



Titre: Modélisation des éléments de mélange en extrusion par la méthode
Title: des éléments frontières

Auteur: Ibrahim Busuladzic
Author:

Date: 2004

Type: Mémoire ou thèse / Dissertation or Thesis

Référence: Busuladzic, I. (2004). Modélisation des éléments de mélange en extrusion par la
Citation: méthode des éléments frontières [Thèse de doctorat, École Polytechnique de
Montréal]. PolyPublie. <https://publications.polymtl.ca/7312/>

 **Document en libre accès dans PolyPublie**
Open Access document in PolyPublie

URL de PolyPublie: <https://publications.polymtl.ca/7312/>
PolyPublie URL:

**Directeurs de
recherche:** Pierre Lafleur, & Fabrice Schmidt
Advisors:

Programme: Non spécifié
Program:

UNIVERSITÉ DE MONTRÉAL

MODÉLISATION DES ÉLÉMENTS DE MÉLANGE EN EXTRUSION
PAR LA MÉTHODE DES ÉLÉMENTS FRONTIÈRES

IBRAHIM BUSULADZIC
DÉPARTEMENT DE GÉNIE CHIMIQUE
ÉCOLE POLYTECHNIQUE DE MONTRÉAL

THÈSE PRÉSENTÉE EN VUE DE L'OBTENTION
DU DIPLÔME DE PHILOSOPHIAE DOCTOR (Ph.D.)
(GÉNIE CHIMIQUE)

JANVIER 2004



National Library
of Canada

Bibliothèque nationale
du Canada

Acquisitions and
Bibliographic Services

Acquisitions et
services bibliographiques

395 Wellington Street
Ottawa ON K1A 0N4
Canada

395, rue Wellington
Ottawa ON K1A 0N4
Canada

Your file Votre référence

ISBN: 0-612-90816-X

Our file Notre référence

ISBN: 0-612-90816-X

The author has granted a non-exclusive licence allowing the National Library of Canada to reproduce, loan, distribute or sell copies of this thesis in microform, paper or electronic formats.

L'auteur a accordé une licence non exclusive permettant à la Bibliothèque nationale du Canada de reproduire, prêter, distribuer ou vendre des copies de cette thèse sous la forme de microfiche/film, de reproduction sur papier ou sur format électronique.

The author retains ownership of the copyright in this thesis. Neither the thesis nor substantial extracts from it may be printed or otherwise reproduced without the author's permission.

L'auteur conserve la propriété du droit d'auteur qui protège cette thèse. Ni la thèse ni des extraits substantiels de celle-ci ne doivent être imprimés ou autrement reproduits sans son autorisation.

In compliance with the Canadian Privacy Act some supporting forms may have been removed from this dissertation.

Conformément à la loi canadienne sur la protection de la vie privée, quelques formulaires secondaires ont été enlevés de ce manuscrit.

While these forms may be included in the document page count, their removal does not represent any loss of content from the dissertation.

Bien que ces formulaires aient inclus dans la pagination, il n'y aura aucun contenu manquant.

Canada

UNIVERSITÉ DE MONTRÉAL

ÉCOLE POLYTECHNIQUE DE MONTRÉAL

Cette thèse intitulée :

MODÉLISATION DES ÉLÉMENTS DE MÉLANGE EN EXTRUSION
PAR LA MÉTHODE DES ÉLÉMENTS FRONTIÈRES

présentée par : BUSULADŽIĆ Ibrahim

en vue de l'obtention du diplôme de : Philosophiae Doctor

a été dûment acceptée par le jury d'examen constitué de :

M. BERTRAND François, Ph.D., président

M. VERGNES Bruno, Dr., membre

M. LAFLEUR Pierre G., Ph.D., membre et directeur de recherche

M. SCHMIDT Fabrice, Dr., membre et codirecteur de recherche

M. CHEVALIER Luc, Dr., membre

REMERCIEMENTS

Ce travail de recherche s'est déroulé dans deux centres de recherches : le Centre de Recherche Appliquée sur les Polymères (CRASP) à l'Ecole polytechnique de Montréal et le Centre de Recherche Outillages Matériaux et Procédés (CROMeP) à l'Ecole des Mines d'Albi Carmaux, sous la supervision de deux directeurs de thèse: prof Pierre Lafleur et prof Fabrice Schmidt. Dans ce contexte, je tiens beaucoup à remercier mes directeurs de thèse qui m'ont choisi, fait confiance, dirigé et soutenu durant cette thèse. Je voudrais remercier à Christophe Levallant (directeur du CROMeP au début de ma thèse) de m'avoir accepté dans son laboratoire sur les conseils de Fabrice Schmidt. Je remercie également Bruno Vergnes, François Bertrand, Luc Chevalier et Stéphan Puissant d'avoir accepté d'être membres de mon jury de thèse.

