

Identification de la conductivité thermique d'un polymère semi-cristallin en exploitant la mesure de température au cœur d'une pièce moulée par injection

M. C. LE, S. BELHABIB, C. NICOLAZO, P. VACHOT, A. SARDA

OPERP ERT1086 - Université de Nantes - IUT BP 539 44475 Carquefou Cedex

Résumé :

La conductivité thermique des matériaux polymères est un paramètre déterminant pour l'étude de l'influence de la mise en œuvre sur l'évolution des propriétés mécaniques des objets moulés. L'objectif de ce travail est d'identifier la conductivité thermique d'un polymère semi-cristallin en exploitant les mesures de température au cœur d'une pièce moulée par injection. La méthode adoptée est basée sur un calcul inverse par recalage par la méthode des éléments finis. Les résultats obtenus sont comparés aux mesures expérimentales obtenues par différents conductivimètres.

Abstract :

Thermal conductivity of polymers is a key parameter for the study of processing conditions influence on the mechanical properties of moulded parts. The aim of this work is to identify the evolution of thermal conductivity of semi-crystalline polymer (polypropylene) using measured temperature at the core of a moulded part. The used identification procedure is based on finite element model updating (FEMU) method. The obtained results are in good agreement with measured ones by conductivimeters.

Mots clefs : Conductivité thermique, transfert de chaleur, polymère semi-cristallin, calcul inverse

1 Introduction

La connaissance de l'évolution de la conductivité thermique est d'une grande importance pour la prédiction de la solidification des polymères et donc dans l'optimisation des processus de mise en œuvre. Plusieurs dispositifs ont été développés pour mesurer cette propriété [1]. On peut classer ces méthodes en deux catégories : (i) mesure en régime stationnaire et (ii) mesure en régime transitoire. Dans la première catégorie on peut citer la méthode de la plaque chaude gardée et dans la seconde les méthodes du fil chaud et du Hot Disk. L'inconvénient de ces techniques réside dans le fait que la caractérisation est réalisée dans des conditions qui s'éloignent des conditions réelles de mise en œuvre. En effet, dans le cas du moulage par injection par exemple, la vitesse de refroidissement est très élevée et la matière est sous pression avant le figeage du seuil d'alimentation. D'autre part, un maintien prolongé à une température élevée, notamment dans le cas d'une mesure en régime stationnaire, risque de dégrader le polymère étudié. Une alternative à ces méthodes est l'utilisation des méthodes inverses [2]. Ces dernières exploitent des mesures issues directement des procédés de mise en œuvre instrumentés et leur pendant numérique obtenu généralement par la méthode des éléments finis.

La section qui suit est consacrée à la présentation du dispositif expérimental et les résultats de mesure. Dans la troisième section, sont détaillées les équations utilisées pour modéliser le refroidissement de la pièce injectée. La quatrième section, quant à elle, décrit la méthodologie implémentée pour identifier la conductivité thermique du polymère étudié.

2 Dispositif expérimental

Les essais d'injection sont réalisés sur une presse à injecter DK 110/200. Le moule est équipé de deux

thermocouples et deux capteurs de pression permettant de mesurer la température et la pression au cours de l'essai sur les faces mobile et fixe de l'empreinte (cf. figure 1a). La mesure de la température dans l'épaisseur de la pièce est réalisée à l'aide d'un thermocouple porté par une aiguille (cf. figure 1b). Cette dernière sert à la fois de protection et de moyen de positionnement [3]. La figure 1c montre la pièce éjectée avec le dispositif de mesure.

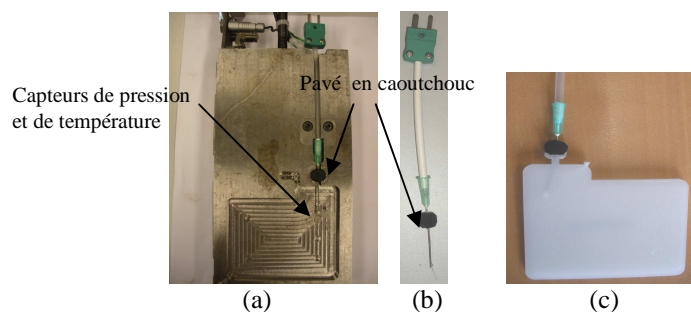


FIG. 1 – (a) Le moule instrumenté, (b) système de maintien de la sonde volante, (c) la pièce moulée.

