

le chauffage par μ ondes, l'onde électromagnétique (EM) a la capacité de pénétrer et même traverser la plupart des polymères, induisant une distribution d'énergie calorifique, due à la polarisation moléculaire, conduisant à un chauffage volumique rapide. Des études sur divers matériaux ont mis en évidence une consommation d'énergie réduite, une homogénéité des températures (moins de gradient thermique dans le matériau), conduisant à une amélioration de l'homogénéisation des propriétés des matériaux [1-5]. Par ailleurs, il a été démontré que l'interaction μ onde-polymère accélère les réactions de polymérisation. De ce fait, l'étude du chauffage des polymères par μ ondes et de ses effets sur la rhéologie des polymères et la polymérisation devient un sujet important qui pourrait notamment avoir des applications en pratiques industrielles. Le problème majeur lié au chauffage par micro-ondes réside dans la distribution hétérogène de la température au sein du matériau traité [13]. Cette non uniformité dépend fortement des propriétés physiques et géométriques du produit ainsi que de ses propriétés diélectriques [14].

Cette étude aborde également les concepts numériques des transferts de chaleur dans les polymères sous μ ondes ainsi que l'analyse et comparaison expérimentale et théorique de certains paramètres, tels que la distribution de température, le coefficient de réflexion de puissance EM et l'amplitude de champ électrique [6, 9-12].

Afin de valider le modèle, un second banc expérimental est aussi réalisé. Il permet de mesurer les évolutions de températures sous μ ondes, dans des matériaux dans des conditions contrôlées. Ce banc nous fournira dans un premier temps, le socle d'une validation expérimentale d'un modèle numérique de couplage des équations de Maxwell avec celle de l'énergie (chaleur) dans l'objectif d'une extrapolation pour des cas pratiques.

2. Plan d'expérience

L'objectif de ce travail est de modéliser numériquement l'échauffement d'un polymère irradié pendant plusieurs minutes à différentes puissances micro-ondes. Des pyromètres et une fibre optique sont utilisés pour estimer la température à la surface de l'échantillon, et la mesure est utilisée pour la validation du modèle numérique. Le coefficient de réflexion sera également mesuré et comparé à des cas numériques sur le point d'entrée des micro-ondes.

L'échantillon de mesure utilisé sera un polymère biodégradable, Polycaprolactane (PCL) avec trois niveaux de concentration ; PCL 6100, 6250 et 6500. Les échantillons se présentent sous la forme d'un disque mince, posé sur un support cylindrique en Téflon. Les détails de cette partie d'expérience ont été omis pour des raisons de confidentialité.

Pour un chauffage optimal, l'ensemble d'échantillon et porte-échantillon ont été positionnés dans la cavité de telle sorte que le polymère reçoive une intensité électrique maximale, (Sur un sommet de champs électriques en fonction de la longueur guidée de l'onde λ_g .) Cf. figure 1.

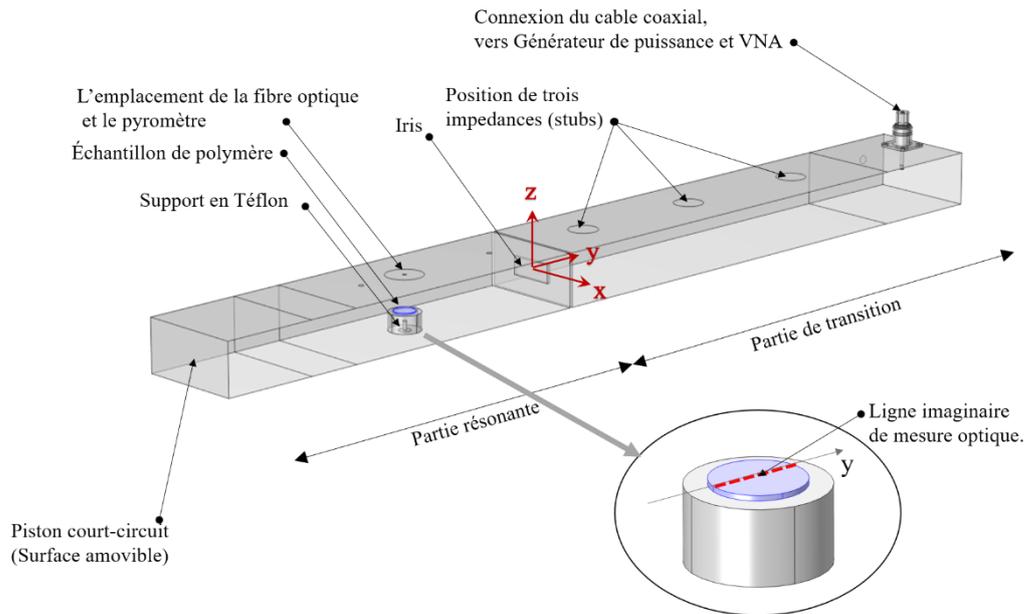


Figure 1 : Banc expérimental de la cavité résonante monomode

Afin de garantir l'homogénéité de température et de minimiser le gradient thermique dans le matériau, nous avons opté pour un disque de polymère de faible épaisseur. Cela nous permet de supposer qu'il n'y ait pas de fort gradient de température à l'intérieur du polymère par rapport à sa surface. Cela rendra la mesure des températures plus fiable et permettra sa comparaison avec les résultats numériques, étant donné que toutes les mesures de température pour la validation sont réalisées sur la surface de l'échantillon, sans contact, via des techniques radiatives. Le nombre de Biot calculé pour l'échantillon et le porte-échantillon dans les configurations de mesure, est de 0,015 et 0,08, respectivement, ce qui satisfait la condition d'un corps thermiquement mince. Tableau 1.

