

①9 RÉPUBLIQUE FRANÇAISE
INSTITUT NATIONAL
DE LA PROPRIÉTÉ INDUSTRIELLE
PARIS

①1 N° de publication : **2 634 413**
(à n'utiliser que pour les
commandes de reproduction)

②1 N° d'enregistrement national : **88 09889**

⑤1 Int Cl⁵ : B 29 C 33/52, 33/54, 33/76; B 29 C 45/14,
45/44; B 29 D 22/00.

①2 **DEMANDE DE BREVET D'INVENTION**

A1

②2 Date de dépôt : 21 juillet 1988.

③0 Priorité :

④3 Date de la mise à disposition du public de la
demande : BOPi « Brevets » n° 4 du 26 janvier 1990.

⑥0 Références à d'autres documents nationaux appa-
rentés :

⑦1 Demandeur(s) : Société dite : **AUTOMOBILES PEUGEOT**
et Société dite : **AUTOMOBILES CITROEN. — FR.**

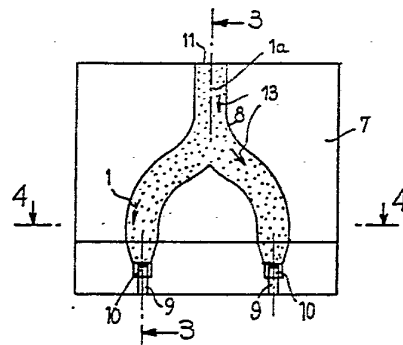
⑦2 Inventeur(s) : Jean-Jacques Olivier ; Dominique Peth.

⑦3 Titulaire(s) :

⑦4 Mandataire(s) : Cabinet Lavoix.

⑤4 Procédé de réalisation par moulage d'une pièce creuse en matière plastique.

⑤7 Le noyau 1 est réalisé par solidification au moins partielle dans une empreinte de moulage 8, à une température inférieure à 0 °C, d'une matière contenant de l'eau. De préférence, le noyau est constitué par un mélange de sable et d'eau. Après le démoulage de la pièce en matière plastique, le noyau est éliminé après un réchauffage provoquant la fusion de la glace formée entre les grains de sable. L'invention s'applique en particulier au moulage à basse ou à haute pression de pièces creuses comportant des contre-dépouilles utilisées dans le domaine de la construction automobile.



FR 2 634 413 - A1

D

L'invention concerne un procédé de réalisation par moulage d'une pièce creuse en matière plastique, en particulier d'une pièce présentant une contre-dépouille.

5 On utilise, dans certains domaines de l'industrie, en particulier dans l'industrie automobile, des pièces creuses en matière plastique présentant des contre-dépouilles, telles que des tubulures, des durites, des raccords pour circuit d'air, des collecteurs
10 d'admission ou des répartiteurs d'air.

Ces pièces présentent l'avantage de pouvoir être réalisées en grande série, par un procédé facilement automatisable et avec un faible prix de revient.

15 Les difficultés de mise en oeuvre du procédé de moulage de pièces creuses à contre-dépouilles proviennent de la nécessité de prévoir des noyaux qui puissent être extraits de la pièce moulée ou éliminés, à la fin du processus de moulage.

20 On a proposé d'utiliser des noyaux expansibles ou démontables qui permettent de réaliser des formes creuses complexes comportant des contre-dépouilles. Ces procédés s'avèrent cependant très coûteux en ce qui concerne l'outillage à mettre en oeuvre et ne peuvent être adaptés, de manière économique, au
25 moulage en grande série.

On a également proposé des techniques de noyautage mettant en oeuvre un noyau qui peut être éliminé, par exemple par fusion ou fluidification, à la fin du moulage.

30 On a par exemple proposé d'utiliser des noyaux fusibles en un alliage d'étain et de bismuth dont le point de fusion peut être compris entre 70 et 140°C.

On a également proposé, dans une demande de brevet Français 87-05225 déposée le 13 Avril 1987 par les Sociétés AUTOMOBILES PEUGEOT et AUTOMOBILES CITROEN, d'utiliser un noyau constitué par du sable
5 lié par un silicate tel que le silicate de sodium. Le noyau est durci par cristallisation du silicate en présence de gaz carbonique. A la fin de l'opération de moulage, le noyau est éliminé par exemple par dissolution.

10 Ces procédés comportant une élimination du noyau par fusion ou fluidification sont cependant très coûteux et d'une mise en oeuvre difficile. En effet, dans les deux cas, la destruction totale et l'élimination du noyau restent une opération délicate.

