

Analyse expérimentale des transferts thermiques dans le procédé de rotomoulage.

Vincent SOBOTKA^{1*}, Didier DELAUNAY¹, Estelle PEROT², Abderrahim MAAZOUZ²

¹Laboratoire de Thermocinétique - UMR CNRS 6607
La Chantrerie - Rue Christian Pauc - 44306 Nantes Cedex 03

²Laboratoire de Recherche Pluridisciplinaire en Plasturgie / Ingénierie des Matériaux Polymères UMR CNRS 5627

Site de Plasturgie de l'INSA de Lyon – BP 807 – 01108 Oyonnax Cedex – France

* (auteur correspondant : vincent.sobotka@univ-nantes.fr)

Résumé - Cet article porte sur l'analyse expérimentale des échanges thermiques au cours de la mise en forme par rotomoulage d'un polymère semi-cristallin. En utilisant un moule instrumenté associé à un système d'acquisition original avec une transmission des données par ondes radio, nous avons montré que la double rotation de l'outillage au cours du cycle engendre une évolution complexe des échanges thermiques dans le moule. Par ailleurs, la cristallisation du matériau a été modélisée avec précision en couplant l'équation de la chaleur avec le modèle cinétique déterminé par calorimétrie. Enfin, il apparaît que la résistance thermique de contact est un point clé des échanges thermiques pendant la phase de solidification du polymère.

Nomenclature

C_p	Chaleur spécifique, $J.kg^{-1}.K^{-1}$	<i>Symboles grecs</i>	
e	Épaisseur, m	α	Taux de transformation
h	Coefficient d'échange, $W.m^{-2}.K^{-1}$	λ	Conductivité thermique, $W.m^{-1}.K^{-1}$
ΔH	Enthalpie totale de cristallisation, $J.kg^{-1}$	ρ	Masse volumique, $kg.m^{-3}$
K	Fonction cinétique de T, s		
n	Exposant d'Avrami	<i>Principaux indices</i>	
t	Temps, s	a	amorphe
RTC	Résistance thermique de contact, $K.m^2.W^{-1}$	sc	semi-cristallin
T	Température, K		

1. Introduction

L'essor du marché des matières plastiques ces dernières années a été accompagné du développement de nombreux procédés de plasturgie mettant en jeu des phénomènes thermiques complexes. C'est le cas du rotomoulage qui est un procédé utilisé pour fabriquer de grandes pièces creuses en matière plastique sans ligne de soudure, telles que les kayaks, les réservoirs, les grandes poubelles, etc. [1]. Au cours de ce procédé, un polymère thermoplastique, sous forme de poudre, est introduit dans la cavité moulante. Celle-ci est animée d'une rotation bi-axiale et introduite dans un four permettant la fusion du polymère. L'écoulement du polymère fondu est assuré par gravité, les vitesses de rotation du moule étant faibles. Lorsque la poudre est totalement fondue, le moule est retiré du four et est refroidi généralement par air et/ou eau.

Le chauffage et le refroidissement ayant lieu pour chaque pièce, la longueur du temps de cycle est un problème fondamental pour l'industrie du rotomoulage. C'est pourquoi, à partir des années 1970, des études ont été réalisées pour modéliser les échanges thermiques afin d'optimiser le temps de cycle et d'améliorer le contrôle du procédé [2-6]. Dans le cas de

polymères semi-cristallins, la modélisation précise de la phase de refroidissement implique la description de la cinétique de cristallisation, de l'évolution des propriétés thermiques due à cette cristallisation, mais également de la dépendance potentielle des conditions aux limites par rapport au phénomène de cristallisation et notamment la création d'une résistance thermique de contact entre le polymère et la paroi du moule [7].

2. Système expérimental

Une machine de laboratoire va-et-vient Rotoline® a été utilisée. Le four de la machine est chauffé électriquement, avec une puissance installée de 20 kW. La rotation du moule est assurée par deux bras perpendiculaires qui possèdent des vitesses de rotation indépendantes. Le refroidissement est assuré par deux ventilateurs situés au sol, à l'extérieur du four. Le moule, en aluminium, possède une forme parallélépipédique de 6mm d'épaisseur. La pièce ainsi réalisée est une boîte creuse de dimensions 250x250x100 mm³ et de 3mm d'épaisseur.