3. Equations

Dans ce travail, l'objectif est de modéliser le transfert de chaleur dans les polymères sous l'influence d'un champ électromagnétique. Nous supposons le chauffage d'un échantillon de polymères, un polycaprolactone (PCL) à trois différents niveaux de concentration, positionné à l'intérieur d'un champ électrique qui se propage dans un guide d'onde. Le polymère sera considéré comme diélectrique avec une propriété EM complexe mesurée préalablement.

La propagation des micro-ondes dans un milieu diélectrique est définie par les équations de Maxwell. Nous optons pour l'hypothèse d'une propagation harmonique afin de dissocier la dépendance du phénomène au temps. En conséquence, nous pouvons utiliser l'équation de Helmholtz pour un régime fréquentiel [6-8].

3.1. Modèle électromagnétique

Les équations de Maxwell sous forme harmonique et indépendante du temps [6, 7, 18], pour la cavité résonante utilisée peuvent être écrites comme suit:

$$\nabla \times (\mu_r^{-1} \nabla \times \tilde{\vec{E}}) - \gamma^2 \tilde{\vec{E}} = \vec{0} \quad (1)$$

Où γ est la constante de propagation, donnée par :

$$\gamma^2 = (\omega\sqrt{\varepsilon_0\mu_0})^2 \cdot (\varepsilon_r' - \frac{j\sigma}{\omega\varepsilon_0}) \quad (2)$$

ε_0 et μ_0 sont respectivement la permittivité et la perméabilité du vide. La conductivité électrique σ est liée à la pulsation ω de l'onde, la permittivité relative ε_r et la perméabilité μ_r du milieu diélectrique (Lossy Material : matériau avec pertes) sont définies par :

$$\sigma = \omega\varepsilon_0\varepsilon_r'' \quad (3)$$

$$\varepsilon = \varepsilon_0\varepsilon_r, \quad \mu = \mu_0\mu_r \quad (4)$$

Les propriétés diélectriques sont en fonction de la température. Cf. figure 3.

$$\varepsilon_r(T) = \frac{\varepsilon_r'(T)}{\varepsilon_0} - j \frac{\varepsilon_r''(T)}{\varepsilon_0} \quad (5)$$

3.1.1. Conditions aux limites et initiales

La cavité est généralement conçue et fabriquée en aluminium, avec la conductivité électrique $\sigma = 3.03 \times 10^7$ [S/m]. Supposant que les parois de la cavité rectangulaire sont électriquement constituées d'un conducteur parfait, nous avons donc :

$$\vec{n} \times \vec{E} = \vec{0} \quad (6)$$

A l'instant initial, la composante tangentielle du champ électrique sur les parois métalliques a été mise à zéro, ainsi que le champ électrique à l'intérieur de la cavité. La source de puissance électromagnétique imposée sur un côté du guide d'ondes pourra être modélisée par l'équation 7, selon [8, 16]

$$\vec{E}_{input} = \vec{E}_0 \cos \frac{\pi x}{L_x} \quad (7)$$

x représente la position sur la section de la cavité.

L'impédance caractéristique de l'onde, définie par Z_{TE} et l'amplitude du champ électrique \vec{E}_0 , étant en fonction de la puissance d'entrée, selon le théorème de Poynting :

$$\vec{E}_0 = \vec{e}_z \sqrt{\left(\frac{4Z_{TE}P_{entrée}}{L_x L_z} \right)} \quad (8)$$

Les dimensions de la section du guide d'ondes sont : $L_x \times L_z = 86.36 \times 43.18$ [mm²].

3.2. Modèle de transfert thermique

La résolution numérique de l'équation de transfert de chaleur, contrairement à l'électromagnétique, est limitée à l'échantillon de polymère et à son support en PTFE. L'équation générale de l'énergie a été utilisée afin de décrire les transferts thermiques dans le système.

$$\rho c_p \frac{\partial T}{\partial t} = \nabla \cdot (\lambda \nabla T) + Q_{EM} \quad (9)$$

$$Q_{EM} = \frac{1}{2} \omega \varepsilon_0 \varepsilon_r'' \cdot |\tilde{E}|^2 \quad (10)$$

Où ρ , Cp et λ sont respectivement la masse volumique, la capacité calorifique et la conductivité thermique des différents milieux considérés (échantillon de polymère et support en PTFE). La génération de chaleur Q_{EM} , due aux micro-ondes, est déterminée à partir du champ électrique local, calculée et actualisée à chaque pas de temps thermique. A noter que, compte tenu de la permittivité des matériaux, cette quantité pour le Téflon sera faible.

Ainsi, l'évolution de la température au sein de l'échantillon de polymère est décrite à partir de l'équation générale de la chaleur qui dépend des propriétés électromagnétiques de l'échantillon.