Dans le cadre de la bidiplomation, cette thèse s'est déroulée pendant un peu plus de quatre ans, j'ai passé deux ans au Canada et un peu plus de deux ans en France. Durant cette période, j'ai eu l'occasion de côtoyer plusieurs personnes sans qui ce travail de recherche n'aurait pu être mené. Je remercie à Tomas Lozano Ramirez, Claude Thibodeau de m'avoir aidé à réaliser l'étude expérimentale de ce projet. Egalement, je remercie Eliette Mathey avec qui j'ai pu discuter de mes problèmes en éléments frontières. Je remercie aussi mes collègues de bureau et amis du CRASP et du CROMeP (Eric, Karen, Cédric, Christophe, Gabriel, Abdelhak, Sylvia, Alexandre, Vincent, Farid, Luc, Frédéric, Shokoh, Shan, Anwar, Pierre, Daniel, Vinh...) à qui je souhaite beaucoup de courage et de réussite par la suite.

Finalement, je termine cet avant propos en remerciant mes parents qui m'ont supporté et encouragé durant cette thèse ainsi que durant toute ma vie.

RÉSUMÉ

Afin d'obtenir des nouveaux matériaux plastiques, le mélange des polymères est un processus couramment utilisé. L'extrusion monovis est un procédé de mise en forme des matières plastiques qui permet d'obtenir un mélange efficace en modifiant la vis d'extrusion. Pour cela, la tête de mélange de type Maddock est utilisée, afin d'étudier son effet sur la qualité du mélange.

Le mélange de polymères est caractérisé par deux mécanismes : le mélange dispersif et le mélange distributif. Dans cette étude, le mélange dispersif est surtout étudié. La partie expérimentale de cette thèse étudie la dispersion de la phase secondaire dans la matrice du polymère. En premier, la caractérisation de la dispersion de différents types d'agglomérats dans le PVC a été réalisée. Puis, d'autres essais ont permis de caractériser la dispersion des charges de CaCO_3 dans la matrice de polypropylène (PP).

Parallèlement à cette étude expérimentale, un modèle numérique a été développé pour caractériser le mélange des polymères. Pour cette approche numérique, la Méthode des Eléments Frontières (BEM) a été choisie. Dans le cas de simulations pour des écoulements newtoniens, la Méthode des Eléments Frontières est caractérisée par la simplicité du maillage et le calcul aux points internes, ce qui rend la méthode très avantageuse par rapport aux autres méthodes numériques.

Etant donné que les écoulements des polymères sont non-newtoniens (ayant donc un comportement non-linéaire), les simulations par la Méthode des Eléments Frontières doivent pouvoir le prendre en compte. La méthode classique BEM ne permet pas de résoudre ce type de problèmes, ceci nous a amené à utiliser certaines techniques afin d'adapter la résolution par BEM. Pour cela la technique de multi domaine combinée

avec la méthode de la réciprocité duale (DRM) est utilisée. Un logiciel « POLY_BEM » a été développé dans le cadre de cette thèse.

Des simulations numériques en comportement newtonien et non-newtonien respectivement en 3D et en 2D ont permis de calculer la dispersion à l'aide de l'indice d'écoulement (flow number). Afin de valider ces résultats, une confrontation qualitative a été réalisée montrant notamment l'effet bénéfique de la tête de mélange. L'écoulement dans certaines zones de la tête de mélange (l'entrée et la sortie du passage entre canaux) exerce un type d'écoulement élongationnel favorisant la dispersion plus que dans d'autres zones.

ABSTRACT

In order to obtain new plastic materials, polymer mixing is a very commonly used process. Polymer processing using single-screw extrusion makes it possible by modifying the screw of extrusion. For this reason, the Maddock mixing head is used in order to study its effect on quality of the mixing.

The mixing of polymers is characterized by two mechanisms: the dispersive mixing and the distributive mixing. In this work, the dispersive mixing is especially studied. The experimental part of this project studies the dispersion of the secondary phase in the polymer matrix. First, the dispersion characterization of various types of agglomerates in PVC is carried out. Second test has consisted in characterizing the dispersion of the CaCO_3 loads in the polypropylene (PP) matrix.

Beside the experimental study, the numerical methods can be used to provide more detailed information on the mixing flows. In this study the Boundary Element Method (BEM) is used. In the case of the Newtonian simulations, BEM is characterized by easy meshing and calculation at the internal points and for these reasons is very advantageous compared to other numerical methods.

Whereas, the polymer flows exhibit non-Newtonians behaviors and consequently non-linear constitutive equation, the BEM simulations have to take that into account. The classical BEM enables to solve this type of problems. Specific techniques have to be developed in order to adapt the BEM resolution. For that, the technique of multi domain decomposition together with the Dual Reciprocity Method (DRM) has been developed. Software called "POLY_BEM" has been developed based upon BEM. Newtonian and

non-Newtonian computations have been performed in 3D and 2D respectively. The dispersion performances of mixing devices are calculated using the flow number definition.

In order to validate these results, preliminary comparisons have been carried out showing the beneficial effect of the mixing head.

The polymer flow in specific zones of the mixing head (the entry and the exit of the narrow gap between channels) exhibits elongational flows improving dispersion more than in other zones.