15 Le but de l'invention est donc de proposer un procédé de réalisation par moulage d'une pièce creuse en matière plastique, en particulier d'une pièce présentant une contre-dépouille, consistant à réaliser un noyau correspondant à la partie creuse de la
20 pièce, à enduire la surface externe du noyau avec un produit d'isolation, à réaliser un surmoulage de la pièce en matière plastique sur le noyau, à démouler la pièce et à éliminer le noyau, ce procédé étant d'une mise en oeuvre simple et relativement peu coûteuse.

25 Dans ce but, le noyau est réalisé par solidification dans une empreinte de moulage, à une température inférieure à 0°C, d'une matière constituée au moins partiellement par un liquide tel que l'eau ayant un point de solidification voisin de 0°C et que le
30 noyau est éliminé par fluidification de la matière le constituant, par réchauffage au moins partiel du noyau, au-dessus de la température de solidification du liquide.

Afin de bien faire comprendre l'invention, on va maintenant décrire, à titre d'exemples non limitatifs, en se référant aux figures jointes en annexe, plusieurs modes de réalisation du procédé suivant l'invention, dans le cas de la fabrication par moulage d'un collecteur d'admission d'air d'un véhicule automobile.

La figure 1 est une vue en perspective d'un noyau dont la forme correspond à la forme de la partie creuse du collecteur à réaliser.

Les figures 2, 3 et 4 sont relatives à un premier mode de réalisation d'un noyau permettant de mettre en oeuvre le procédé suivant l'invention.

La figure 2 est une vue en coupe suivant 2-2 de la figure 4 d'une boîte à noyau pour la mise en oeuvre du procédé suivant l'invention.

La figure 3 est une vue suivant 3-3 de la figure 2.

La figure 4 est une vue suivant 4-4 de la figure 2.

Les figures 5, 6 et 7 sont relatives à un second mode de réalisation d'un noyau pour la mise en oeuvre du procédé suivant l'invention.

La figure 5 est une vue en coupe suivant 5-5 de la figure 7, d'une boîte à noyau, pendant la réalisation du noyau permettant la mise en oeuvre du procédé de l'invention.

La figure 6 est une vue suivant 6-6 de la figure 5.

La figure 7 est une vue suivant 7-7 de la figure 5.

Les figures 8, 9 et 10 sont relatives à un troisième mode de réalisation d'un noyau permettant la mise en oeuvre du procédé de l'invention.

La figure 8 est une vue en coupe suivant 8-8 de la figure 10 d'une boîte à noyau, pendant la réalisation d'un noyau pour la mise en oeuvre du procédé suivant l'invention.

5 La figure 9 est une vue en coupe suivant 9-9 de la figure 8.

La figure 10 est une vue en coupe suivant 10-10 de la figure 8.

10 Sur la figure 1, on voit un noyau désigné de manière générale par le repère 1 dont la forme correspond à la partie creuse d'un collecteur d'air pour véhicule automobile. Le noyau 1 comporte une branche principale 1a, deux branches secondaires divergentes 1b, 1c et deux parties d'extrémité 2 et 3 destinées à
15 constituer les embouts du collecteur.

Selon le procédé de l'invention, le noyau représenté sur la figure 1 peut être obtenu par solidification à basse température d'une matière renfermant un liquide tel que de l'eau.

20 De manière préférentielle, le noyau sera constitué par un mélange de sable et d'eau, en proportion déterminée, solidifié dans l'empreinte de moulage d'une boîte à noyau.

25 Suivant la granulométrie du sable utilisé, la composition du mélange et la température de solidification et de durcissement, le noyau pourra présenter des caractéristiques et en particulier une résistance à la compression, à la flexion et au cisaillement, adaptées à son utilisation dans le procédé de moulage.

30 En effet, il est possible d'utiliser pour réaliser la pièce creuse en matière plastique par moulage, des polymères transformables soit sous basse soit sous haute pression. Dans l'un et l'autre cas, les caractéristiques mécaniques nécessaires du noyau pourront être largement différentes.

Par exemple, les polymères tels que le polyuréthanne, le polyisocyanurate ou autres polymères similaires peuvent être moulés à basse pression, ces produits étant généralement désignés sous l'appellation produits RIM (Reaction Injection Moulding). A l'inverse, les matières thermoplastiques telles que le polyamide, le polypropylène ou les élastomères thermoplastiques doivent être moulés à haute pression.

Les caractéristiques mécaniques à obtenir pour le noyau solidifié seront donc définies en fonction des matières plastiques utilisées et du procédé de moulage. Ces caractéristiques mécaniques peuvent être contrôlées sur des éprouvettes.

