

# Mesure thermo-rhéologique des écoulements polymères : avancées scientifiques et application aux procédés d'injection.

## Thermo-rheological measurement of polymer flows: scientific advances and application to injection processes.

Qiao LIN<sup>1</sup>, Nadine ALLANIC<sup>1</sup>, Julien LAUNAY<sup>1</sup>, Yannick MADEC<sup>1</sup>, Pierre MOUSSEAU<sup>1\*</sup>

<sup>1</sup>Laboratoire de Génie des Procédés Environnement Agroalimentaire, IUT de Nantes, 2 avenue Jean Rouxel – 44470 Carquefou

\*(auteur correspondant : [pierre.mousseau@univ-nantes.fr](mailto:pierre.mousseau@univ-nantes.fr))

**Résumé** - Dans ce travail, nous expliquons (ou rappelons) le fonctionnement d'un dispositif original qui permet de suivre en ligne la stabilité, ou l'instabilité rhéologique d'un matériau polymère à partir d'une mesure de température, signature de la dissipation visqueuse de l'écoulement. Nous présentons les premiers résultats de mesure obtenus lors de cycles d'injection. Ces résultats représentent non seulement une avancée significative pour le domaine industriel de la plasturgie mais ils permettent aussi de mettre en avant scientifiquement l'impact de la compressibilité sur la mesure thermique des écoulements.

**Abstract** - In this work, we explain (or remember) the operation of an original device that enables one-line monitoring of the rheological stability or instability of a polymer material based on a temperature measurement, which serves as a signature of the viscous dissipation of the flow. We present the first measurement results obtained during injection cycles. These results not only represent a significant advancement for the industrial field of plastics processing but also scientifically highlight the impact of compressibility on the thermal measurement of flows.

### Nomenclature (11 points, 2 colonnes)

$K$  constante loi puissance, SI  
 $n$  indice pseudoplastique loi puissance  
 $Q$  débit volumique,  $\text{cm}^3 \cdot \text{s}^{-1}$   
 $p$  pression, Pa

$T$  température, K  
*Symboles grecs*  
 $\eta$  viscosité dynamique, Pa.s  
 $\alpha$  coefficient de dilatation,  $\text{K}^{-1}$   
 $\dot{\gamma}$  taux de cisaillement,  $\text{s}^{-1}$   
*Indices et exposants*  
 $c$  point critique

## 1. Introduction

Dans le domaine de la plasturgie, la surveillance des grandeurs physiques sur une ligne de production est nécessaire pour assurer la qualité et la stabilité de production, optimiser des procédés et appliquer des méthodes de contrôle avancées [1], notamment face à l'augmentation des matériaux recyclés et biosourcés aux caractéristiques fluctuantes et mal connues. Laissant de côté ces matériaux non conventionnels, les viscosités de certains polymères commerciaux restent inconnues et leurs procédés de mise en forme sont paramétrés en fonction de leurs indices de fluidité donnés par les fournisseurs. Par ailleurs, la fiabilisation des prédictions

basées sur des modèles physiques nécessite une bonne connaissance des propriétés thermo-rhéologiques des matériaux.

Lors du congrès français de thermique de 2023 à Reims, nous avons présenté le principe de fonctionnement d'un dispositif original, possiblement monté en ligne sur un procédé de transformation des polymères (injection, extrusion) et permettant d'identifier la viscosité d'un écoulement à partir de températures mesurées par des thermocouples placés dans le dispositif [2].

Dans le travail que nous présentons aujourd'hui nous montrons les premiers résultats obtenus avec le dispositif, que l'on nommera TRAC pour *Thermo-Rhéologie Annulaire Cell*, dans une configuration d'injection industrielle c'est-à-dire en injection cyclique et moule fermé. Nous donnerons les pistes qui restent à explorer pour expliquer ces résultats.

En amont et dans une première partie, en s'appuyant sur les papiers déjà publiés sur l'ensemble du travail, nous rappellerons le fonctionnement de la TRAC en donnant des résultats de viscosité estimée dans le cas de l'injection en moule ouvert (mode purge) et montrerons comment ce dispositif peut permettre de suivre *en ligne* le comportement rhéologique de la matière.