3.2.1. Conditions aux limites et initiales

À l'instant initial ($t = 0$ s), nous avons considéré une distribution homogène de température à l'intérieur du polymère et du support : $T_0 = 30$ °C. Sur toutes les parois externes du polymère et du PTFE, nous imposons une condition aux limites de type Robin (convection), équation 11, avec $h = 6 \left[\frac{W}{m^2.K} \right]$ et $T_\infty = 18$ °C.

$$-\lambda \frac{\partial T}{\partial n} = h(T - T_\infty) \quad (11)$$

4. Propriétés thermo-électromagnétiques

Usuellement, dans le but de simplifier et de découpler les équations du modèle, les simulations de chauffage par micro-ondes sont réalisées avec l'hypothèse de propriétés thermo-électromagnétiques à une température constante. Dans le cas des polymères, cette pratique se heurte au fait que ces propriétés sont température dépendantes, notamment, la permittivité varie (augmente) beaucoup lors du changement de phase du polymère et influence beaucoup le suivi de température sur l'ensemble de l'échantillon. Cette augmentation peut engendrer, d'ailleurs, un emballement thermique dans l'échantillon, il faut donc caractériser précisément cette dépendance en température. À cette fin, pour trois niveaux de concentration de PCL (CAPA6100, 6250 et 6500), les propriétés diélectriques des échantillons en fonction de la température ont précédemment été évaluées via la méthode de perturbation de la cavité [9]. De même, les évolutions de la chaleur massique apparente sont obtenues, via des mesures en DSC (Differential scanning calorimetry), et présentées dans la figure 2. La conductivité thermique a été définie à partir de la littérature.

Nous observons une forte variation de la permittivité et de la capacité calorifique en fonction de la température, en particulier pendant le changement de phase. Cf. les figures 2 et 3.

En effet, pour modéliser cette partie du changement de phase dans l'équation de l'énergie, il faut soit ajouter un puits de l'énergie représentant la chaleur latente de fusion, soit introduire une chaleur massique apparente. Dans ce travail, les données issues de mesures par DSC, donnant la dépendance de Cp à la température sont intégrées dans la simulation, via l'interpolation « Spline », [15].

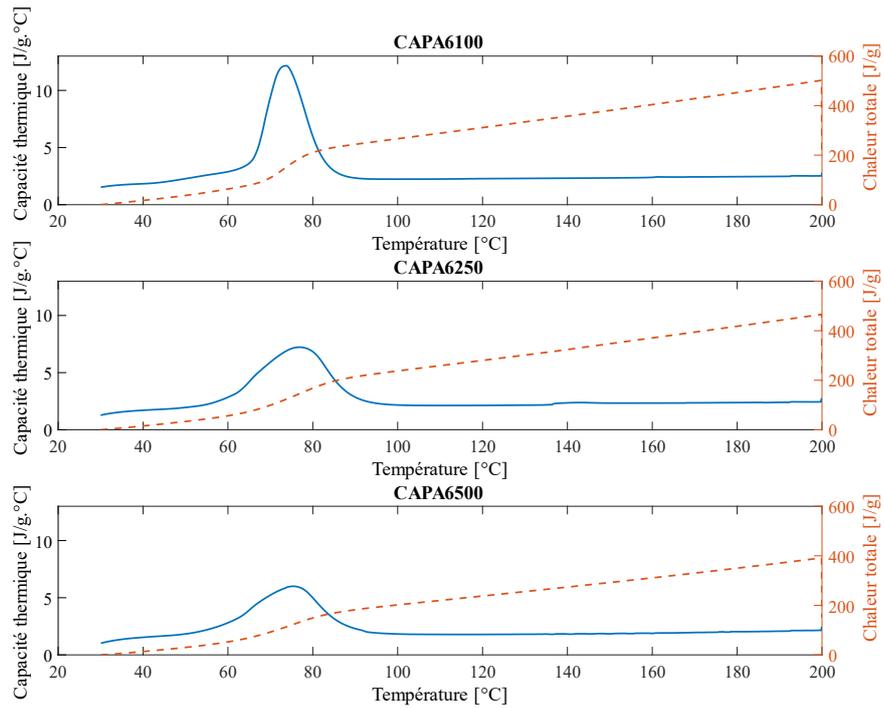


Figure 2 : Résultats de mesure DSC pour trois concentrations de PCL. Ils ont été utilisés afin d'obtenir $C_p(T)$.