TABLE DES MATIÈRES

REMERCIEMENTS	iv
RÉSUMÉ.....	v
ABSTRACT	vii
TABLE DES MATIÈRES	ix
LISTE DES FIGURES	xiv
LISTE DES TABLEAUX.....	xix
LISTE DES ANNEXES.....	xx
LISTE DES SYMBOLES.....	xxi
Introduction	1
CHAPITRE I.....	6
1 Rappel sur les polymères et les mélanges de polymères.....	6
1.1 Préambule.....	6
1.2 Rappel sur les polymères.....	6
1.2.1 Comportement rhéologique des polymères fondus.....	9
1.2.2 Comportement des fluides newtoniens	10
1.2.3 Comportement non-Newtonien.....	11
1.2.3.1 Loi de puissance.....	12
1.2.3.2 Modèle de Carreau Yasuda	13
1.3 Mélange des polymères.....	14
1.3.1 Notion de mélange	14
1.3.2 Mélanges distributifs et dispersifs.....	16

1.3.2.1	Mélange distributif.....	17
1.3.2.2	Mélange dispersif.....	18
1.3.3	Forces engendrées par le type d'écoulement.....	19
1.3.4	Mélange des liquides immiscibles	22
1.3.5	Classification des mélangeurs.....	24
1.3.6	Mélanges en extrusion.....	24
1.3.7	Éléments de mélange.....	30
1.3.7.1	Mélangeurs distributifs	30
1.3.7.2	Mélangeurs dispersifs	31
1.3.8	Caractérisation de la qualité d'un mélange.....	33
1.3.9	Méthodes de la caractérisation de la dispersion.....	36
1.3.9.1	Méthodes directes.....	37
1.3.9.2	Méthodes indirectes	43
1.3.10	Analyse d'image	44
1.3.11	Indices de dispersion.....	46
1.3.12	Fraction surfacique d'agglomérats.....	46
1.3.13	Fraction relative d'agglomérats.....	47
1.3.14	Les divers diamètres moyens	47
1.4	Evaluation numérique de la dispersion.....	48
1.4.1	Nombre d'écoulement.....	48
1.4.2	Distribution des déformations.....	49
1.4.3	Fonction de distribution de temps de séjour	49
1.5	Conclusion partielle	51
CHAPITRE II		53
2	Étude expérimentale	53
2.1	Préambule	53

2.2	Quantification de la dispersion des bandes de PVC extrudées	54
2.3	Dispersion des charges de CaCO₃ dans la matrice de polypropylène (PP)..	57
2.3.1	Matériaux utilisés	58
2.3.2	Préparation des films	59
2.3.3	Mesure de la dispersion.....	61
2.3.4	Calcul de la dispersion par la méthode de Suetsugu	66
2.3.5	Préparation des échantillons.....	67
2.3.6	Observation des échantillons	68
2.3.7	Calcul de l'indice de Suetsugu	68
2.4	Conclusion partielle	70
	CHAPITRE III.....	72
3	Méthode des éléments frontières (BEM).....	72
3.1	Préambule	72
3.2	Application des méthodes numériques en extrusion.....	72
3.3	Base de la méthode des éléments frontières.....	74
3.4	Comparaison par rapport aux éléments finis.....	75
3.5	Formulation intégrale aux frontières	77
3.6	Discrétisation et formulation éléments frontières	83
3.6.1	Maillage 2D.....	84
3.6.2	Éléments linéaires discontinus 1D	85
3.6.3	Éléments quadratiques 2D.....	87
3.7	Assemblage et résolution des systèmes.....	88
3.8	Technique de sous-domaines.....	92

3.9	Intégration numérique.....	95
3.9.1	Intégration non singulière	95
3.9.2	Intégration singulière	96
3.10	Mouvement du corps rigide	99
3.11	Calcul aux points internes	99
3.11.1	Calcul des vitesses aux points internes	99
3.11.2	Calcul des contraintes aux points internes	100
3.11.3	Calcul des gradients de vitesses aux points internes.....	101
3.12	Evaluation des intégrales du domaine.....	101
3.12.1	Méthode de l'intégration de cellules (Cell Integration)	104
3.12.2	La méthode de Monte-Carlo	107
3.12.3	Multi domaine DRM.....	108
3.12.3.1	Principes de la méthode DRM	109
3.12.3.2	Le vecteur $\vec{\alpha}$	113
3.12.3.3	La solution aux points internes	113
3.12.3.4	Différentes expressions de f.....	114
3.12.3.5	Les solutions particulières des champs d'écoulement auxiliaire	115
3.12.3.6	Application de la méthode de Newton Raphson aux équations éléments frontière	118
3.12.3.7	Algorithme de MDRM.....	120
3.13	Conclusion partielle	122
	CHAPITRE IV	123
4	Résultats de la simulation numérique	123
4.1	Préambule	123
4.2	Résultats de la simulation 3D par la méthode des éléments frontières	123

4.3	Simulation numérique pour une vis simple	129
4.3.1	Performances dispersives d'une vis.....	134
4.4	Modélisation d'une tête de mélange par BEM	135
4.5	Résultats préliminaires du calcul Non-Newtonien en 2D	145
4.5.1	Simulation non-newtonienne 2D pour la tête de mélange	149
4.6	Conclusion partielle	154
	Conclusion générale	156
	Perspectives.....	157
	RÉFÉRENCES.....	159
	ANNEXES.....	164