2.1 Mesure de température

Les mesures accessibles lors de l'essai d'injection dans le cas d'un polymère semi-cristallin sont tracées sur la figure 2. La température mesurée au cœur de la pièce à l'aide de la sonde volante met en évidence un plateau de cristallisation à $T=120^{\circ}\text{C}$.

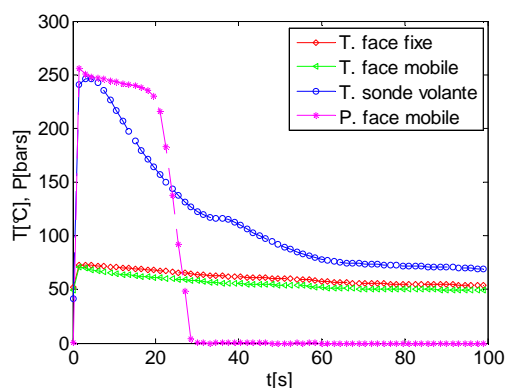


FIG. 2 – Mesures accessibles lors d'un essai d'injection.

2.2 Mesure de la conductivité par la méthode du Hot Disk

Le principe de mesure par Hot Disk est basé sur l'utilisation d'un capteur qui comporte une résistance jouant, par effet Joule, le rôle d'une source plane de chaleur. Cette résistance est placée entre deux échantillons plans du même matériau. Le capteur permet également de mesurer l'évolution de la température lors du dégagement de chaleur. Un logiciel dédié exploite la température mesurée pour remonter à la conductivité à l'aide de formules théoriques [4]. Dans cette étude, un Hot Disk TPS 2500 a été utilisé pour mesurer la conductivité thermique de pièces en polypropylène ensemencé (PPC9642) moulées par injection (cf. figure 1c). Les résultats obtenus sont donnés dans le tableau 1.

Température (°C)		30,30	39,30	57,39	65,12	75,41
Conductivité (W/mK)	Mesure n°1	0,2269	0,2334	0,2473	0,2390	0,2377
	Mesure n°2	0,2259	0,2322	0,2427	0,2266	0,2311
	Mesure n°3	0,2270	0,2278	0,2457	0,2233	0,2263
	Moyenne	0,2266	0,2311	0,2452	0,2296	0,2317

TAB. 1 – Mesures de la conductivité du PPC9642 obtenues avec un Hot Disk TPS 2500.

3 Modélisation

3.1 Equation de la chaleur

Le refroidissement de la pièce est régi par l'équation de la chaleur avec un terme source qui tient compte de la chaleur dégagée lors de la cristallisation :

$$\frac{C_p(T, \alpha)}{v(P, T, \alpha)} \cdot \frac{\partial T}{\partial t} + \nabla(-\lambda(T, \alpha) \cdot \nabla T) - \frac{X_\infty \Delta H}{v(P, T, \alpha)} \frac{\partial \alpha}{\partial t} = 0 \quad (1)$$

L'expression utilisée pour décrire l'évolution du taux de cristallinité (α) est la suivante [5] :

$$\frac{\partial \alpha}{\partial t} = n \kappa(T) (1 - \alpha) \left(\ln \left(\frac{1}{1 - \alpha} \right) \right)^{\frac{n-1}{n}} \quad (2)$$

où n est le paramètre d'Avrami et $\kappa(T)$ la constante cinétique dont l'expression est donnée par la théorie de cristallisation d'Hoffman-Lauritzen [6]. Cette modélisation a été validée par [7].

3.2 Propriétés du matériau étudié

Le matériau choisi dans le présent travail est le polypropylène ensemencé PPC9642 fourni par Total Petrochemicals[®]. Ses propriétés thermophysiques disponibles dans la base de données du logiciel MoldFlow sont reportées dans le tableau 2.

Température (°C)	Chaleur spécifique (J/kg.K)	Température (°C)	Conductivité (W/m.K)
20	1700	20	0.22
60	1700	200	0.17
100	2400	-	-
165	2700	-	-

TAB. 2 – Chaleur spécifique et conductivité thermique du PPC9642. Données issues de la base de données MoldFlow.