Le matériau utilisé pour cette étude est un polypropylène commercial de la société Borealis. Les vitesses de rotation sont ont été réglées à 5tr/min pour l'axe principal et 4tr/min pour l'axe secondaire. La chauffe à 215°C dure 80 minutes afin d'assurer une fusion complète du matériau et d'atteindre des conditions isothermes. Le refroidissement du moule toujours en rotation dure 80 minutes. Ces paramètres de mise en œuvre, inhabituels dans l'industrie, sont imposés ici par les limites d'utilisation du capteur de flux.

Le moule est instrumenté (Figure 1) par 5 thermocouples de type K (0,1mm de diamètre) et par un capteur de flux Captec. Il s'agit d'un capteur timbre de 30x30mm² et de 0,4mm d'épaisseur, fixé sur la paroi externe du moule. Le premier thermocouple ($T_{\text{ext_moule}}$) est positionné à côté du capteur de flux. Le deuxième thermocouple ($T_{\text{int_moule}}$) est placé sur la paroi interne du moule. Le troisième ($T_{\text{air_interne}}$) est situé au centre de la cavité et mesure une température représentative de celle de l'air. Le quatrième thermocouple ($T_{\text{polymère}}$) est fixé à 1,5mm de la paroi interne du moule et a pour fonction de mesurer la température du polymère. Le dernier thermocouple (T_{ambient}) est placé à l'extérieur du moule pour mesurer la température de l'air ambiant, c'est à dire soit l'air du four (en phase de chauffage) soit l'air extérieur (en phase de refroidissement).

La rotation du moule ne permettant pas de relier directement les capteurs au système d'acquisition, deux systèmes de communication sans fil ont été utilisés. Le système Datapaq® est utilisé pour enregistrer et transmettre, en temps réel, les températures issues des différents thermocouples. Le système MCE® est utilisé pour transmettre la mesure de flux. Pendant le cycle de rotomoulage, les deux émetteurs sont placés dans un caisson thermiquement isolé et positionné sur la surface extérieure du moule. Les deux récepteurs sont reliés à un PC.

3. Caractérisation du matériau

3.1. Propriétés thermiques du matériau

Pour modéliser les échanges thermiques avec un polymère semi-cristallin, il est nécessaire de prendre en compte la dépendance de ses propriétés thermophysiques avec la température et le taux de cristallisation massique α [8]. Une loi de mélange est utilisée pour modéliser l'évolution de ces grandeurs :

$$Cp(\alpha, T) = \alpha Cp_{sc}(T) + (1 - \alpha) Cp_a(T) \quad (1)$$

$$\rho(\alpha, T) = \alpha \rho_{sc}(T) + (1 - \alpha) \rho_a(T) \quad (2)$$

$$\lambda(\alpha, T) = \alpha\lambda_{sc} + (1 - \alpha)\lambda_a \quad (3)$$

Les valeurs des différentes grandeurs sont rassemblées dans le Tableau 1.

C_p $J.kg^{-1}.K^{-1}$	V $m^3.kg^{-1}$	λ $W.m^{-1}.K^{-1}$
$C_{p_a} = 2188 + 2.5 \times T$	$V_a = 1.138.10^{-3} + 6.773.10^{-7} \times T$	$\lambda_a = 0.18 W.m^{-1}.K^{-1}$
$C_{p_{sc}} = 1645 + 7.11 \times T$	$V_{sc} = 1.077.10^{-3} + 4.265.10^{-7} \times T$	$\lambda_{sc} = 0.26 W.m^{-1}.K^{-1}$

Tableau 1 : Propriétés du polymère à l'état amorphe et semi-cristallin

3.2. La cinétique de cristallisation

Le modèle de Nakamura [9] a été choisi car il permet de décrire la cristallisation pour une histoire thermique quelconque :

$$\frac{\partial \alpha}{\partial t} = n \cdot K_{Nakamura}(T) \cdot (1 - \alpha) \cdot [-\ln(1 - \alpha)]^{\frac{n-1}{n}} \quad (4)$$