LISTE DES FIGURES

Figure 1-1: Schéma représentatif d'un monomère de polyéthylène [1].....	7
Figure 1-2: Schéma d'une molécule de polyéthylène [1]	7
Figure 1-3: Ecoulement dans un tube; Représentation schématique pour un fluide Newtonien (a) et pour un fluide non-Newtonien (b). [7]	11
Figure 1-4 : Schéma représentatif de la viscosité en fonction du taux de cisaillement (échelle logarithmique), [6].....	13
Figure 1-5: Mécanismes de mélange distributif et dispersif représentés schématiquement	16
Figure 1-6: Mélange distributif ; aléatoire (à gauche), ordonné (à droite) [10].....	18
Figure 1-7: Ecoulement de cisaillement.....	20
Figure 1-8 : Écoulement élongationnel	21
Figure 1-9: Désintégration du fil de la phase secondaire puis dispersion de celle-ci	22
Figure 1-10: Nombre capillaire en fonction de la viscosité, pour les écoulements de cisaillement et d'élongation [17].....	23
Figure 1-11: Extrudeuse monovis	25
Figure 1-12: Schéma en coupe longitudinale du principe de l'extrudeuse monovis	25
Figure 1-13: Schéma de la coupe longitudinale d'un canal de la vis d'extrusion avec paramètres principaux et les vitesses entraînant la matière fondue	26
Figure 1-14: Profils des vitesses dans la coupe longitudinale d'un canal dans les zones: a) de plastification et b) de pompage	27
Figure 1-15: Extrudeuse monovis dotée d'une tête de mélange.....	29
Figure 1-16: Différents mélangeurs distributifs: a), b), d), e) mélangeurs à ergots c) mélangeur à filets interrompus, f) mélangeur Saxton, g),h) mélangeurs à rhomboïdes, i) mélangeur à roulements, j) mélangeur ananas, [18]	30
Figure 1-17: Les éléments de mélange dispersifs: a) anneau d'étranglement, b) "Maillefer flight", c) mélangeur Maddock, d) mélangeur Troester, e) mélangeur à barrière, f) mélangeur Dray, g) mélangeur Dumlage, e) mélangeur Egan [18]	32

Figure 1-18: Tête de mélange “Spiral Maddock”	33
Figure 1-19: Schéma explicatif de deux échantillons avec l’uniformité brute identique (le même nombre de points noirs) et texture différente (à gauche aléatoire, à droite au moins une distance de 10 diamètres de points entre deux points) .[10].....	34
Figure 1-20: Illustration de l’échelle et de l’intensité de ségrégation [10]	35
Figure 1-21: Photo d'un microscope optique et l'image de l'échantillon pris par ce microscope	37
Figure 1-22: Photos obtenues par la microscopie optique des échantillons polis [22]	38
Figure 1-23: Photo MEB d'un échantillon de PP chargé avec 5% en poids de CaCO_3 [25]	40
Figure 1-24: Fonction cumulée de distribution de temps de séjour dans différents systèmes	50
Figure 2-1: Schéma des grains et particules de PVC	55
Figure 2-2: Schéma du montage de l’extrusion des bandes de PVC	56
Figure 2-3: Diagramme de densité des pics en fonction de la vitesse de rotation et de la configuration de la vis.....	57
Figure 2-4: Extrusion-soufflage de films	60
Figure 2-5: Image du film gonflé, pris par la caméra montée sur le microscope avec un grossissement X10 (en haut). La règle en bas de l'image mesure 2mm.....	62
Figure 2-6: Indice de dispersion en fonction de la vitesse de rotation, de la pression et de la configuration de la vis.	65
Figure 2-7: Echantillon de PP/ CaCO_3 obtenu par polissage	66
Figure 3-1: Représentation graphique de la solution fondamentale.....	80
Figure 3-2: Schéma du maillage de domaine par la méthode des éléments frontières	81
Figure 3-3: Eléments 1D; a) linéaires continus, b) linéaires discontinus et c) quadratiques	84
Figure 3-4: Maillage multi domaine 2D; a) éléments discontinus, b) éléments continus	85
Figure 3-5: Eléments discontinus 1D	86
Figure 3-6: Fonctions d'interpolations dans le domaine de référence.....	87