## 2. La TRAC

La problématique de la caractérisation rhéologique des polymères au comportement non newtonien est une problématique complexe sur laquelle il est possible de rapidement « s'arracher les cheveux ». Les rhéomètres de paillasse ont des caractéristiques d'analyse très variées mais ont des vitesses de cisaillement possibles assez éloignées de celles atteintes dans les procédés de mise en œuvre (en particulier en injection). Les rhéomètres capillaires permettent d'atteindre des conditions de pression significatives mais peuvent être inadaptés pour des systèmes hétérogènes ou facilement dégradables. En effet, le mélangeage et le temps de séjour lors de la mise en œuvre peut impacter la morphologie de l'écoulement et donc sa rhéologie. Des rhéomètres en ligne existent mais sont trop intrusifs pour être raisonnablement utilisés dans les conditions industrielles. De plus, tous sont basés sur l'exploitation de signaux mécaniques et fournissent au mieux une viscosité apparente ou un indice de viscosité [3,4]. Au regard de ces éléments, on ne peut que constater qu'il est bien difficile d'être innovant.

Et pourtant la mesure des propriétés rhéologiques en ligne est devenue un sujet d'importance pour le contrôle des procédés de mise en œuvre des polymères. Zhao et al. [5] ont rédigé une revue d'articles récente (2024) qui fait un bilan des techniques développées en injection pour caractériser les écoulements, en particulier leur fluidité. Sur les 171 articles référencés dans la revue, 40% ont été publiés dans les six dernières années, ce qui illustre assez bien semble-t-il l'activité scientifique dans le domaine.

Le dispositif que nous avons développé est un outillage qui se monte en ligne en amont du nez de la buse d'injection d'une presse à injecter et génère peu de pertes de charge. L'originalité est apportée par la géométrie annulaire de l'élément et la mesure thermique. En forçant l'écoulement de polymère fondu cylindrique en sortie de fourreau à passer dans un élément annulaire dont l'entrefer est contrôlé, on favorise l'auto-échauffement du matériau au contact de l'axe central de l'anneau. Une instrumentation soignée de cet axe central avec des micro-capteurs de températures permet alors de recueillir une information thermique directe, véritable signature de l'échauffement par dissipation visqueuse ( $\eta\dot{\gamma}^2$ ) tout en écartant les problèmes liés à la régulation globale de l'outillage située sur le rayon externe de l'anneau. On pourra se référer à [6] pour plus de détails sur la conception du dispositif et la précision des mesures.

La Figure 1 montre le plan de la TRAC et la position des capteurs de températures. La Figure 2 illustre l'instrumentation de l'axe central.

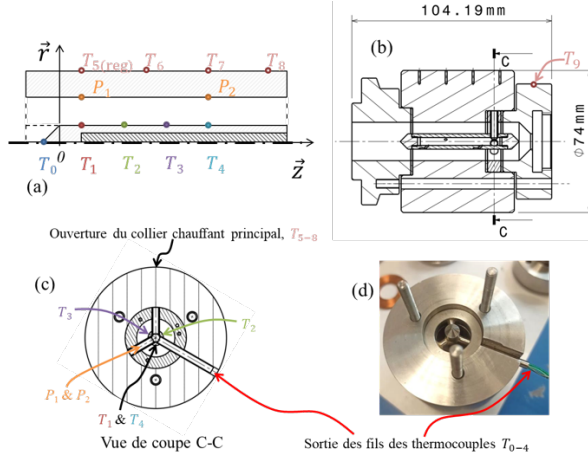


Figure 1 : (a) Positions des capteurs dans un modèle axisymétrique, (b) Plan de la TRAC, (c) Positions angulaires des capteurs sur la vue en coupe C-C et (d) Photo sur le système de maintien de l'axe central près de la sortie de la TRAC

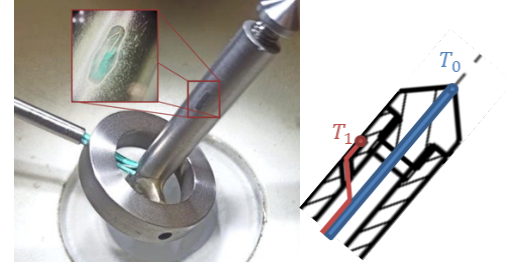


Figure 2 : Instrumentation de l'axe central avec des thermocouples type K

La Figure 3 montre un exemple de mesures réalisées avec la TRAC dans le cas de l'injection d'un polypropylène en moule ouvert (mode purge) avec un débit d'injection de  $42,4 \text{ cm}^3 \cdot \text{s}^{-1}$ .