Les paramètres inconnus sont n, l'exposant d'Avrami et la fonction $K_{Nakamura}$. n est donné par le modèle d'Avrami, qui ne permet que de décrire des évolutions isothermes :

$$\alpha(t) = 1 - \exp(-K_{Avrami}(T) \cdot t^n) \quad (5)$$

Pour estimer n, plusieurs cristallisations isothermes ont été menées à différentes températures avec une DSC Pyris de Perkin Elmer (Figure 2). En traçant $\log[-\ln(1 - \alpha(t))]$ en fonction de $\log(t)$ pour chaque cristallisation isotherme, des courbes parallèles sont obtenues (Figure 3). Ces courbes peuvent être facilement interpolées par des droites dont la pente fournit l'exposant d'Avrami n. La valeur de n obtenue est proche de 3. L'ordonnée à l'origine donne la valeur du $\log(K_{Avrami})$ en fonction de chaque température. En outre, en considérant que la température est constante dans l'équation 4, une relation simple peut être trouvée entre K_{Avrami} et $K_{Nakamura}$ (Eq 6)

$$K_{Nakamura} = K_{Avrami}^{1/n} \quad (6)$$

Pour déterminer $K_{Nakamura}$, plusieurs expériences ont été menées sur la DSC, pour des vitesses de refroidissement comprises entre 5 et 20K.min⁻¹. Pour chaque température, α et $\frac{\partial \alpha}{\partial t}$ sont déterminés à partir des thermogrammes DSC, par intégration des aires partielles. $K_{Nakamura}$ peut alors être représenté en fonction de la température (Figure 4). L'équation 6 indique que les valeurs obtenues en isotherme peuvent être ajoutées à la représentation. La Figure 4 montre que les valeurs déterminées par les deux protocoles (isothermes et à vitesses de refroidissement constantes) se recoupent. $K_{Nakamura}$ est alors déterminé par interpolation de ce réseau de points par un polynôme de degré 3.

L'enthalpie totale de cristallisation (ΔH) a également été déterminée à partir des mesures DSC. Une valeur de 90J.g⁻¹ a été trouvée pour l'ensemble des mesures.

4. Etudes des échanges thermiques pendant le procédé de rotomoulage

4.1. Phase de chauffage

Les températures enregistrées par les thermocouples sont présentées par la Figure 5. $T_{polymère}$ enregistre des fluctuations variant entre T_{int_moule} et $T_{air_interne}$. Avant la fusion le

polymère est sous forme de poudre et est donc entraîné par gravité vers le point le plus bas du moule. Ainsi successivement la poudre couvre et découvre le thermocouple. $T_{\text{polymère}}$ enregistre alternativement la température du polymère puis la température de l'air. La fusion du polymère se déroule entre 900 et 1800s. Les fluctuations observées précédemment disparaissent montrant que l'épaisseur fondue a recouvert le thermocouple. A la fin de la fusion, les températures s'homogénéisent pour tendre vers la température du four.

4.2. Phase de refroidissement

Les courbes de la Figure 6 indiquent qu'avant la cristallisation la vitesse de refroidissement est constante et égale à $10,5\text{K}\cdot\text{min}^{-1}$. La cristallisation est caractérisée par un plateau pour $T_{\text{polymère}}$ qui intervient entre 4830s et 5100s à une température de 130°C . Dans les expériences de DSC, la cristallisation commençait à 127°C pour une vitesse de refroidissement de $10\text{K}\cdot\text{min}^{-1}$. Cependant, $T_{\text{polymère}}$ est placé dans le polymère à 1,5mm de la paroi du moule, il n'enregistre donc pas le début réel de la cristallisation qui intervient, en premier lieu, à la paroi. L'hypothèse de vitesse de refroidissement constante n'est donc plus admissible, la chaleur libérée dans l'échantillon perturbant les transferts thermiques dans l'épaisseur de celui-ci. Après la fin de la cristallisation, la température du polymère tend plus rapidement vers la température du moule. Cette évolution est due à la modification des propriétés thermiques et notamment à l'augmentation de la conductivité thermique à l'état semi-cristallin. A 5100s un changement de pente apparaît. Cette inflexion indique que l'échantillon, à l'état solide, s'est décollé de la paroi du moule et tend vers la température la plus élevée.