Les propriétés mécaniques d'un noyau congelé constitué par du sable et de l'eau dépendent principalement :

- de la surface spécifique du sable, cette surface spécifique pouvant varier entre 300 et 6000 cm²/g,
 - de la teneur en eau du mélange, cette teneur en eau pouvant varier entre 13 et 40 %,
 - de la teneur et de la nature de l'agent de couplage entre le sable et l'eau ou agent de mouillage. Cette teneur peut varier entre 0, 1 et 4 %, suivant la nature de l'agent de couplage qui peut être par exemple du glucose ou un produit à base de glycol. L'agent de couplage permet de diminuer la teneur en eau du mélange et donc de réduire le nombre de frigories nécessaire pour la congélation, à résistance égale du noyau,
 - et de la température et du temps de congélation.
- Cette température et ce temps de congélation dépendent de la technique de refroidissement utilisée et de l'épaisseur du noyau à refroidir, ainsi que des performances souhaitées pour ce noyau.

Généralement, la température du fluide de refroidissement insufflé pour réaliser la congélation, ce fluide étant généralement de l'air, pourra varier entre - 60 et - 140°C ; le temps de refroidissement pour des noyaux tels que ceux nécessaires pour le mou-
5 lage de collecteurs d'air est alors généralement compris entre 5 et 25 secondes.

Les caractéristiques mécaniques de la matière congelée seront mesurées sur éprouvette. Pour dé-
10 terminer la résistance à la flexion, on utilisera par exemple des éprouvettes en sable congelé de dimensions 23 x 23 x 170 mm.

Cette résistance à la flexion augmente avec la surface spécifique du sable, c'est-à-dire que plus
15 le sable est fin, plus la résistance à la flexion est grande. Celle-ci augmente aussi avec la teneur en eau du mélange. En effet, plus le sable est fin, plus il faut d'eau pour le mouiller pour réaliser la liaison des grains entre eux.

On va décrire ci-dessous des procédés de ré-
20 alisation de noyaux ainsi que les dispositifs correspondants, d'abord dans le cas du moulage d'une pièce en matière plastique sous basse pression et ensuite dans le cas du moulage d'une pièce en matière plasti-
25 que sous haute pression.

1°- Moulage d'une pièce telle qu'un collec-
teur d'air par un procédé sous basse pression :

Le collecteur d'air pourra être réalisé en une matière plastique RIM telle que le polyuréthane.

30 Dans un premier temps, on réalise un noyau congelé par refroidissement d'un mélange de sable et d'eau dans l'empreinte d'une boîte à noyau.

Comme représenté sur les figures 2 à 4, on peut utiliser une boîte à noyau conventionnelle com-

prenant une plaque de base 5 et deux demi-moules 6 et 7 délimitant entre eux une empreinte 8 ayant la forme du noyau 1 représenté sur la figure 1.

5 Les deux parties du moule 6 et 7 sont usinées en creux pour délimiter, lorsqu'elles sont mises en coïncidence, les empreintes de moulage de la branche principale 1a et des branches secondaires 1b et 1c du collecteur.

10 Les parties 2 et 3 du noyau correspondant aux embouts sont délimitées à l'intérieur de la plaque de base 5, les cavités correspondantes étant prolongées par des ouvertures 9 débouchant à la partie inférieure de la plaque 5. Dans les ouvertures 9 sont placées des filtres 10 destinés à laisser passer un fluide de refroidissement du noyau tout en retenant le mélange fluide dans l'empreinte de la boîte à noyau.

15 On va maintenant décrire un mode de réalisation d'un noyau solidifié en utilisant le dispositif représenté sur les figures 2 à 4.

20 On prépare dans un premier temps un mélange de sable dont la surface spécifique est comprise entre 300 et 600 cm^2/g avec de l'eau dans une proportion pondérale comprise entre 13 et 18 %, sans adjonction de produit mouillant.

25 Le mélange est injecté dans l'empreinte 8 de la boîte à noyau, par son orifice supérieur d'injection 11, en utilisant une machine à tirer de type classique. Le mélange présente une fluidité suffisante pour que le remplissage sous pression de l'empreinte 30 entre son ouverture d'entrée 11 et les filtres 10 soit obtenu sans difficulté et avec un excellent coefficient de remplissage.

Le refroidissement et la solidification du noyau sont effectués en insufflant de l'air à basse

température par l'orifice 11 (flèche 12). L'air à basse température circule entre les grains du mélange remplissant l'empreinte entre l'ouverture 11 et les filtres 10 (flèche 13).

5 Pendant sa circulation en contact avec le mélange, l'air à basse température réalise de manière très rapide la solidification de ce mélange, par transformation de l'eau du mélange en glace, la glace formée assurant la liaison entre les grains de sable.
10 Le front de solidification 14 progresse le long des branches 1a puis 1b et 1c jusqu'au moment où le noyau est entièrement solidifié.

 On utilise de l'air à une température assez sensiblement inférieure à 0°C, par exemple - 100°C,
15 l'air étant insufflé sous pression par l'orifice 11.