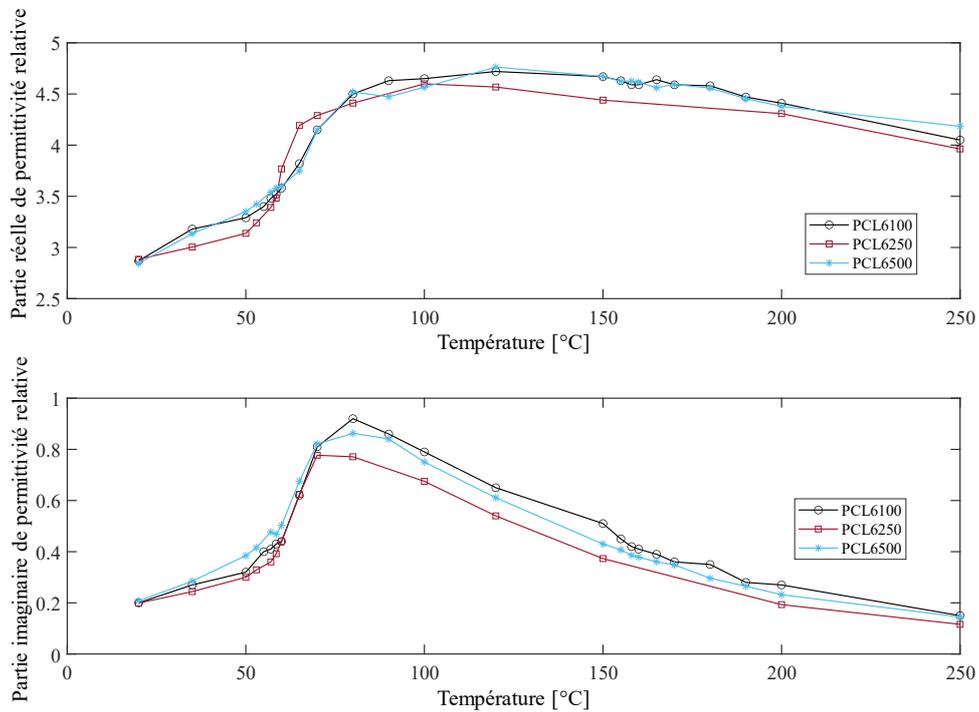


Figure 3 : Propriétés diélectriques des PLC en fonction de la température.

Les autres propriétés thermo physiques du polymère sont considérées constantes et détaillées dans le Tableau 1.

Propriétés	PTFE	PCL 6100, 6250, 6500
Masse volumique $\left[\frac{kg}{m^3}\right]$	2180	1145
Capacité thermique $\left[\frac{J}{kg.K}\right]$	1000	Figure 2 Cp (T)
Conductivité thermique $\left[\frac{W}{m.K}\right]$	0.25	0.18
Permittivité ϵ_r'	2.1	Figure 3 $\epsilon_r'(T)$
Permittivité ϵ_r''	4e-4	Figure 3 $\epsilon_r''(T)$
Perméabilité μ_r	1	1

Table 1 : Propriétés thermo électromagnétiques des polymères et PTFE.

5. Algorithme et résolution numérique

Le modèle de chauffage a été défini par un couplage entre partie électromagnétique et l'équation de l'énergie. L'organigramme de la simulation pour un couplage numérique est présenté dans la figure 4. Les équations de Maxwell sous forme harmonique (équations 1-4) sont résolues en utilisant les méthodes des éléments finis avec des conditions aux limites (équations 6-8). La taille maximale des éléments tétraédriques (résolution spatiale) est limitée à 0,05 des longueurs d'onde de l'espace libre à 2,45 GHz, 0,122 m, à l'aide de la relation suivante [16, 17],

$$max. \text{ taille d'élément} < \frac{0.122}{20 * \sqrt{\epsilon_r}} \quad (12)$$

Le pas de temps pour la résolution de l'équation de l'énergie a été déterminé pour un schéma BDF (Backward differentiation formulas) d'ordre deux. Afin d'assurer la meilleure précision numérique, le critère de convergence du chaque pas de temps de la méthode itérative a été fixé à 0,001.