La Figure 7 représente l'évolution du flux de chaleur, de la température de surface du moule et de l'air extérieur ambiant, pendant la phase de refroidissement. Les fluctuations observées sur le flux et $T_{\text{ext_moule}}$ correspondent à des oscillations de période constante égale à 55s. Ce temps correspond à la période de rotation totale du moule. Les échanges thermiques sont donc différents selon la position du moule. Le flux de chaleur est plus élevé et la température plus basse lorsque les capteurs passent devant les ventilateurs. Quand le thermocouple passe devant les parties chaudes du système, il détecte par rayonnement et convection une température plus élevée. Une simulation réalisée avec Comsol (V3.2a) a permis de mettre en évidence l'impact de ces fluctuations sur les transferts thermiques dans le moule. Une partie importante du flux incident est transféré dans le plan tangentiel du moule et non pas vers le polymère. Le flux détecté par le capteur n'est donc pas celui échangé réellement avec le polymère ce qui nous empêche d'utiliser cette mesure lors de la modélisation.

5. Résultats numériques et discussion

Les transferts sont 2D dans le moule. Cependant la grande diffusivité thermique de l'aluminium permet de considérer le moule comme étant isotherme à chaque instant. Une simulation (Comsol) confirme ce phénomène. Nous avons donc décidé d'utiliser, comme condition à la limite, la température $T_{\text{int_moule}}$, associée à une résistance thermique de contact (RTC). Cette résistance est supposée uniforme entre le polymère et le moule. Les transferts de chaleur dans l'épaisseur du polymère sont par conséquent unidirectionnels. Le système d'équations qui décrit les transferts thermiques dans le polymère est donné par (7). Dans ce modèle, $\frac{\partial\alpha}{\partial t}$ représente la cinétique de cristallisation décrite par le modèle de Nakamura (4).

La résistance thermique de contact reste un paramètre inconnu qui doit être estimé pour modéliser les transferts thermiques. Sa valeur, considérée constante sur un intervalle, est déterminée par minimisation de l'écart quadratique entre la température mesurée et calculée

de $T_{\text{polymère}}$. Une méthode itérative consistant à faire varier la RTC permet de trouver le minimum de cet écart sur un intervalle de temps donné.

$$\rho C_p \frac{\partial T}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial x} \left(\lambda \frac{\partial T}{\partial x} \right) + \rho \Delta H \frac{\partial \alpha}{\partial t} \quad 0 < x < e$$

$$-\lambda \frac{\partial T}{\partial x} \Big|_{x=0} = \frac{T_{\text{int_moule}} - T_{x=0}}{RTC} ; \quad \frac{\partial T}{\partial x} \Big|_{x=e} = h(T_{x=e} - T_{\text{air_interne}}) \quad t > 0 \quad (7)$$

La détermination de la RTC a été réalisée en exploitant les résultats de deux expériences (Exp1 et Exp2) effectuées dans les mêmes conditions. Les résultats indiquent que la RTC évolue au cours du refroidissement. Elle conserve une valeur constante importante avant la cristallisation ($\sim 7.10^{-3} \text{m}^2 \cdot \text{K} \cdot \text{W}^{-1}$) puis diminue pendant la cristallisation ($\sim 7.10^{-4} \text{m}^2 \cdot \text{K} \cdot \text{W}^{-1}$). Deux phénomènes opposés se produisent. Le premier est l'augmentation de la conductivité thermique du polymère et le second est le retrait dû à la cristallisation. Le retrait tend à diminuer le contact entre le polymère et la paroi du moule rendant plus difficile le transfert thermique alors que l'augmentation de la conductivité thermique tend à améliorer le transfert. L'évolution de la RTC observée dans ces expériences tend à montrer que le deuxième phénomène a une plus grande influence que le premier. Après la cristallisation, aux alentours de 950s, la RTC subit une augmentation soudaine ($\sim 5.10^{-2} \text{m}^2 \cdot \text{K} \cdot \text{W}^{-1}$). Ce point correspond au moment où l'échantillon se décolle de la paroi du moule. La Figure 8 représente l'évolution mesurée et calculée de $T_{\text{polymère}}$ pendant la phase de refroidissement pour les deux expériences. Une bonne concordance est obtenue. L'évolution de la RTC apparaît alors comme un point clé pour simuler les transferts thermiques au cours du rotomoulage. Des études spécifiques sont cependant nécessaires pour mieux caractériser ce paramètre et son influence sur les transferts thermiques dans le procédé.