 La solidification complète du noyau peut être obtenue en un temps relativement court, généralement inférieur à 25 secondes.

20 Le noyau 1 est ensuite démoulé par séparation des deux parties 6 et 7 du moule.

 On enduit alors la surface externe du noyau avec un produit d'isolation qui peut être appliqué par pulvérisation. Ce produit isolant constitue une barrière lorsque le noyau vient en contact avec la matière
25 plastique avec laquelle on réalise le collecteur ; ce produit facilite également la séparation du noyau et du collecteur, dans l'étape finale du procédé.

 Il est nécessaire d'utiliser un produit ne renfermant pas d'alcool et on choisira généralement
30 pour enduire le noyau un produit tel que le polytétrafluoréthylène, l'huile de lin ou le silicone.

 Le noyau solidifié et enduit est introduit dans un moule pour la réalisation du collecteur dans lequel on a préalablement déposé un agent de démoulage

qui peut être identique au produit utilisé pour enduire le noyau ou qui peut être différent.

Le moule est refermé et la matière plastique est injectée à l'intérieur du moule.

5 L'injection de la matière plastique peut être effectuée suivant la technique et en utilisant des dispositifs tels que décrits dans la demande de brevet 87-05225.

10 Lorsque le durcissement de la matière plastique est suffisant, on réalise le démoulage du collecteur à l'intérieur duquel se trouve toujours le noyau 1.

15 Le dénoyautage de la pièce est réalisé en laissant le sable se réchauffer, ce qui entraîne la fusion de la glace et la décohésion des grains de sable.

Le mélange de sable et d'eau peut alors être vidé par l'orifice d'entrée de la branche 1a du collecteur.

20 Il est possible d'accélérer le réchauffement du noyau en faisant passer l'ensemble du collecteur moulé et de son noyau dans un four à haute fréquence.

Le sable est ensuite récupéré pour réaliser un nouveau noyau.

25 Sur les figures 5, 6 et 7, on a représenté une boîte à noyau d'une réalisation particulière permettant un refroidissement du noyau par sa surface externe.

30 La boîte à noyau comporte une base 15, des parois latérales 16, 16', 17, 17' et une paroi supérieure 19.

L'empreinte 18 est délimitée à l'intérieur de la boîte à noyau par un moule à paroi poreuse 20 dont le volume intérieur permet le moulage du noyau 21.

5 La partie supérieure du moule 20 débouche dans la paroi supérieure 19 de la boîte à noyau, au niveau de l'ouverture d'injection 22.

10 Les deux branches secondaires 21b et 21c du noyau 21 sont formées à l'intérieur de deux branches correspondantes du moule 20 qui sont maintenues par une pièce d'écartement et de support 25 et qui débouchent à travers la plaque 15 par l'intermédiaire d'orifices dans lesquels sont placés des filtres 23 et 24.

15 Les parois 16 et 16' sont traversées par des tubulures d'injection d'air 26 et 26'.

20 Comme précédemment, un mélange de sable et d'eau est injecté par la machine à tirer dans l'empreinte du moule 20, par son orifice supérieur 22, jusqu'au remplissage complet de l'empreinte.

25 De l'air à basse température est ensuite injecté dans la boîte à noyau par les tubulures 26 et 26'. L'air à basse température traverse la paroi poreuse du moule 20 puis circule vers le haut et vers le bas, à l'intérieur du mélange remplissant l'empreinte dont l'air froid assure la solidification (flèche 27).

30 Le mélange de sable et d'eau utilisé pour la réalisation du noyau présente sensiblement la même composition que le mélange utilisé pour la réalisation du noyau 1 dans le dispositif représenté aux figures 2 à 4.

Suivant le débit d'air, le temps de congélation du noyau sera compris entre 5 et 15 secondes.

Ce mode de réalisation présente l'avantage de permettre de constituer une carapace solidifiée à la périphérie du noyau, le centre du noyau restant liquide. En effet, le refroidissement est effectué depuis la surface externe du noyau et en limitant la quantité d'air refroidi insufflée, on peut obtenir une solidification seulement partielle du noyau.

Ce refroidissement limité suivant les performances souhaitées pour le noyau permet de congeler celui-ci dans une proportion juste nécessaire. On obtient ainsi une optimisation de la consommation des frigories.

Il est bien évident que le noyau obtenu grâce au dispositif représenté sur les figures 5 à 7 peut être démoulé, enduit et utilisé pour le moulage du collecteur, de la façon décrite plus haut.

2° - Moulage sous haute pression :

Cette technique de moulage doit être utilisée en particulier pour la réalisation de pièces en matière thermoplastique ou élastomère thermoplastique.