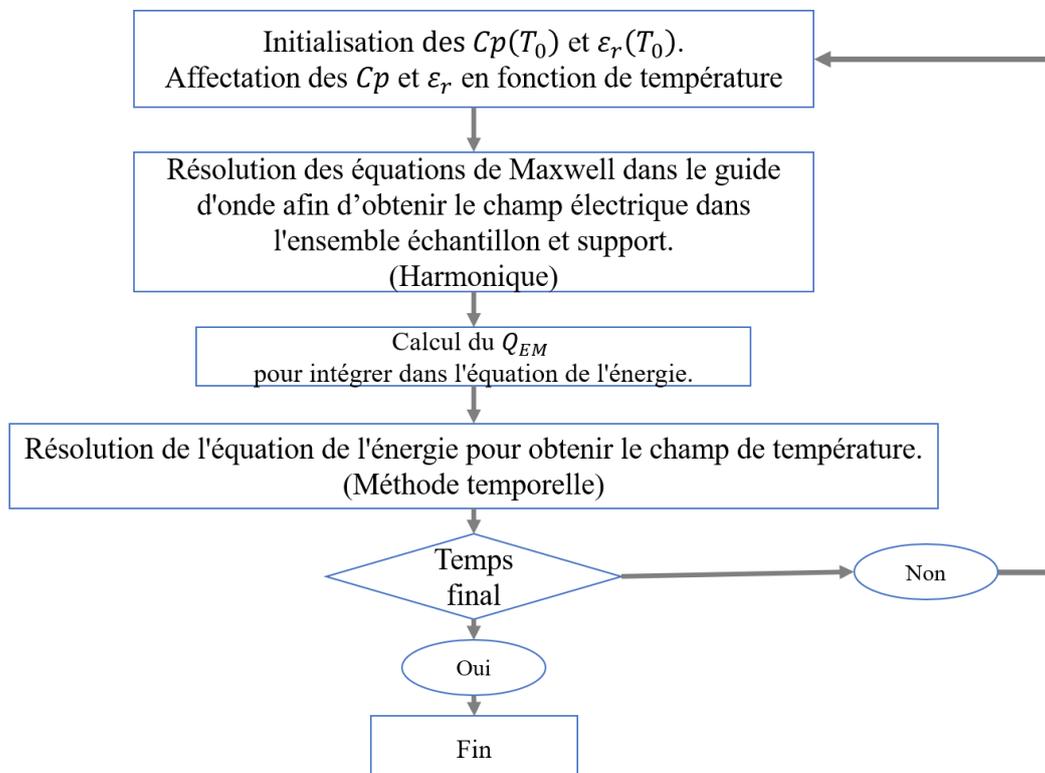


Figure 4 : Organigramme de couplage électromagnétique – thermique.

6. Analyse des résultats

La propagation de l'onde dans la cavité est considérée suivant la direction y (le long du guide d'onde). La composante du champ électrique avec l'amplitude dominante sera dans la direction z , \vec{e}_z . À cet effet, l'intensité du champ électrique suivant la propagation des micro-ondes est analysée minutieusement afin de quantifier l'influence du polymère sur la distribution du champ électrique par rapport à la cavité vide. Dans la figure 5, les résultats numériques du champ électrique sont présentés en termes de valeur absolue (norme).

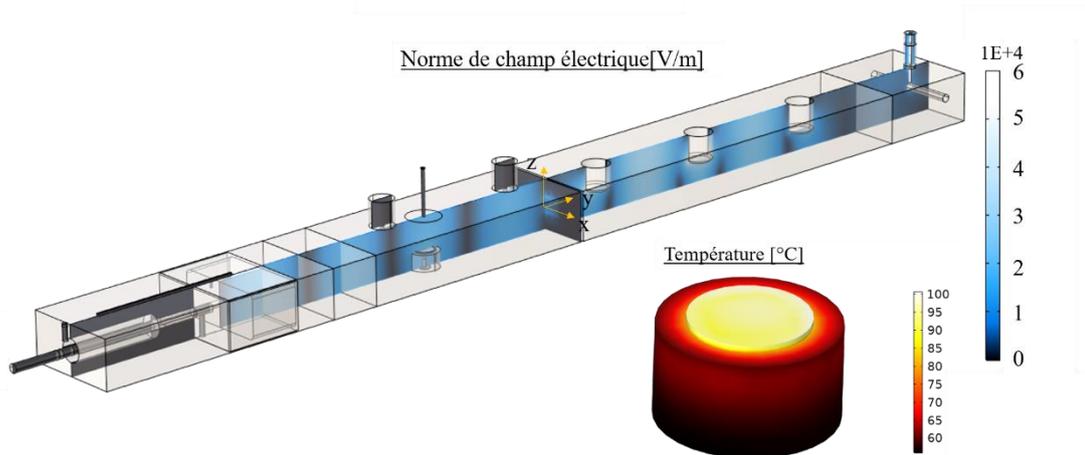


Figure 5 : Répartition du champ électrique [v/m], dans le plan YZ et en $X=0$, avec présence d'un échantillon dans la partie résonnante. $f = 2,46$ [GHz], $P_{entrée} = 20$ watts

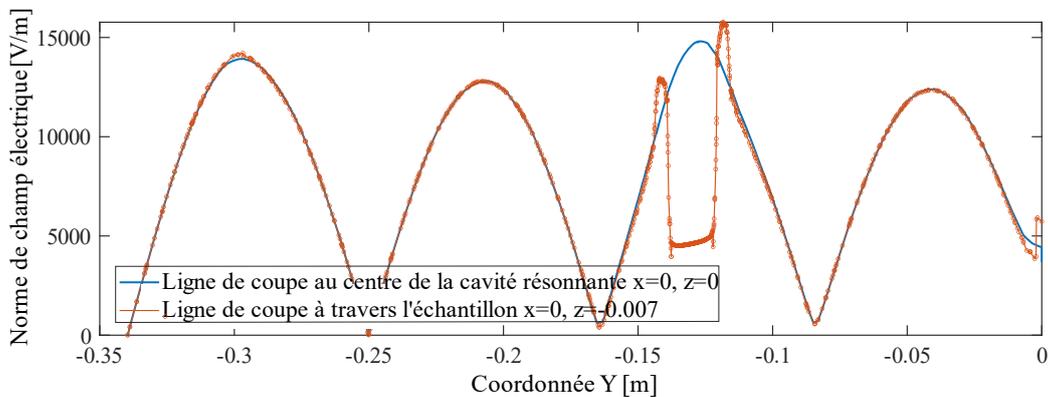


Figure 6 : Norme du champ électrique le long de la cavité avec l'échantillon, à deux hauteurs différentes, $f = 2,46$ GHz, $P_{entrée} = 20$ watts

L'intensité globale du champ électrique près de la surface supérieure du polymère a été atténuée (amplitude réduite d'environ 40 %), en raison de la permittivité relative élevée de l'échantillon par rapport au téflon et également à l'air. Avec l'utilisation d'un VNA (Vector network analyzer), le coefficient de réflexion S_{11} a été mesuré sur le port (l'entrée du câble coaxial) et comparé à celui calculé numériquement. Par conséquent, l'amplitude du champ électrique à l'intérieur de la cavité est proche de celle du modèle numérique donnant une valeur du S_{11} inférieure à -20 dB (figure 7).