Le diagramme p v T est décrit par une loi des mélanges entre le volume spécifique de la phase solide et la phase liquide (cf. équation 3) comme le propose [8].

$$v(T, p) = \alpha v_s(T, p) + (1 - \alpha) v_a(T, p) \quad (3)$$

$$v_s(T, p) = A_1(p) + A_2(p)T$$

$$v_a(T, p) = A_3(p) + A_4(p)T$$

$$A_1(p) = 1.0668 - 2.2368 \times 10^{-4} p$$

$$A_2(p) = 3.9057 \times 10^{-4} - 1.4037 \times 10^{-6} \times p$$

$$A_3(p) = 1.1144 - 3.0062 \times 10^{-4} \times p$$

$$A_4(p) = 8.2961 \times 10^{-4} - 5.4519 \times 10^{-6} \times p + 1.7006 \times 10^{-8} \times p^2$$

$v_a(T, p)$ et $v_s(T, p)$ représentent le volume spécifique de la phase liquide et solide respectivement. La dépendance de ces deux termes de la pression a été obtenue en lissant les données disponibles dans la base de données du logiciel MoldFlow. La figure 3 montre la superposition des deux fonctions $v_a(T, p)$ et $v_s(T, p)$ avec les données MoldFlow. L'intérêt de cette expression réside dans la prise en considération de l'évolution du taux de cristallinité [8]. La cinétique de cristallisation utilisée pour tracer les courbes de la figure 3 est celle simulée au cœur de la pièce injectée.

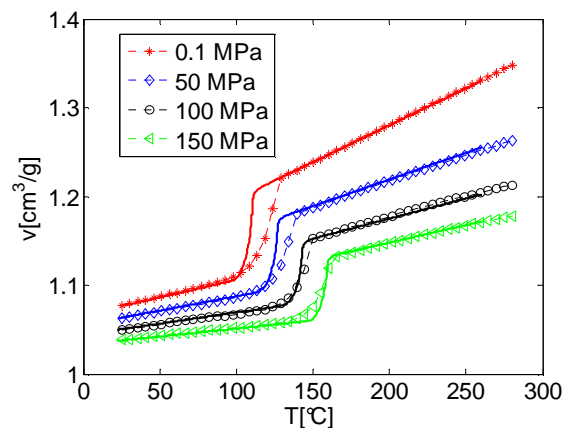


FIG. 3 – Diagramme pvT, superposition des courbes calculées avec la loi des mélanges (traits continus) et celles issues de la base de données MoldFlow.

3.3 Description de la géométrie de la pièce et les conditions aux limites

La géométrie de la pièce étudiée et les conditions aux limites (cf. figure 4) permettent de simplifier le problème de transfert thermique tridimensionnel et de le ramener à l'étude d'un problème unidimensionnel. Dans ce travail on a opté pour une modélisation bidimensionnelle facile à implémenter dans le code de calcul éléments finis Comsol[®].

Les conditions aux limites appliquées pour les différentes phases de refroidissement sont illustrées sur la figure 4. H_f , H_{m-a} et H_{p-a} représentent respectivement les coefficients de convection entre le moule et le fluide de refroidissement, entre le moule et l'air et entre la pièce et l'air. T_{fl} et T_{am} représentent la température du liquide de refroidissement et la température ambiante.

La résolution simultanée de l'équation de la chaleur et de l'évolution du taux de cristallinité est effectuée à l'aide du code de calcul éléments finis Comsol[®].

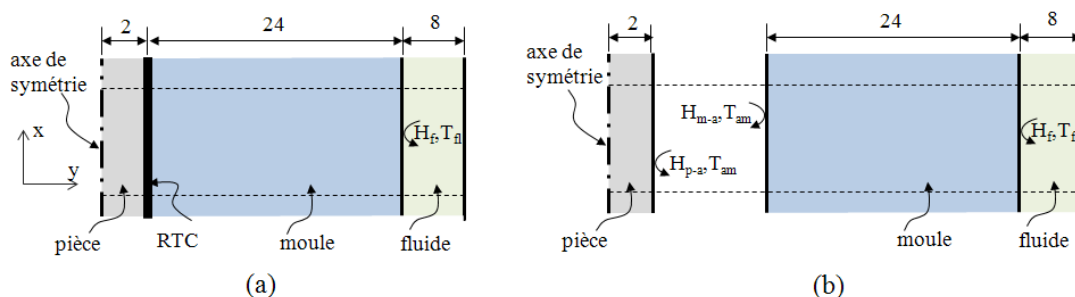


FIG. 4 – Modèle décrivant le refroidissement de la pièce (dimensions en mm). (a) Avant et (b) après éjection.

La température du moule, la température d'injection, la pression et le temps de maintien ont été fixés à 50°C, 250°C, 6 MPa et 25 s respectivement.

