V. Beck, B. Blackwell et C. R. S. J. Clair, *Inverse heat conduction Ill-Posed Problems*, Wiley-Inte (1985).
- [2] R. M. Patel et J. E. Spruiell, Crystallization kinetics during polymer processing - Analysis of available approaches for process modeling, *Polym. Eng. Sci.*, 31-10 (1991), 730–738.
- [3] B. Pignon, N. Boyard, V. Sobotka et D. Delaunay, Heat transfer analysis at high cooling rate on the surface of thermoplastic parts, *Int. J. Heat Mass Transf.*, 106 (2017), 253-262.
- [4] H. S. Carslaw et J. C. Jaeger, *Conduction of heat in solids*, Oxford sci. (1959).
- [5] A. Bénard et S. Advani, Energy equation and the crystallization kinetics of semi-crystalline polymers: regimes of coupling; *Int. J. Heat Mass Transf.*, 38 (1995), 819-832.
- [6] J. Stefan, Über einige Probleme der Theorie der Wärmeleitung, *Sitzungsberichte der Österreichischen Akademie der Wissenschaften Mathematisch - Naturwissenschaftliche Klasse* 98 (1889), 473–484.
- [7] V. Sobotka, A. Agazzi, N. Boyard et D. Delaunay, Parametric model for the analytical determination of the solidification and cooling times of semi-crystalline polymers, *Appl. Therm. Eng.*, 50-1 (2013), 416–421.
- [8] Kevin Merlin, *Caractérisation thermique d'un matériau à changement de phase dans une structure conductrice*, Thèse de doctorat, Université de Nantes, (2016).