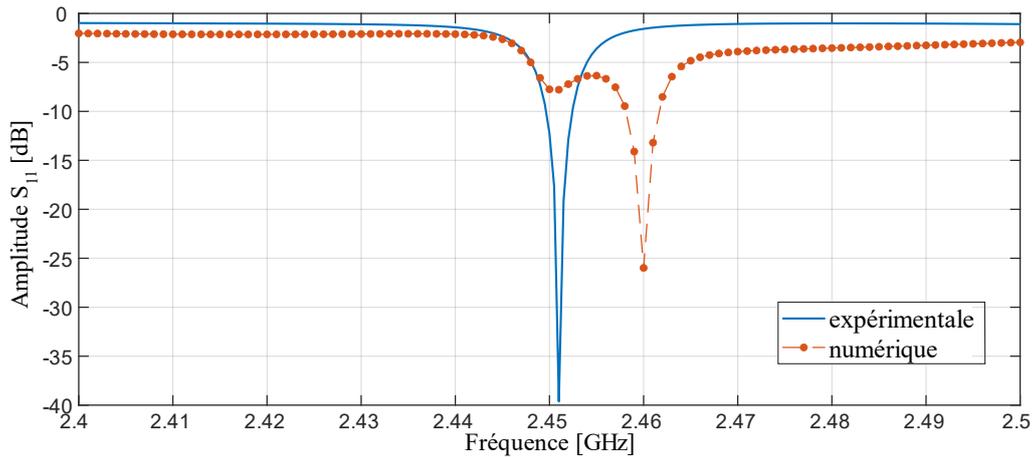


Figure 7 : Estimation de coefficient de réflexion sur le port d'entrée de puissance dans les deux cas numérique et expérimental.

Plusieurs séries de mesures ont été réalisées sur les trois polymères d'étude. Pour deux différentes puissances d'incidence ; 20 et 60 Watts, la température a été enregistrée à l'aide d'une fibre optique positionnée au centre de l'échantillon. Ainsi le profil de température sur une ligne diagonale, illustrée sur la figure 1, a été évaluée et présentée dans les figures 8, 9 et 10.

Les évolutions de température modélisées pour $P_{\text{entrée}} = 60 \text{ W}$ sont assez similaires au résultat expérimental, mais un écart se manifeste dans tous les cas lors de la fusion, probablement dû à une précision faible des mesures de permittivité à cette étape de changement de phase. En outre l'émissivité de surface du matériau lors changement de phase (fusion) varie, ce qui affecte fortement l'estimation de la température par les méthodes optiques (Pyromètres), car l'émissivité radiative détermine directement la mesure de la température.

Considérant que pour mesurer correctement la température par pyrométrie, il faudrait une estimation préalable de l'émissivité apparente du polymère qui varie également au cours de la fusion, nous avons effectué un étalonnage en fonction de la température prise par fibre optique. Cependant, cette étape de mesure est toujours approximative et fortement liée à la position de l'appareil thermique.

Néanmoins, la comparaison entre les résultats numériques et les mesures expérimentales donne un bon accord. La température maximale est située numériquement près du centre, ce qui correspond au profil du champ EM. Cf. figure 6.

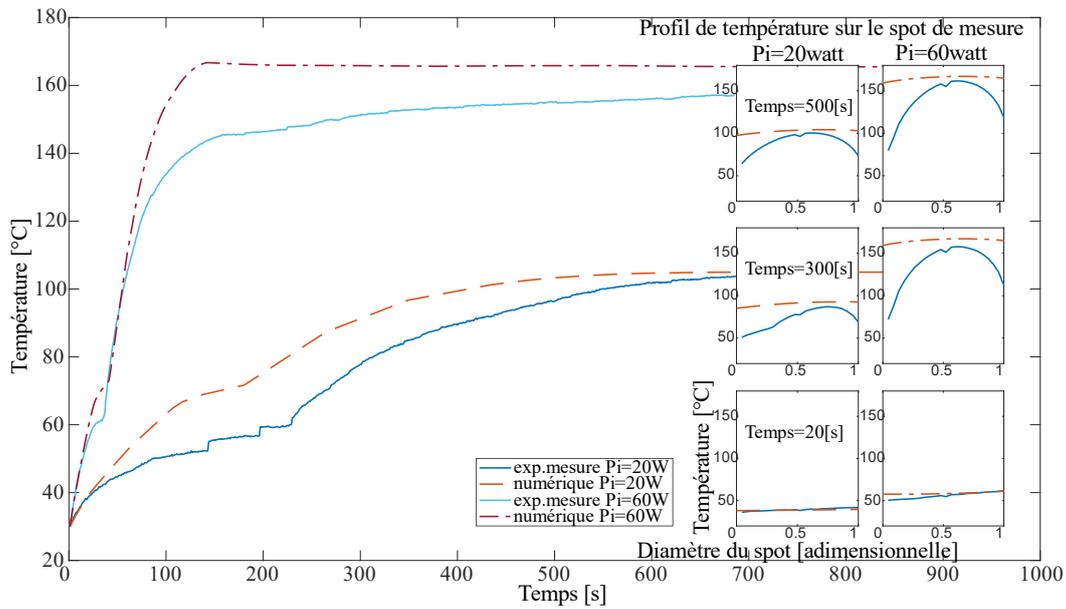


Figure 8 : Suivi de la température au centre de l'échantillon CAPA6100 et des profils de température sur le diamètre de l'échantillon. Pour deux puissances de chauffage 20 et 60 watts comparées à la simulation numérique.