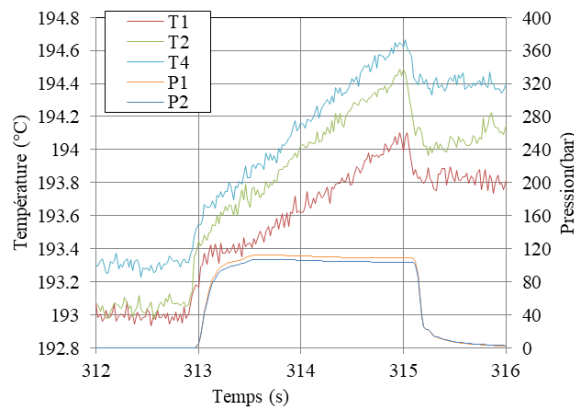


Figure 3 : Exemple de températures et pressions mesurées dans la TRAC lors de l'injection d'un Polypropylène à  $Q=42,4 \text{ cm}^3 \cdot \text{s}^{-1}$

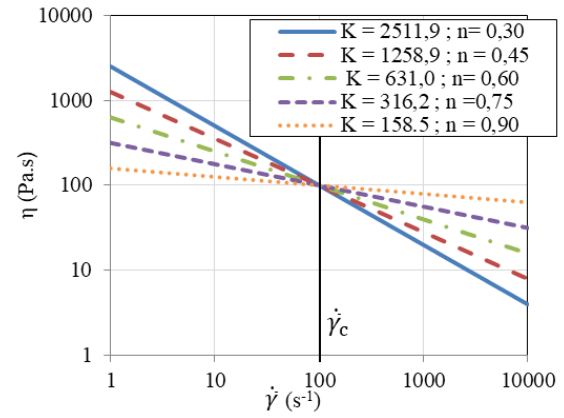


Figure 4 : Exemple de lois de puissance passant par le point commun  $[\dot{\gamma}_c=100 \text{ s}^{-1}, \eta_c=100 \text{ Pa.s}]$  avec des paramètres  $K$ - $n$  pour  $K$  variant de 2511,9 à 158,5  $\text{Pa.s}^n$  et  $n$  variant de 0,3 à 0,9

Ces mesures de températures sont utilisées pour identifier les couples  $(K,n)$  d'une loi de comportement rhéologique de type puissance :

$$\eta = K \dot{\gamma}^{n-1} \quad (1)$$

Le modèle direct axisymétrique est résolu avec le logiciel ANSYS® POLYFLOW® et le modèle inverse est développé sous Python avec un algorithme de type gradient conjugué (Polak-Ribière). La méthode est parfaitement détaillée dans [7].

Pour un débit d'injection donné et les températures mesurées associées, il n'y a pas unicité de la solution. Il existe de nombreux couples  $(K, n)$  qui fournissent le même échauffement visqueux et les mêmes températures. Par contre, les lois puissances reconstruites à partir de ces couples admissibles ont une propriété remarquable : elles se croisent toutes en un point critique  $(\eta_c, \dot{\gamma}_c)$ . On admet que cet invariant *étonnant* donne donc la valeur de la viscosité à la température moyenne de l'écoulement et pour le débit d'injection imposé.

En répétant les expérimentations pour d'autres débits d'injection, il est alors possible de reconstruire un rhéogramme du matériau. La Figure 5 montre les résultats obtenus avec la TRAC sur du polypropylène, à différentes températures et en comparaison avec d'autres valeurs de la littérature.