Figure 3-7: Élément quadratique incomplet de la frontière du maillage volumique: a) repère physique, b) repère de référence	87
Figure 3-8: Schéma de maillage simplifié avec des conditions limites imposées	90
Figure 3-9: Exemple de maillage et de décomposition	92
Figure 3-10: Maillage multi-domaine ayant deux sous domaines avec une interface commune et 4 éléments par domaine.	94
Figure 3-11: Exemple de l'assemblage de la matrice H, a) avant et b) après l'applications des conditions de continuité et d'équilibre des contraintes	94
Figure 3-12: Transformation de Telles dans l'espace de référence pour une singularité située en (-1,-1)	98
Figure 3-13: Discrétisation du domaine utilisant les cellules en 2D.....	105
Figure 3-14: Schéma itératif pour le calcul non-newtonien par la méthode de l'Intégration des Cellules (d'après Davis [39])	106
Figure 3-15: Différents types de nœuds dans l'approximation DRM (cas d'un sous domaine).....	112
Figure 3-16: Algorithme de la résolution des problèmes non-newtoniens par MDRM	121
Figure 4-1: Maillage avec les conditions limites appliquées	124
Figure 4-2: Résultats analytique et numériques de la vitesse V_z [mm/s] suivant la position radiale	126
Figure 4-3: Résultats analytiques et numériques de la vitesse V_θ [mm/s] suivant la position radiale	126
Figure 4-4: Vitesse V_θ [mm/s] tracée pour les points internes situés sur le plan z-y	127
Figure 4-5: Graphique isovaleurs de l'erreur de vitesse en [%] dans le plan z-y	128
Figure 4-6: Suivi des particules lors de l'écoulement de la figure 1	129
Figure 4-7: Géométrie d'une partie de la vis	130
Figure 4-8: Maillage de deux filets de la vis.....	131
Figure 4-9: Distribution de la pression le long du canal	131
Figure 4-10: Le suivi des particules	132
Figure 4-11: Profil de vitesse transversale dans un chenal de la zone de pompage.....	133

Figure 4-12: Fonction cumulée de temps de séjour	134
Figure 4-13: Distribution du "flow number" le long du canal	135
Figure 4-14: Tête de mélange "Spiral Maddock" avec sa coupe transversale	136
Figure 4-15: Géométrie modélisée de la tête de mélange; a) géométrie complète, b) une paire de canaux.....	137
Figure 4-16: Conditions limites imposées	137
Figure 4-17: Vecteurs vitesses dans la tête de mélange.....	139
Figure 4-18: Agrandissement de la géométrie en représentant les vecteurs vitesses.....	140
Figure 4-19: Distribution du nombre d'écoulement (avec un débit de 210g/min et une vitesse de rotation de 15rpm)	141
Figure 4-20: Distribution du nombre d'écoulement (avec un débit de 210g/min et une vitesse de rotation de 20rpm)	142
Figure 4-21: Distribution du nombre d'écoulement (avec un débit de 210g/min et une vitesse de rotation de 25rpm)	142
Figure 4-22: Distribution du nombre d'écoulement (avec un débit de 400g/min et une vitesse de rotation de 15rpm)	143
Figure 4-23: Distribution du nombre d'écoulement (avec un débit de 400g/min et une vitesse de rotation de 20rpm)	143
Figure 4-24: Distribution du nombre d'écoulement (avec un débit de 400g/min et une vitesse de rotation de 25rpm)	144
Figure 4-25: Maillage de l'écoulement de Couette	145
Figure 4-26: Comparaison des vitesses obtenues par le calcul numérique et par la solution analytique	146
Figure 4-27: Graphiques des isovaleurs des vitesses en fonction de différents indice de pseudoplasticité	147
Figure 4-28: Maillage d'un sous-domaine avec les points internes	149
Figure 4-29: Maillage de la coupe transversale de la tête de mélange par MDRM.....	150
Figure 4-30: Conditions aux limites imposées.....	151
Figure 4-31: Vecteurs vitesses aux points internes (non-newtonien $n=0.5$).....	151

Figure 4-32: Isovaleurs de l'intensité des vitesses (newtonien $n=1$) [mm/s]	152
Figure 4-33: Isovaleurs de l'intensité des vitesses (non-newtonien $n=0.5$) [mm/s]	152
Figure 4-34: Distribution du nombre d'écoulement (newtonien)	153
Figure 4-35: Distribution du nombre d'écoulement (non-newtonien)	153

LISTE DES TABLEAUX

Tableau 2-1: Formulation du PVC utilisé	55
Tableau 2-2: La taille typique des particules de CaCO_3	58
Tableau 2-3: Composition chimique du CaCO_3	59
Tableau 2-4: Pressions en fonction des vitesses de rotation et position du by-pass	60
Tableau 2-5: Résultats de la fraction volumique.....	69
Tableau 2-6: Résultats de l'indice de dispersion de Suetsugu.....	69
Tableau 3-1: Tableau comparatif entre BEM et FEM	76

LISTE DES ANNEXES

ANNEXE 1	164
Modèle de Carreau Yasuda.....	165
Solutions fondamentales.....	166
ANNEXE 3.....	167
Les fonctions d'interpolation.....	167
ANNEXE 4.....	168
Intégration non singulière en 3D	168
ANNEXE 5.....	169
Les solutions particulières des champs d'écoulement auxiliaire	169

LISTE DES SYMBOLES

A_s - surface totale observée

b_{ji} - terme source

c_n - coefficients de la fonction d'approximation ayant les valeurs 1 ou 0

C - constante de Lifshitz

Ca - nombre capillaire

Ca_{crit} - nombre capillaire critique

c^I - constante=1 si le point de collocation est un point interne, =0.5 si le point de collocation est un point de la frontière