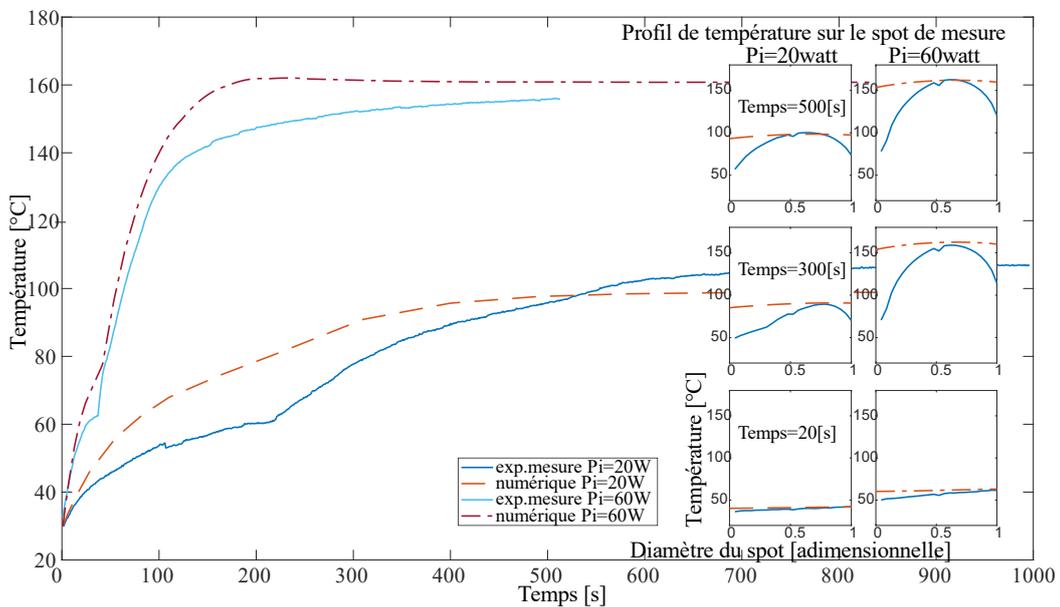


Figure 9 : Suivi de la température au centre de l'échantillon CAPA6250 et des profils de température sur le diamètre de l'échantillon. Pour deux puissances de chauffage 20 et 60 watts comparées à la simulation numérique.

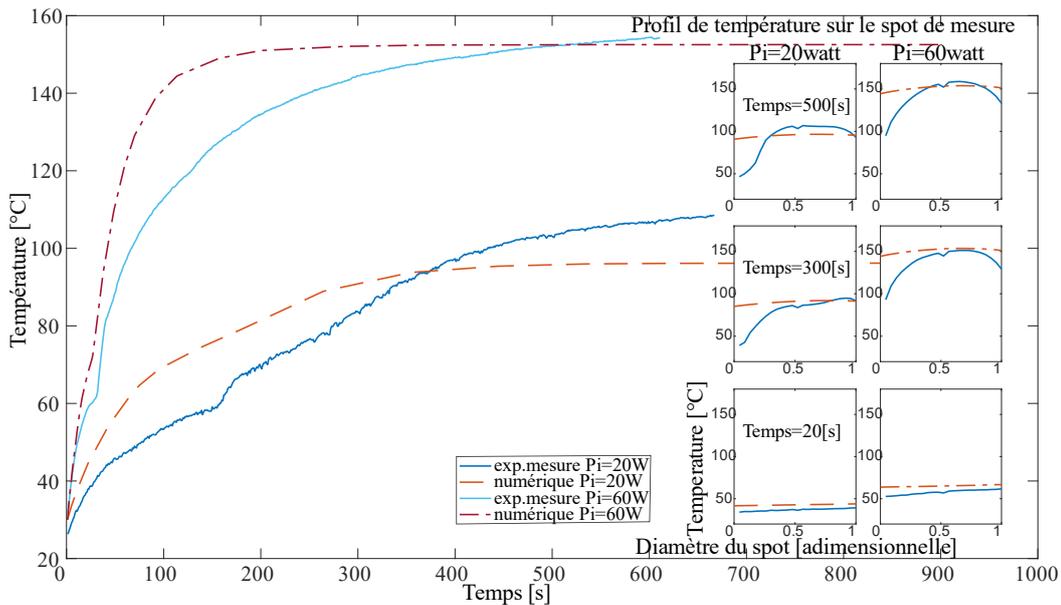


Figure 10 : Suivi de la température au centre de l'échantillon CAPA6500 et des profils de température sur le diamètre de l'échantillon. Pour deux puissances de chauffage 20 et 60 watts comparées à la simulation numérique.