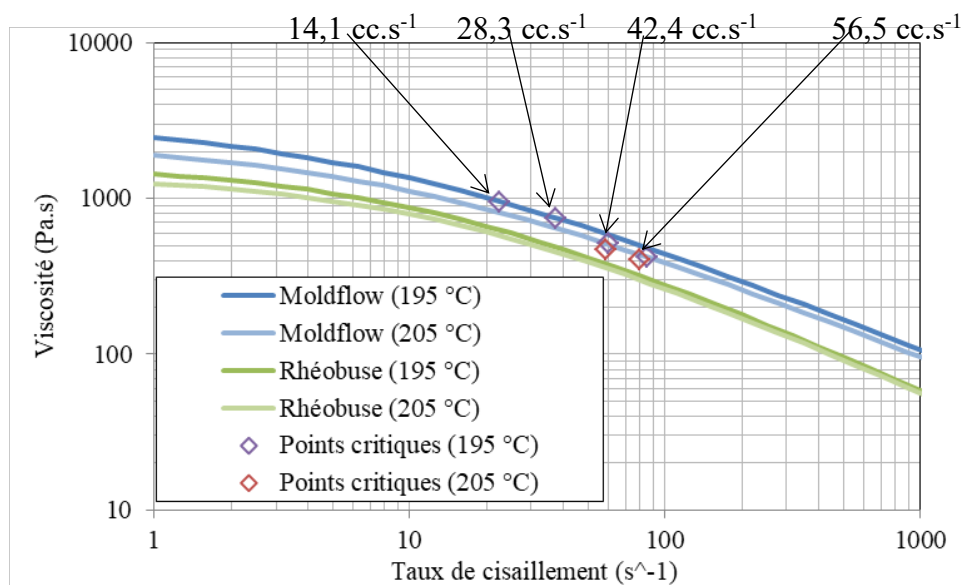


Figure 5 : Points critiques du Polypropylène (PPC 9642) comparés aux lois de viscosité dans la base des données du logiciel « Autodesk® Moldflow® » et aux lois de viscosité identifiées par une buse rhéométrique [8]

Les résultats obtenus après trois ans de la thèse de Qiao LIN sont très satisfaisants et valident à ce stade sur un polymère homogène le potentiel du dispositif expérimental et de la méthode de traitement des données.

Mais rappelons que les essais ont été réalisés en mode purge, c'est-à-dire sans pression imposée par la fermeture et le remplissage d'un moule et sans cyclage (injections successives). Dans la suite, nous présentons les premiers résultats obtenus en mode de fonctionnement dit « industriel », c'est-à-dire lors d'injections répétées dans une empreinte fermée.

### 3. Fonctionnement en injection moule fermé

En injection moule fermé, le dispositif est placé avant la buse d'injection (Figure 6). A chaque cycle il suit le mouvement du ponton de la presse qui s'accroche au moule. Après l'injection, l'ensemble recule avant de démarrer un nouveau cycle. Les pressions mises en jeu peuvent être élevées pour permettre le remplissage de l'empreinte. Par ailleurs l'équilibre thermique de l'ensemble est obtenu après un certain nombre de cycles. Cet aspect est bien connu et on peut l'observer également sur les mesures de températures de la TRAC, Figure 7. Les estimations rhéologiques seront réalisées lorsque la stabilité thermique du système est atteinte.

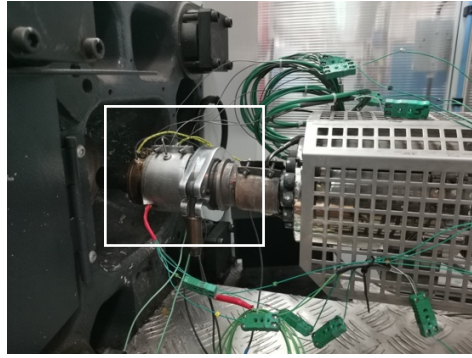


Figure 6 : TRAC montée sur la presse à injecter pour une utilisation en moule fermé

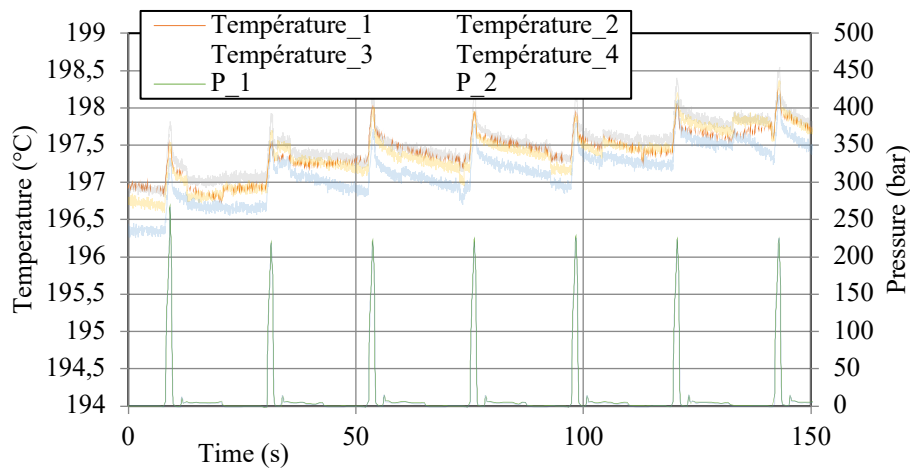


Figure 7 : Températures et pressions mesurées dans la TRAC lors de cycles d'injection – PPC 9642 –  $Q=28\text{cm}^3.\text{s}^{-1}$  – influence de la mise en régime thermique sur les températures mesurées

Les essais sont réalisés avec le même matériau, le polypropylène PPC 9642 pour une température de régulation ciblée à  $195^\circ\text{C}$ . Trois injections sont réalisées pour trois débits différents afin de retrouver les conditions imposées en mode « moule ouvert » et pouvoir comparer les viscosités estimées.