D_f - diamètre intérieur de cylindre

D_v - diamètre de la vis au-dessus des filets

d_i^I - composante i du résultat de l'intégration des termes sources au point de collocation I

d_i - diamètre d'agglomérats i

D_{ikj} - tenseur d'ordre 3 utilisé dans le calcul des tenseurs de contraintes aux points internes

DI_{ijk} - tenseur d'ordre 3 utilisés dans le calcul des gradients de vitesses aux points internes

e - épaisseur du filet

e_i - vecteur unitaire suivant l'axe i

F_{el} - force électrostatique produite par la friction entre les particules

F_{max} - force maximale agissant sur les particules (agglomérats)

F_{vdW} - force de Van der Waals

f - fonction d'approximation

g_i - $i^{\text{ème}}$ composante de la force de gravité

G^{ij} - matrice d'assemblage des solutions fondamentales des vitesses

H^{ij} - matrice d'assemblage des solutions fondamentales des tractions

J^T - transformation de Telles du Jacobien

k - adresse du nœud d'un élément

l - longueur d'un élément

L_v pas de la vis

m - consistance du liquide (loi de puissance)

m_i - masse de l'échantillon i

N - nombre de points de Monte-Carlo

N_k - fonction d'interpolation associée au nœud k

n - indice de pseudoplasticité

n_i - nombre d'agglomérats de diamètre d_i

n_j - $j^{\text{ème}}$ composante de la normale

N_{belt} - nombre d'éléments

N_{el} - nombre de nœuds par élément

n_{pg} - nombre des points de Gauss

p - pression hydrostatique

$\hat{P}^p$ - solution particulière de la pression hydrostatique

Q - matrice de passage des éléments continus aux éléments discontinus

R - rayon

r_1, r_2 - rayon des particules

r - distance euclidienne entre les points de collocation et les points de location

r_p - distance euclidienne entre les points de location et les points d'approximation

(DRM)

r_j - dérivée de la distance r par rapport à l'axe i

$\partial r / \partial n$ - dérivée de la distance r par rapport à la normale

S_i - surface de l'échantillon i

S_{ijk} - tenseur d'ordre 3 utilisés dans le calcul des tenseurs de contraintes aux points internes

SI_{ijk} - tenseur d'ordre 3 utilisés dans le calcul des gradients de vitesses aux points internes

St - nombre de Stokes

u_i - vecteur vitesse suivant l'axe i

u_i^I - vecteur vitesse au point de source I suivant axe i

u^{ij} - vecteur vitesse sur l'interface ij

$u_{ij}^* - j^{ème}$ composante du vecteur de vitesse de la solution fondamentale résultant d'un chargement unitaire suivant la direction i

$\hat{u}$ - solution particulière de la vitesse

$\hat{u}_{jk}^p$ - composante de la solution particulière de la vitesse

$\partial u_{ij}^* / \partial x_k$ - dérivée de la vitesse de la solution fondamentale

$T_i - i^{ème}$ composante de la traction

$T_{ij}^* - j^{ème}$ composante du vecteur de traction de la solution fondamentale résultant d'un chargement unitaire suivant la direction i

T^{ij} - vecteur de traction sur l'interface ij

$\hat{T}$ - solution particulière de la traction

$\hat{T}_{jk}^p$ - composante de la solution particulière de la traction

V - volume de la géométrie dans la méthode de Monte-Carlo

W - largeur du canal d'écoulement

W_f - masse par unité de surface de film

x_i - coordonnée suivant l'axe i

Z_a - distance de séparation physique d'absorption

α_p^i - vecteur défini dans les équations de la méthode DRM

II - second invariant dans le cas de comportement des liquides

ρ - masse volumique

ρ_f - masse volumique du film

$\rho_{agglomerat}$ - masse volumique des agglomérats

$\rho_{mineral}$ - masse volumique du minéral

μ - viscosité Newtonienne

ξ_T - transformés des coordonnées locales ξ dans les transformations de Telles

η_n - coordonnée dans un système de référence

η - viscosité non-newtonienne

$\bar{\eta}$ - coordonnée du point de singularité

η_0 - viscosité à taux de cisaillement nul (viscosité Newtonienne dans la Loi de Carreau)

η_∞ - viscosité constante à très haut taux de cisaillement

ν - coefficient de Poisson

λ - temps caractéristique dans le modèle de Carreau

ε - mesure de la différence absolue de la fonction de densité de probabilité et de la fonction de densité de probabilité idéale

$\dot{\varepsilon}_{ij}$ - composante du tenseur de vitesse de déformation

$\dot{\varepsilon}_{ij}^*$ - composante de la solution fondamentale du tenseur de la vitesse de déformation

$\dot{\gamma}$ - taux de cisaillement

γ_{ij} - composante du tenseur de cisaillement

σ_{ij} - composante ij du tenseur des contraintes de Cauchy

$(\sigma_{ij})_N$ - composante ij du tenseur des contraintes de la composante newtonienne

$(\sigma_{ij})_{NN}$ - composante ij du tenseur des contraintes de la composante non-newtonienne

$\bar{\sigma}_{ij}$ - composante ij de la solution particulière du tenseur des contraintes