Il est alors nécessaire de réaliser un noyau pour injection à haute pression qui présente de très bonnes caractéristiques mécaniques.

On utilise un sable fin dont la surface spécifique est comprise entre 700 et 6000 cm^2/g . La proportion d'eau dans le mélange pour la réalisation du noyau doit alors être comprise entre 30 et 40 %. La densité de ce mélange est alors telle qu'il n'est plus possible d'obtenir la congélation du noyau par soufflage d'air.

Il faut alors utiliser une boîte à noyau en aluminium équipée d'un système de refroidissement à l'azote liquide, par exemple tel que représenté sur les figures 8, 9 et 10.

La boîte à noyau comporte une plaque de base 35 et deux demi-boîtiers 36, 36' fermés latéralement par des parois 37, 37'.

5 Les deux demi-boîtiers 36, 36' délimitent, entre leurs parois internes qui sont appliquées l'une contre l'autre suivant le plan de joint, une empreinte 38 dans laquelle sera formé le noyau 31 comportant une branche principale 31a et deux branches secondaires 31b et 31c.

10 Les parois 37 et 37' sont traversées par des ajutages 39 et 39' assurant respectivement l'insufflation d'un fluide à très basse température dans la boîte à noyau et la récupération du fluide circulant en contact avec la paroi interne des boîtiers 36 36' délimitant l'empreinte 38 (flèches 41, 41').

15 Le fluide de refroidissement circule dans un circuit fermé 40 comportant un dispositif de refroidissement 42.

20 Des canaux de circulation sont prévus à l'intérieur des parois en vis-à-vis des boîtiers 36 et 36' pour permettre le passage du fluide de refroidissement d'un boîtier à l'autre.

25 Comme précédemment, le remplissage de l'empreinte de moulage 38 dans la boîte à noyau est effectué par l'ouverture supérieure 32 correspondant à l'extrémité de la branche principale 31a du noyau 31.

30 Le fluide à très basse température venant en contact avec les parois en aluminium de la boîte à noyau provoque par conduction et convection le refroidissement et la solidification du noyau 31.

Ce refroidissement sans circulation de fluide à basse température à l'intérieur du noyau permet d'obtenir une solidification du noyau 31 en un temps compris entre une et deux minutes.

Le noyau est ensuite démoulé, enduit et utilisé comme précédemment.

Il est à remarquer que les caractéristiques mécaniques élevées du noyau 31 permettent de l'utiliser dans un procédé de moulage à haute pression, pour la réalisation de pièces en matière thermoplastique.

Le procédé suivant l'invention est très simple à mettre en oeuvre et peu coûteux et permet d'éviter toute pollution de l'environnement.

Ce procédé permet d'ajuster les caractéristiques mécaniques du noyau en fonction de la technique d'injection retenue pour le moulage de la pièce en matière plastique.

L'opération de récupération du sable est très simple et très rapide, puisqu'il suffit de provoquer un réchauffement suffisant du noyau pour obtenir sa décohésion et une fluidisation suffisante du mélange de sable et d'eau pour assurer l'élimination du noyau. Le sable peut être très facilement réutilisé, éventuellement après un traitement simple et rapide.

L'invention ne se limite pas aux modes de réalisation qui ont été décrits.

C'est ainsi qu'on peut réaliser des noyaux à partir de mélanges renfermant des proportions de sable et d'eau différentes de celles qui ont été indiquées plus haut.

En particulier, il est possible d'utiliser des mélanges renfermant de très faibles proportions de sable ou même d'utiliser de l'eau sans addition de sable ou d'autres corps solides. Dans ce cas, le noyau est constitué par de la glace et présente une surface externe extrêmement lisse.

Il est possible d'envisager l'utilisation de particules solides différentes de grains de sable, en mélange avec une certaine proportion d'eau pour constituer le noyau.

5 Il est possible également d'envisager l'utilisation de liquides, soit seuls, soit en mélange avec des particules solides, différents de l'eau pure et dont le point de solidification s'écarte quelque peu de 0°C.

10 Cependant, pour éviter une trop grande consommation de frigorifiques, ces liquides devront avoir un point de congélation à une température qui ne soit pas trop basse et de préférence à une température supérieure à - 10°C. De plus, ce point de solidification
15 doit être assez nettement inférieur aux températures ambiantes habituelles.

Il est bien évident que l'invention s'applique à l'obtention de toute pièce creuse en matière plastique présentant ou non des contre-dépouilles.