La Figure 8 montre les mesures de températures dans la TRAC pour 11 cycles d'injection et un débit de  $14,1\text{cm}^3.\text{s}^{-1}$  (vitesse d'injection de  $20\text{mm}.\text{s}^{-1}$ ). Les cycles sont facilement repérables, les variations de températures sont faibles et relativement instables d'un cycle à l'autre. La pression maximale ( $200\text{ bars}$ ) est supérieure à celle mesurée en mode purge.

Que ce soit sur la Figures 7 ou la Figure 8 relatives à deux débits d'injection différents, nous pouvons aussi observer que les pics d'auto-échauffement sont bien en phase avec les pics de pression et les temps de cycles.

La Figure 9 zoome sur un cycle. Malgré l'augmentation de pression, la perte de charge dans la TRAC reste faible car la longueur de l'écoulement dans le dispositif ne change pas (environ  $5\text{ bars}$  de variation de pression). On remarque l'absence du palier de pression qui était présent en mode purge : les temps d'injection sont trop courts pour obtenir un régime d'équilibre mécanique.

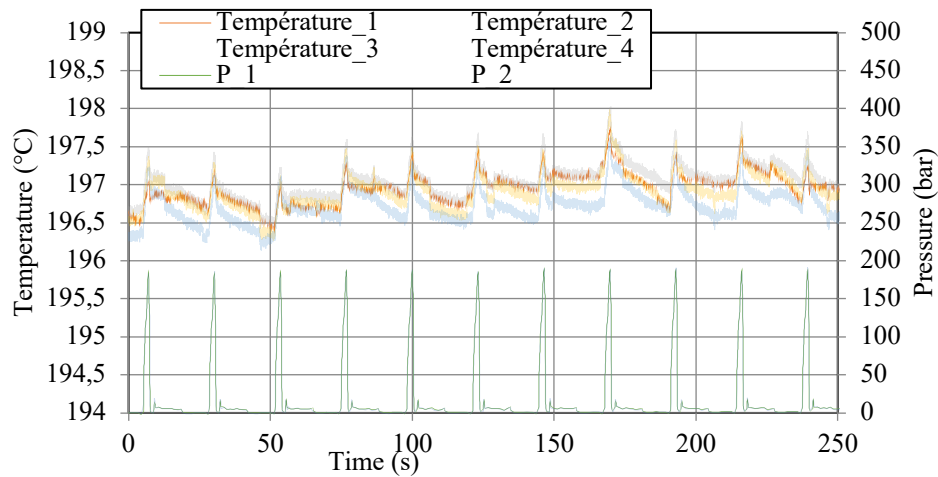


Figure 8 : Températures et pressions mesurées dans la TRAC lors de 11 cycles d'injection – PPC  
 $9642 - Q=14,1 \text{ cm}^3 \cdot \text{s}^{-1}$