τ_{ij} - composante ij du tenseur des contraintes de cisaillement

δ_{ij} - symbole de Kronecker

Φ - matrice contenant les fonctions d'interpolation

ϕ_a - indice de Suetsugu

ϕ_v - fraction volumique de charge dans le film

Δ^i - chargement unitaire appliqué au point 'T' dans la direction du vecteur e_i

ξ - coordonnée dans un système de référence

ψ_p - potentiel auxiliaire

Ω - volume de la géométrie

Γ - surface de la géométrie

Introduction

Cette thèse s'inscrit dans le cadre d'une cotutelle entre l'Ecole Polytechnique de Montréal, l'Ecole des Mines d'Albi Carmaux et l'Ecole des Mines de Paris. Elle s'est déroulée (50/50%) dans le Centre de Recherche Appliqué Sur les Polymères (CRASP) de l'Ecole Polytechnique de Montréal et le Centre de Recherche Outillages Matériaux et Procédés (CROMeP) de l'Ecole des Mines d'Albi. L'intérêt du CRASP de modéliser les procédés de mélange des polymères en extrusion monovis et également l'intérêt du CROMeP de développer un modèle numérique appliqué aux procédés de mise en forme des matières plastiques ont permis cette collaboration.

Le mélange des polymères est un processus indispensable dans l'industrie de mise en forme des matières plastiques afin d'obtenir des produits finaux possédant par exemple de meilleures caractéristiques mécaniques ou des propriétés homogènes. Le contrôle du mélange des polymères permet de maximiser l'efficacité des mélangeurs utilisés. C'est pour cela que le mélange des polymères est un domaine très important de la recherche. Bien que les recherches aient donné de bonnes idées concernant les mécanismes provoquant les mélanges des polymères, le contrôle et la prédiction quantitative d'efficacité du mélange n'a pas encore atteint un niveau très élevé.

Lors d'un procédé de mélange de polymères chargés ou non, deux mécanismes de mélanges sont présents: le mélange distributif et le mélange dispersif. Une dispersion de la phase secondaire puis sa distribution dans la matrice ou dans la phase primaire sont des facteurs très importants afin d'obtenir un mélange uniforme. Pour assurer ces mécanismes de mélanges, des outils spécialement conçus existent, tels que les mélangeurs internes ou les mélangeurs continus (par exemple l'extrudeuse bivio). L'équipement de mise en forme des matières plastiques comme l'extrudeuse monovis est très souvent supposé fournir le mélange désiré bien que cela ne soit pas toujours

possible. Cependant, une extrudeuse peut toujours être modifiée en ajoutant par exemple une tête de mélange afin d'obtenir un mélange optimisé sans autant sacrifier ses performances.

La modélisation de ces procédés peut être réalisée en faisant des études expérimentales ou numériques. Bien que la modélisation expérimentale soit toujours plus utilisée en fournissant des résultats intéressants, elle reste chère et demande un temps de réalisation très long. Très souvent, il est nécessaire de construire des équipements permettant de visualiser des écoulements, par exemple en utilisant des fourreaux transparents en extrusion. La quantification de l'écoulement et du transfert de la chaleur est également une tâche très difficile. En outre, la reproduction des propriétés de mélanges particulières d'un lot à l'autre peut être extrêmement difficile.

La modélisation numérique est utilisée afin d'éviter les inconvénients rencontrés lors de l'étude expérimentale. Elle permet d'obtenir des informations plus détaillées sur le type d'écoulement subi par le polymère fondu. Ce type d'écoulement, que le matériau subit, est un facteur très important pour la forme et l'état final du produit. La simulation numérique, comme outil de conception et d'optimisation permet de simuler un système de mélange (par exemple une tête de mélange) à l'aide d'un modèle numérique, avant de fabriquer son prototype dont le coût est souvent très élevé. La modélisation numérique peut donc être une manière d'obtenir facilement les informations sur les performances du système, de fournir plus de données qui nous aident à mieux quantifier les performances d'un système de mélange. Les bénéfices résultant de cette conception et modélisation des équipements et des processus de mise en forme des matières plastiques sont utilisés dans plusieurs optiques. D'une part le mélange obtenu est meilleur, d'autre part une nouvelle génération d'équipements de mélange peut être développée afin de fournir un processus de mélange efficace, tout en consommant moins d'énergie et en augmentant le débit.

La diversité des comportements d'écoulements représentant les polymères fondus complique la modélisation numérique. La structure moléculaire des polymères est une des raisons fondamentale du comportement non-linéaire lors de l'écoulement. Ce comportement a comme conséquence des propriétés qui dépendent fortement du champ d'écoulement telle la viscosité qui dépend du taux de déformation. Comme la morphologie des mélanges de polymères dépend directement des déformations et des contraintes induites par le champ de cisaillement, le comportement non-linéaire ne peut être négligé.