4 Identification de l'évolution de la conductivité thermique

4.1 Description de la dépendance thermique de la conductivité

L'évolution de la conductivité thermique en fonction de la température est décrite par une loi des mélanges donnée par l'équation 4.

$$\lambda(T, \alpha) = \alpha \lambda_s(T) + (1 - \alpha) \lambda_a(T) \quad \text{W/(m.K)}; \quad (4)$$

$$\text{avec } \lambda_a(T) = \lambda_{a0} + aT \quad \text{et} \quad \lambda_s(T) = \lambda_{s0} + bT.$$

Les paramètres λ_{a0} , a , λ_{s0} et b sont des paramètres à identifier. La procédure d'identification consiste à

rechercher un jeu de paramètres optimal $J_{opt}(\lambda_{a_0}, a, \lambda_{s_0}, b)$ qui minimise la fonction objective $\Delta(J)$

$$\text{donnée par : } \Delta(J) = \sqrt{\frac{1}{m} \sum_{i=1}^m \left(\frac{T^{sim}(t_i) - T^{exp}(t_i)}{T^{exp}(t_i)} \right)^2},$$

$\Delta(J)$ représente l'écart quadratique entre la température simulée et la température mesurée au cœur de la pièce avec le jeu $J(\lambda_{a_0}, a, \lambda_{s_0}, b)$. m est le nombre de mesures acquises lors de l'essai d'injection. La recherche du jeu optimal est basée sur l'algorithme du simplexe [9].

4.2 Résultats et discussion

Les résultats d'identification obtenus avec plusieurs jeux initiaux sont donnés dans le tableau 3.

Identification n°	Jeu	λ_{a_0} (°C)	a (W/mK°C) x 10 ⁰⁶	λ_{s_0} (°C)	b (W/mK°C) x 10 ⁰⁶	$\Delta(J)$ (%)
1	Initial	0,1500	10	0,1500	10	22,12
	Identifié	0,1590	8,07	0,2093	11	2,57
2	Initial	0,4500	10	0,4500	10	30,15
	Identifié	0,1591	7,36	0,2093	10,9	2,57
3	Initial	0,1500	300	0,1500	300	6,21
	Identifié	0,1144	283	0,1843	332	2,65
4	Initial	0,1500	100	0,1500	100	15,80
	Identifié	0,1432	111	0,2054	60	2,58

TAB. 3 – Résultats des d'identification effectuées avec différents jeux initiaux.

Les résultats montrent que les différentes identifications donnent des valeurs très proches pour les paramètres λ_{a_0} et λ_{s_0} . Les courbes de température mesurée et simulée avec les jeux initial et identifié (identification n°2) sont données dans la figure 5. On remarque que la modélisation choisie permet, avec le jeu identifié, de prédire correctement la courbe de température plateau de cristallisation compris.

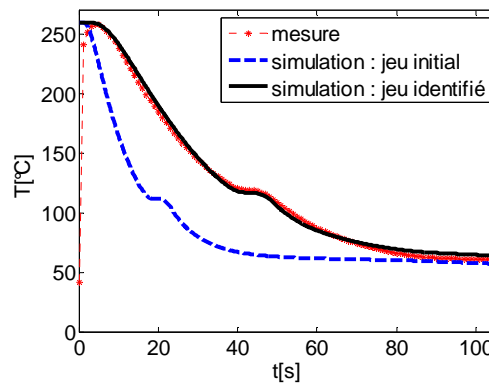


FIG. 5 – Courbes de température mesurée et simulées avec les jeux initial et identifié (identification n°2 du tableau 3).

La conductivité identifiée et mesurée expérimentalement avec le Hot Disk, la méthode du fil chaud [10] et les données MoldFlow est donnée dans la figure 6. La comparaison entre ces différentes mesures montre que la conductivité obtenue par le recalage par éléments finis est en accord avec les valeurs mesurées. La méthode proposée est capable de retrouver la différence entre le niveau de la conductivité de la phase amorphe et solide mise en évidence expérimentalement. Toutefois, cette méthode sous-estime la dépendance thermique de la conductivité. L'utilisation d'un algorithme d'identification plus puissant tel que les algorithmes génétiques [11] permettrait d'explorer un espace de solutions plus grand et améliorer *a priori* la qualité de la dépendance thermique identifiée.