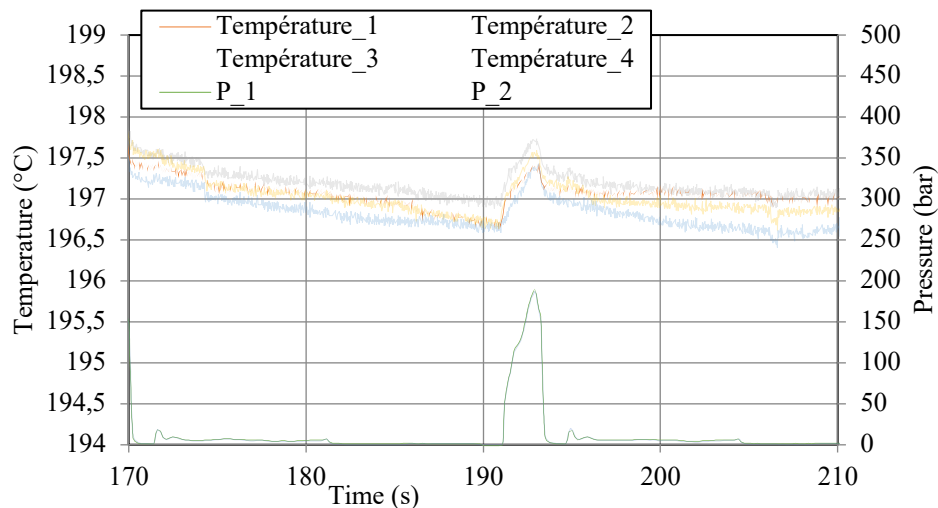


Figure 9 : Températures et pressions mesurées dans la TRAC lors de 1 cycle d'injection – PPC  
 $9642 - Q=14,1 \text{ cm}^3 \cdot \text{s}^{-1}$

Les mesures de températures sont utilisées sur le temps de montée en pression pour estimer la viscosité sur le cycle concerné. La méthode numérique d'inversion pour estimer  $K$  et  $n$  est la même que précédemment mais le modèle direct est résolu différemment. L'objectif d'estimation en ligne impose à termes l'utilisation d'un modèle aux temps de calcul les plus rapides possibles donc assez peu compatibles avec l'utilisation d'un solveur numérique de résolution des équations de Navier-Stokes en écoulement non newtonien. Dans le cadre de ce travail M. Girault [9] a développé un modèle réduit d'ordre 8 dont les entrées sont  $K$ ,  $n$  et  $Q$  et les sorties les températures aux points de mesures. Le temps d'un calcul passe de 8500s à 0,41s !

Les viscosités ainsi estimées sont reportées sur la Figure 10. Ce sont les premiers résultats d'un contrôle en ligne de la rhéologie d'un polymère injecté sur une presse de taille industrielle.

Quels enseignements peut-on tirer de ces mesures ?

- La répétabilité des estimations (4 cycles pour un débit donné) est de bonne facture. Il apparait tout de même une certaine dispersion qu'il conviendra de diagnostiquer par des essais complémentaires

- Il apparaît également que ces viscosités sont surestimées par rapport aux autres points référencés sur la courbe. Des travaux de recherche complémentaires doivent être menés pour éclaircir ce point mais il semble que la compressibilité du matériau puisse en être en partie responsable. La puissance thermique volumique liée à la compressibilité est de la forme  $\alpha T \frac{\partial p}{\partial t}$  et s'ajoute à la dissipation thermique  $\eta \dot{\gamma}^2$  liée à la viscosité dans l'équilibre de l'équation de la chaleur [7]. Lorsque les variations de pression sont importantes comme c'est le cas en injection moule fermé (Figure 9), ce terme n'est pas négligeable. Le modèle réduit que nous utilisons ne le prenant pas en compte, il semble logique que les viscosités soient surestimées. Une première étude en simulation numérique a été réalisée et va dans ce sens.
- L'évolution de la viscosité estimée en fonction de la vitesse de cisaillement (ie. le débit ou la vitesse d'injection) est tout à fait cohérente et en accord avec les mesures réalisées en moule ouvert (mode purge) et avec la rhéologie issue de la base de données Moldflow.