REVENDEICATIONS

1.- Procédé de réalisation par moulage d'une pièce creuse en matière plastique, en particulier d'une pièce présentant une contre-dépouille, consistant à réaliser un noyau (1, 21, 31) correspondant à la partie creuse de la pièce, à enduire la surface externe du noyau avec un produit d'isolation, à réaliser un surmoulage de la pièce en matière plastique sur le noyau, à démouler la pièce et à éliminer le noyau, caractérisé par le fait que le noyau (1, 21, 31) est réalisé par solidification dans une empreinte de moulage (8, 18, 38) à une température inférieure à 0°C, d'une matière constituée au moins partiellement par un liquide tel que l'eau ayant un point de solidification voisin de 0°C et que le noyau (1, 21, 31) est éliminé par fluidification de la matière le constituant par réchauffage au moins partiel du noyau au-dessus de la température de solidification du liquide.

2.- Procédé suivant la revendication 1, caractérisé par le fait que le noyau est réalisé à partir d'un mélange de sable et d'eau.

3.- Procédé suivant la revendication 2, caractérisé par le fait que le sable présente une surface spécifique comprise entre 300 et 6000 cm²/g et que la proportion d'eau dans le mélange est comprise entre 13 et 40 %.

4.- Procédé suivant la revendication 3, caractérisé par le fait que le mélange comporte, en plus du sable et de l'eau, un agent mouillant dans une proportion pondérale de 0,1 à 4 %.

5.- Procédé suivant l'une quelconque des revendications 3 et 4, dans le cas où le moulage de la matière plastique est effectué à basse pression, caractérisé par le fait que le sable présente une sur-

face spécifique comprise entre 300 et 600 cm^2/g et que la proportion de l'eau dans le mélange est comprise entre 13 et 18 %.

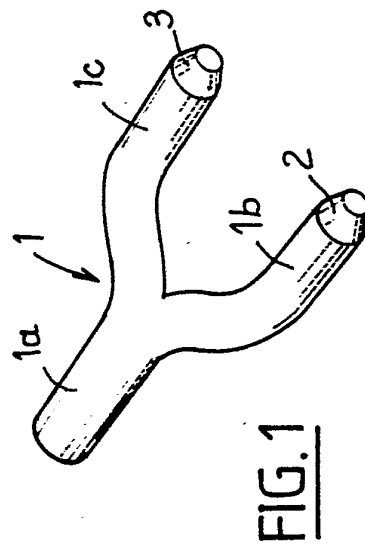
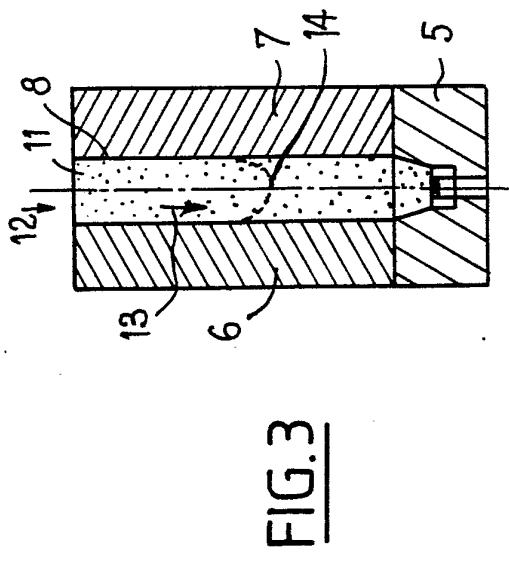
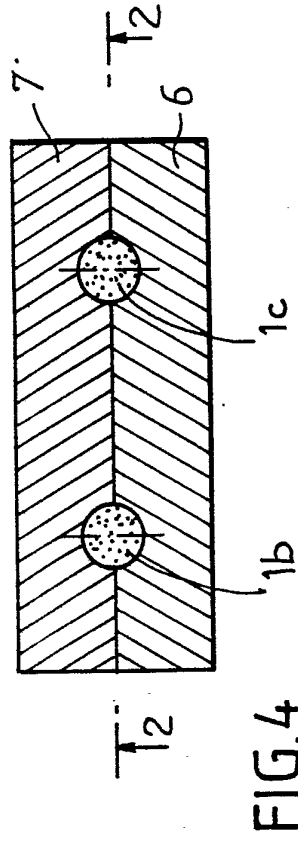
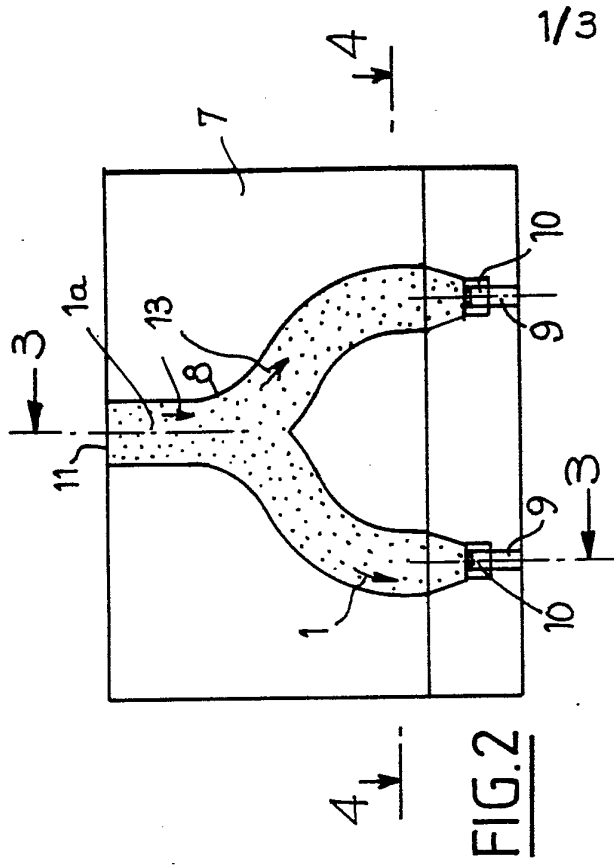
5 6.- Procédé suivant la revendication 5, caractérisé par le fait que la solidification du noyau (1, 21, 31) est obtenue par refroidissement par circulation d'un gaz à basse température en contact avec le mélange.