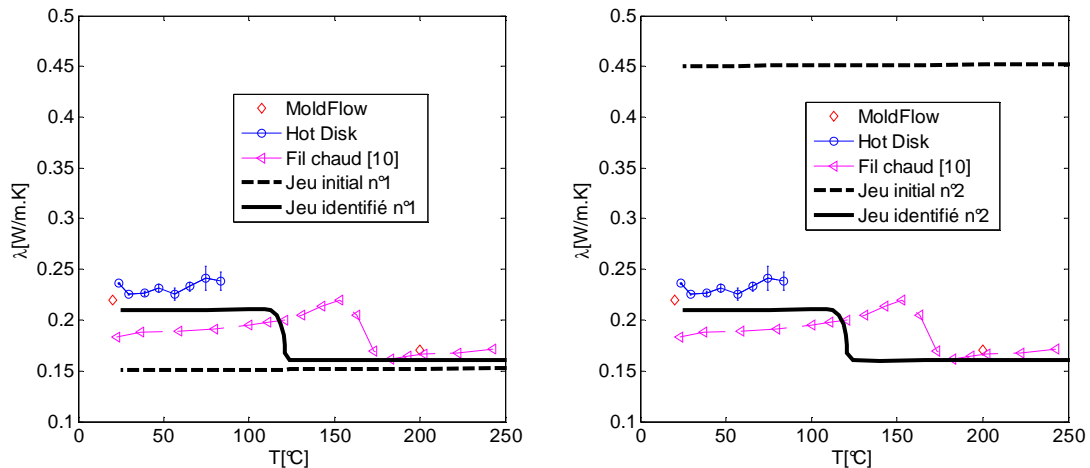


FIG. 6 – Conductivité mesurée expérimentalement et décrite avec une loi des mélanges identifiée (jeux n°1 et n°2 du tableau 3).

Il faut noter, par ailleurs, que la différence entre la cinétique de refroidissement utilisée pour tracer la conductivité décrite par l'équation 4 et la cinétique réelle ayant lieu lors des mesures par fil chaud explique l'écart constaté au niveau de la température de cristallisation de la figure 6.

5 Conclusion

Ce travail présente une méthodologie d'identification de la conductivité thermique du polypropylène lors du moulage d'une pièce par injection. La stratégie adoptée est basée sur le couplage de la température mesurée et simulée au cœur d'une pièce moulée par injection. La mesure est obtenue à l'aide d'une sonde volante insérée dans la cavité moulante avant l'essai d'injection. La modélisation du refroidissement de la pièce moulée permet de mettre en évidence le plateau de cristallisation observé expérimentalement. Les résultats d'identification de la conductivité obtenus par le recalage par éléments finis sont proches des valeurs rapportées dans la littérature ainsi que celles mesurées à l'aide d'un Hot Disk dans le présent travail. L'intérêt de la méthodologie implémentée réside dans le fait que la conductivité du polymère est caractérisée dans des conditions réelles de mise en œuvre.

Références

- [1] M. Rides, J. Morikawa, L. Halldahl, B. Hay, H. Lobo, A. Dawson and C. Allen, *Polymer Testing* 28 (2009) 480.
- [2] R. Le Goff, D. Delaunay, N. Boyard, Y. Jarny, T. Jurkowski and R. Deterre, *International Journal of Heat and Mass Transfer* 52 (2009) 1443.
- [3] C. Nicolazo, A. Sarda, P. Vachot, P. Mousseau and R. Deterre, *Journal of Materials Processing Technology* 210 (2010) 233.
- [4] Y. He, *Thermochimica Acta* 436 (2005) 122.
- [5] K. Nakamura, K. Katayama and T. Amano, *Journal of Applied Polymer Science* 17 (1973) 1031.
- [6] J. I. Lauritzen, Jr. and J. D. Hoffman, *J. Appl. Phys.* 44 (1973) 4340.
- [7] R. Le Goff, G. Poutot, D. Delaunay, R. Fulchiron and E. Koscher, *International Journal of Heat and Mass Transfer* 48 (2005) 5417.
- [8] J. F. Luyé, G. Régner, P. LeBot, D. Delaunay and R. Fulchiron, *Journal of Applied Polymer Science* 79 (2001) 302.
- [9] J. C. Lagarias, J. A. Reeds, M. H. Wright and P. E. Wright, *SIAM J. on Optimization* 9 (1998) 112.
- [10] N. Brahmia, M. Zinet, M. h. Boutaous, P. Chantrenne, P. Bourgin and D. Garcia, *AIP Conference Proceedings* 908 (2007) 337.
- [11] I. G. Tsoulos and I. E. Lagaris, *Computer Physics Communications* 178 (2008) 843.