7. Conclusion

Un modèle de couplage entre les ondes électromagnétiques et le transfert thermique a été réalisé dans le cas d'une cavité rectangulaire dans laquelle on irradie un échantillon de polymère. Les deux paramètres mesurables du système ont été utilisés afin d'établir une comparaison entre les résultats numériques et expérimentaux. Le paramètre S_{11} a été mesuré et confirme l'absorption et l'existence d'une interaction onde-polymère.

La température de l'échantillon est mesurée au centre et également sur une ligne diagonale passant par le centre de l'échantillon, par des pyromètres et fibre optique.

Pour modéliser correctement le suivi de température et notamment au moment de la fusion, nous avons choisi un modèle de chaleur massique apparente. Les propriétés EM des trois échantillons ont été précédemment obtenues via la méthode de perturbation de la cavité. Ces deux paramètres varient fortement lors de la fusion ; il est crucial d'identifier une fonction décrivant l'évolution des propriétés en fonction de la température, afin de mieux modéliser l'évolution de la température.

La taille de l'échantillon a été choisie de telle sorte qu'elle satisfasse la condition d'un élément thermiquement mince, ce qui permet de considérer un très faible gradient de température dans le polymère. Cependant, l'effet de bord est présent sur la pastille de polymère ce qui engendre un écart entre la mesure et le modèle. La condition de « Robin » de convection aux bords n'était pas suffisante pour pallier cet effet.

Enfin, cette étude permet de construire un banc de validation pour comparer des modèles théoriques ou numériques aux résultats expérimentaux de l'interaction micro-ondes-polymère, et constitue un moyen de mieux maîtriser les phénomènes de transfert de chaleur dans le polymère sous effets électromagnétiques.

Références

- [1] A. Loupy, *Microwaves in organic synthesis*, Wiley-VCH, Germany, 2002.
- [2] B. L. Hayes, *Microwave Synthesis, Chemistry at the Speed of Light*, CEM Publishing, U.S.A, 2002.
- [3] S. Étienne et L. David, *Introduction à la physique des polymères*, Dunod, Paris, 2002.
- [4] Mark A. Janney & Hal D. Kimrey, *Diffusion-Controlled Processes in Microwave-Fired Oxide Ceramics*, Springer, MRS Online Proceedings Library, pp. MRS Online Proceedings Library 189, 215–227, 15 April 1990.
- [5] Kristen H. Brosnan Gary L. Messing Dinesh K. Agrawal, *Microwave Sintering of Alumina at 2.45 GHz*, *Journal of the American Ceramic Society*, pp. Volume 86, Issue 8, 1307–1312, 20 December 2004.
- [6] D. M. Pozar, *Microwave engineering*, John Wiley & sons Inc, USA, 2005.
- [7] D. K. Cheng, *Field and wave electromagnetics*, Tsinghua University Press, 1989.
- [8] D. B. Davidson, *Computational electromagnetic for RF and microwave engineering*, Cambridge University Press, New York, 2005.
- [9] R. A. WALDRON, M.A., A.Inst.P., *Perturbation theory of resonant cavities*, The Institution of Electrical Engineers, Monograph No. 373 E, pp. 272-275, 1959-1960.
- [10] A. C. Metaxas et R.J. Meredith , *Industrial microwave heating*, The institution of engineering and technology, London, UK, 1988.
- [11] J. D. Jackson, *Classical Electrodynamics*, John Wiley and sons Inc, 3rd ed., USA, 1998.
- [12] K. Chang, *Encyclopedia of RF and microwave engineering Vol.1-6*, John Wiley & Sons, Inc, USA, 2005.
- [13] Vadivambal, R. and D. S. Jayas, *non-uniform Temperature Distribution during microwave Heating of Food and Bioprocess Technology* 3(2): 161-171, 2010.
- [14] Salazar-Gonzalez, C., M. San Martin-Gonzalez, A. Lopez-Malo and M. Sosa-Morales, *Recent studies related to microwave processing of fluid foods*, *Food and Bioprocess Technology* 5(1): 31-46 (2012)
- [15] N. Brahmia, P. Bourgin, M. Boutaous, D. Garcia, *Numerical Simulation with Comsol Multiphysics of Crystallization Kinetics of Semi-Crystalline Polymer during Cooling: Application to Injection Moulding Process*, Excerpt from the Proceedings of the Comsol Conference, Paris, 2006
- [16] S. Curet, F. Bellicanta Begnini, O. Rouaud, L. Boillereaux, *Modeling Microwave Heating During Batch Processing of a Liquid Sample in a Single Mode Cavity*, Excerpt from the Proceedings COMSOL Conference in Grenoble, 2015.
- [17] W. Klinbun and P. Rattanadecho, *Investigation into heat transfer and fluid flow characteristics of liquid two-layer and emulsion in microwave processing*, Elsevier, *International Communications in Heat and Mass Transfer*, pp. 115–126, 2015.
- [18] L.A. Campanone, N.E. Zaritzky, *Mathematical analysis of microwave heating process*, Elsevier, *Journal of Food Engineering* 69, 359–368, 2005.