10 7.- Procédé suivant la revendication 6, caractérisé par le fait que le gaz à basse température est constitué par de l'air à une température comprise entre - 60 et - 140°C.

15 8.- Procédé suivant l'une quelconque des revendications 3 et 4, dans le cas du moulage d'une matière plastique à haute pression, caractérisé par le fait que le sable présente une surface spécifique comprise entre 700 et 6000 cm^2/g et que la proportion d'eau dans le mélange est comprise entre 30 et 40 %.

20 9.- Procédé suivant la revendication 8, caractérisé par le fait que la solidification du noyau (31) est obtenue par refroidissement, à l'aide d'un fluide à basse température, par conduction à travers une paroi métallique et par convection.

25 10.- Procédé suivant la revendication 9, caractérisé par le fait que le fluide à basse température est de l'azote liquide.



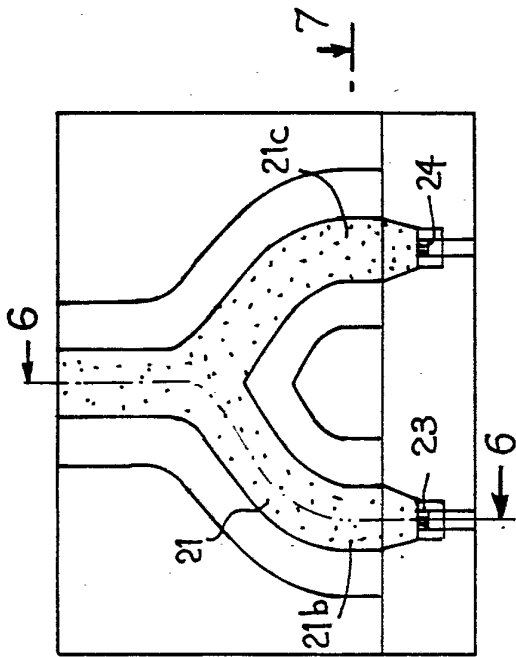


FIG. 5

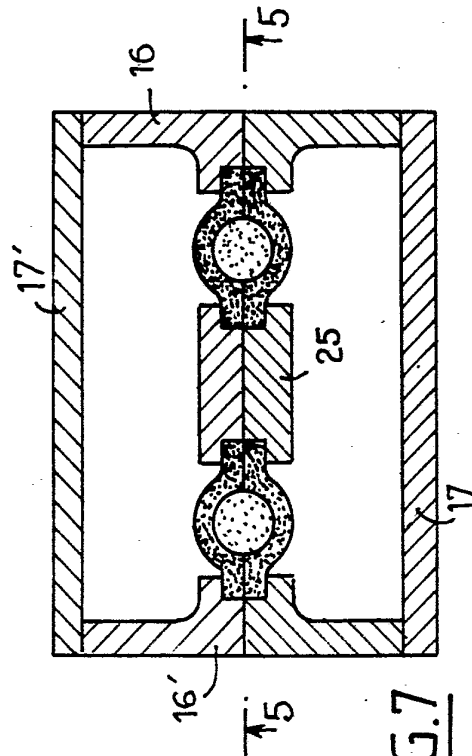


FIG. 7

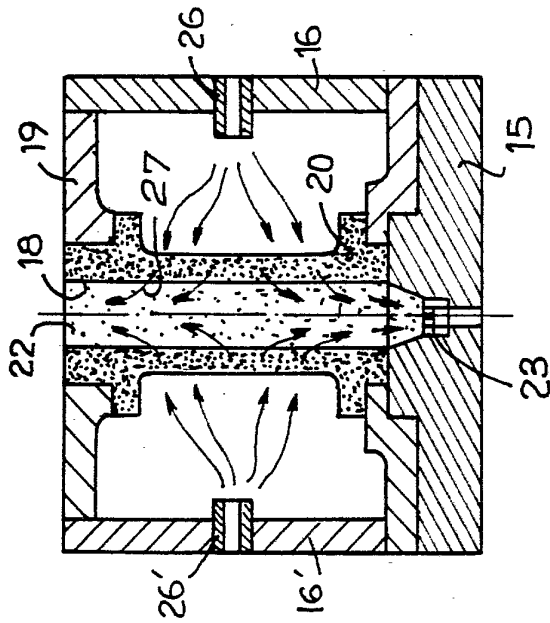


FIG. 6

FIG. 8

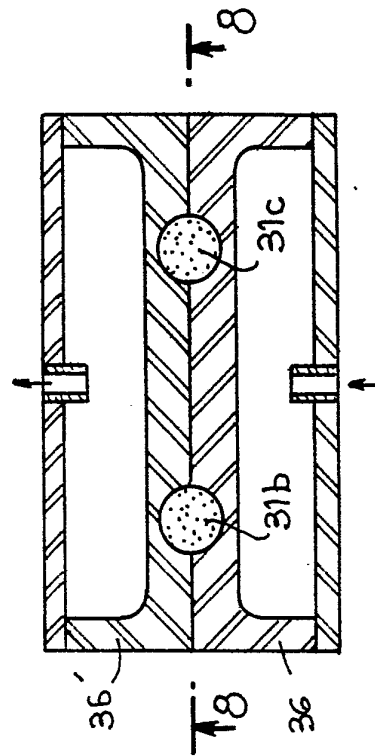
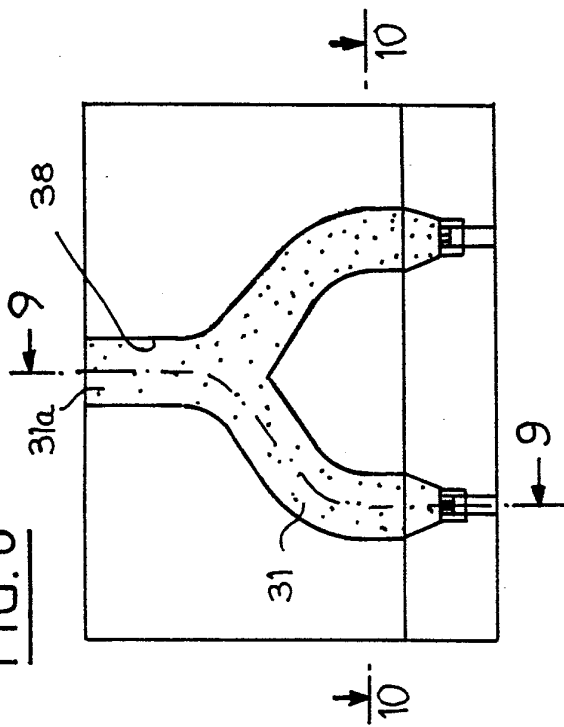


FIG. 10

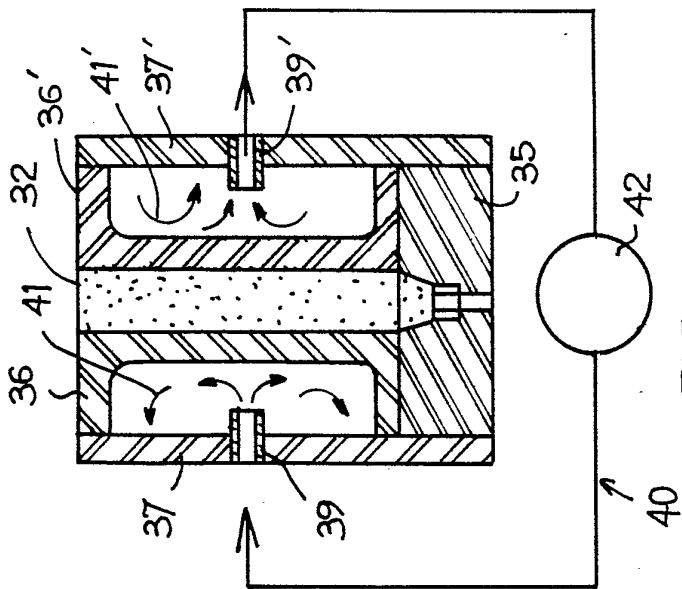


FIG. 9