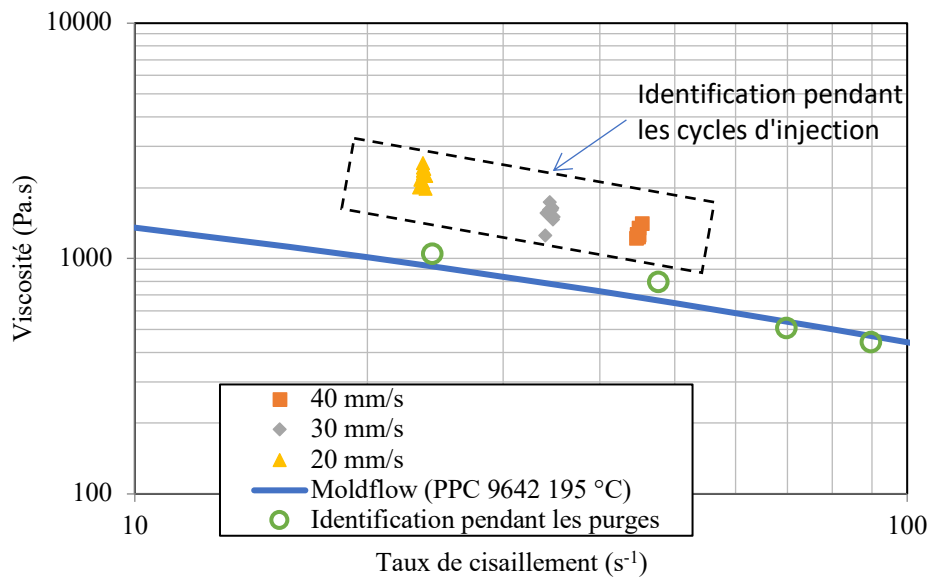


Figure 10 : Viscosités estimées en injection cyclage – PPC 9642

#### 4. Conclusion

Dans ce papier, nous avons tenté d'expliquer les dernières avancées d'une thématique initiée il y a plus de 25 ans, thématique autour de la thermo-rhéologie des écoulements de polymères. Avec le dispositif conçu (TRAC), la surveillance en ligne d'un procédé de transformation tel que l'injection est désormais envisageable. Le dispositif est peu intrusif, il se positionne en ligne avant le nez de buse d'injection. Il utilise l'information thermique issue de la dissipation visqueuse de l'écoulement soigneusement couplée à une méthode numérique d'estimation originale (point critique, modèle réduit) pour estimer un point de viscosité.

La conception annulaire de la TRAC a le double avantage d'accentuer la dissipation visqueuse au contact de l'axe central et de rendre les capteurs de températures instrumentés sur l'axe peu sensibles aux instabilités de la régulation globale de l'outillage. Ce dernier point était bloquant sur les différents dispositifs sur lesquels nous avons travaillé jusque-là.

Certes il reste des questionnements en suspens comme le sens à donner au « point critique » et la recherche d'une explication fiable à la surestimation de la viscosité estimée.



Mais dans tous les cas nous savons que rechercher expérimentalement une mesure absolue de la viscosité d'un écoulement est un « vœu pieux ». La surveillance rhéologique d'un procédé de transformation doit pouvoir se contenter de la surveillance d'un point de fonctionnement pour en détecter *les variations* éventuellement issues de la dégradation prématurée d'un matériau dans le système de plastification, éventuellement issues des dispersions de mélanges dans le cas de matériaux recyclés. En l'état, le dispositif présenté ici est en mesure d'y répondre.

## Références

- [1] Liew, Kai-Fu, et al. Injection barrel/nozzle/mold-cavity scientific real-time sensing and molding quality monitoring for different polymer-material processes. *Sensors* 22.13 (2022): 4792.
- [2] Q. Lin and al., De la thermique vers la rhéologie : caractérisation des matériaux non newtoniens via des événements thermiques, *Congrès Français de Thermique* (Reims, 30 mai-2 juin 2023).
- [3] Hertz, Rasmus Aa, et al. In-line process and material property measurement in injection moulding- a theoretical review. *Production & Manufacturing Research* (2022)10.1: 938-963.
- [4] Chen, Yi-Sheng, et al. Adaptive process control of the changeover point for injection molding process. *Journal of Low Frequency Noise, Vibration and Active Control* (2021) 40.1: 383-394.
- [5] Zhao and al., Measurement techniques in injection molding: A comprehensive review of machine status detection, molten resin flow state characterization, and component quality adjustment, *Measurement* (2024) 226:114163
- [6] Q. Lin and al., Online melt temperature measurements for polymer injection molding through an instrumented annular duct, *Polymer Engineering and Sciences* (2022) 62:3994-4004
- [7] Q. Lin and al., In-line viscosity identification via thermal-rheological measurements in an annular duct for polymer processing, *International Journal of Heat and Mass Transfer* (2022)182
- [8] G.E.H. Sleiman and al., Flows with power-law viscosity via the modal identification method, Study of the rheological behavior of polypropylene/polyethylene extruded mixture using an instrumented die, *AIP Conf. Proc.* 1914 (2017) 040005
- [9] M. Girault and al., Thermo-rheological reduced order models for non-Newtonian fluid, Thermo-rheological reduced order models for non-Newtonian fluid, *International Journal of Heat and Mass Transfer* (2023) 203: 123692

## Remerciements

Nous souhaitons remercier ici tous les collègues qui ont contribué à l'émergence de ce travail que cela soit sur le développement de la TRAC ou sur les nombreux travaux précédents.