6. Conclusion

Une analyse des transferts thermiques pendant le procédé de rotomoulage a été réalisée. Les résultats montrent que la cristallisation du matériau peut être modélisée avec précision en couplant les équations de transfert thermique avec un modèle cinétique déterminé par calorimétrie. Un mécanisme cyclique de l'évolution du flux de chaleur sur la surface du moule a été mis en évidence. Celui-ci induit des transferts 2D dans la paroi du moule et rend complexe la modélisation des transferts thermiques. Les résultats soulignent également que la résistance thermique de contact à l'interface polymère/moule ne conserve pas une valeur constante et son évolution conditionne fortement les transferts entre le polymère et le moule.

Références

- [1] R. J. Crawford and J.L. Throne , *Rotational molding technology*, William Andrew Pub., (2002)
- [2] M. A. Rao and J.L. Throne , *Polym. Eng. Sci.*, **12** (1972), 237-264.
- [3] J. L. Throne, *Polym. Eng. Sci.*, **16** (1976), 257.
- [4] D. W. Sun and R.J. Crawford, *Polym. Eng. Sci.*, **33** (1993), 132.
- [5] . J. Nugent, R.J. Crawford and L. Xu, *Advances in Polymer Technology*, **11** (1992), 181-191.
- [6] A. Tcharkhtchi, E. Pérot and F. Chinesta, *Intern. Polym. Proc.*, **19** (2004), 296-302.
- [7] R. Le Goff, G. Poutot, D. Delaunay, R. Fulchiron and E. Koscher, *International Journal of Heat and Mass Transfer*, **48** (2005), 5417-5430.
- [8] R. Fulchiron, E. Koscher, G. Poutot, D. Delaunay and G. Régnier, *J. Macromol. Sci. Phys.*, **40** (2001), 297-314.
- [9] R. M. Patel and J.E. Sprueill, *Polym. Eng. Sci.*, **31** (1991), 730-738.

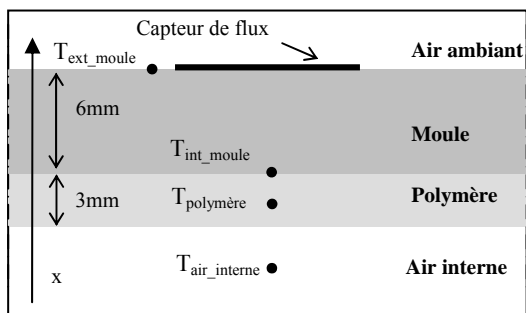


Figure 1 : Schéma de la vue en coupe du moule instrumenté

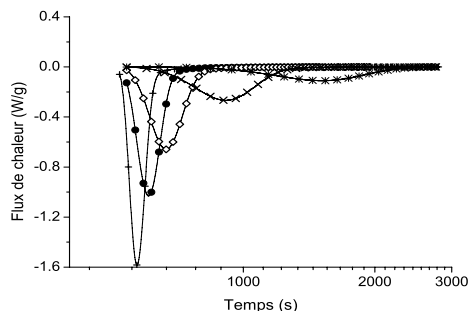


Figure 2 : Cristallisations isothermes DSC (+ 128°C, x 130°C, ◇ 132°C, * 136°C, • 140°C)

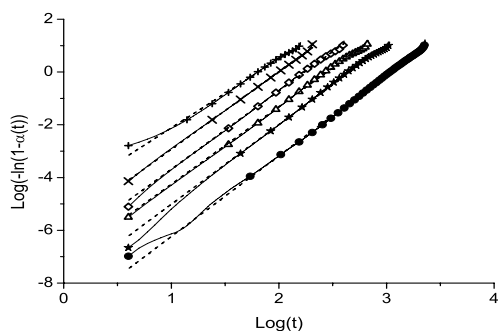


Figure 3 : Détermination de n pour les cristallisations isothermes (+ 128°C, x 130°C, ◇ 132°C, Δ 134°C, * 136°C, • 140°C, — interpolation)

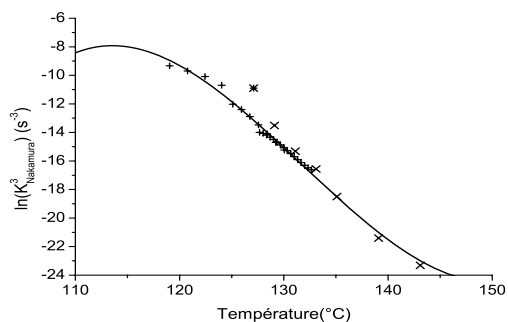


Figure 4 : Valeurs expérimentales (x isothermes, + vitesses de refroidissement constante) et modèle (—) pour $K_{nakamura}$

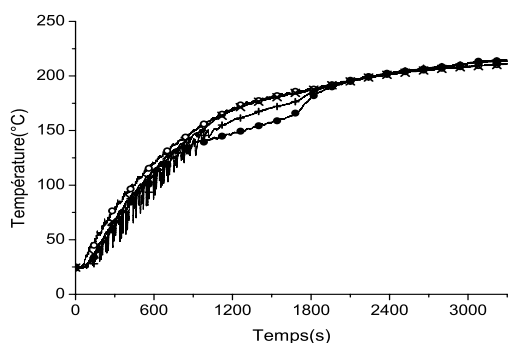


Figure 5 : Températures pendant la phase de chauffage (○ T_{ext_moule} , x T_{int_moule} , + $T_{polymère}$, • $T_{air_interne}$)

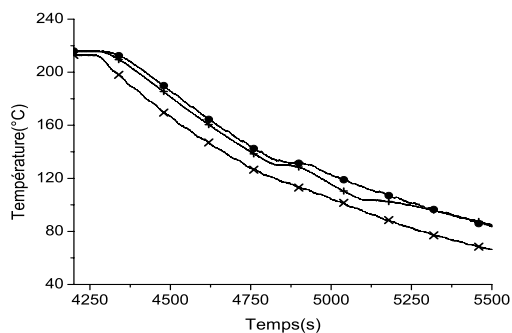


Figure 6 : Températures pendant le refroidissement (x T_{int_moule} , + $T_{polymère}$, • $T_{air_interne}$)

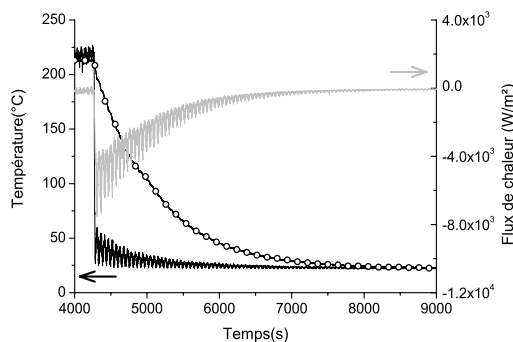


Figure 7 : Températures (— $T_{ambiante}$, ○ T_{ext_moule}) et du flux (—) pendant le refroidissement

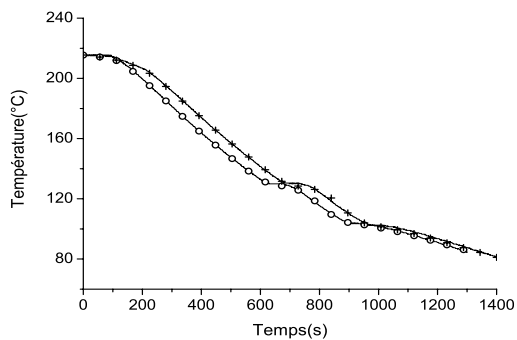


Figure 8 : Température du polymère : modèle (+ Exp01, ○ Exp02) et expériences (—)