Mis à part le comportement des matériaux très complexe, la présence des frontières mobiles joue un rôle important sur les performances de calcul des ordinateurs pendant la simulation. Deux types de frontières mobiles sont présentes: les frontières mobiles libres et les frontières mobiles solides. Les frontières mobiles libres sont celles apparaissant par exemple au cours du remplissage des moules, de l'extrusion gonflage etc.. Les frontières mobiles solides sont celles où les cavités qui contiennent le polymère sont en mouvement durant le processus de mise en oeuvre de la matière plastique, par exemple : les malaxeurs dans un mélangeur interne, la vis ou les éléments de mélange tels que la tête de mélange en extrusion. Les espaces très étroits entre les frontières réalisés afin de créer de très forts champs de cisaillement rendent la simulation numérique encore plus complexe à réaliser.

Les méthodes numériques existantes ne sont pas très adaptées pour optimiser complètement les écoulements de polymères dans les sections de mélanges. Les écoulements non-linéaires peuvent être modélisés par des méthodes telle que la méthode des éléments finis ou la méthode des différences finies, nécessitant le maillage du domaine. En présence de surfaces ou frontières mobiles, ces méthodes deviennent encombrantes à mettre en œuvre. Si nous voulons faire le suivi des particules, l'interpolation entre ces différentes géométries va introduire des erreurs. La méthode des éléments frontières étant une méthode qui ne nécessite pas le maillage du domaine peut

être facilement appliquée aux problèmes avec des frontières (surfaces) mobiles ou pour faire le suivi de particules dans un écoulement. Malheureusement, la méthode traditionnelle des éléments frontières n'est applicable qu'aux problèmes linéaires. Une combinaison de ces deux types de méthodes peut être une manière très intéressante d'aborder ce problème par la simulation numérique.

Les travaux réalisés dans cette thèse sont surtout orientés vers l'extrusion monovis mais ils peuvent être appliqués dans d'autres procédés de mélange des polymères. Un logiciel (POLY_BEM_3D) de simulation par éléments frontières 3D développé dans cette thèse est appliqué aux procédés d'extrusion monovis avec pour objectif la modélisation des éléments de mélange dans ce procédé. Ce logiciel est limité aux problèmes d'écoulements de fluides newtoniens. L'autre partie de la modélisation numérique dans cette thèse consiste à adapter la méthode des éléments frontières aux écoulements non-newtoniens. Une version 2D du logiciel est développée en faisant la discrétisation du domaine pour prendre en compte les termes sources.

Dans le Chapitre 1, nous faisons un rappel sur les comportements des polymères et sur les principes de mélanges de polymères. Nous avons aussi présenté l'état de l'art de la caractérisation des mélanges en montrant les différentes méthodes de calcul de la dispersion et en les associant aux différentes méthodes d'observation. Les modèles numériques de calcul de la dispersion sont aussi présentés dans ce chapitre.

Dans le Chapitre 2, des essais d'extrusion monovis sont réalisés afin de mesurer la dispersion lors de mélange des polymères. Les essais d'extrusion sont réalisés avec une vis simple et ensuite avec une vis dotée d'une tête de mélange. A part ces deux configurations, nous avons étudié l'influence de la vitesse de rotation et de la pression sur la dispersion. Ces résultats expérimentaux nous serviront à comprendre l'influence de ces paramètres sur la qualité du mélange et la difficulté de cette étude.

La méthode des éléments frontières est présentée dans le Chapitre 3. La théorie de la méthode des éléments frontières avec sa formulation est détaillée pour les problèmes d'écoulement newtonien, isotherme. Afin d'élargir l'application de la méthode aux problèmes des écoulements non-newtoniens, quelques méthodes associées à la méthode des éléments frontières sont présentées, et spécialement la méthode "Multi Domain Dual Reciprocity Method", laquelle sera ensuite appliquée dans le Chapitre 4.

Les résultats numériques sont présentés dans le Chapitre 4. Premièrement, nous avons réalisé des simulations en 3D pour les écoulements newtoniens et ensuite des simulations en 2D sont réalisées pour les écoulements non-newtoniens.

CHAPITRE I

1 Rappel sur les polymères et les mélanges de polymères

1.1 Préambule

L'objectif de ce chapitre est de rappeler les principales caractéristiques des polymères dont notamment leur structure moléculaire qui induit entre autre que les polymères ont un comportement en écoulement non-linéaire. Pour cette raison, dans ce chapitre nous présentons les principaux modèles rhéologiques qui décrivent les comportements des écoulements des polymères fondus en cisaillement. Le mélange des polymères est un processus très important dans la mise en œuvre des polymères. Le mélange des polymères est le procédé qui nous permet d'améliorer certaines caractéristiques des produits obtenus à base de polymères (par exemple les caractéristiques mécaniques). Le mélange des polymères peut être classé de différentes façons. On peut le classer d'après l'état des matériaux qui sont mélangés (solide-solide, liquide-solide, liquide-liquide). Sinon, le type de mélange peut être classé d'après le mécanisme de mélange : le mélange distributif et le mélange dispersif. Il est important de savoir comment générer ces types de mélange. Pour cette raison, on est amené à utiliser certains outils comme les têtes de mélanges en extrusion monovis. Une question importante que l'on se pose est de savoir comment caractériser le mélange. Il existe plusieurs méthodes directes et indirectes de caractérisation du mélange des polymères comme la microscopie optique, la microscopie électronique à balayage et à transmission... Finalement, on s'intéresse à la possibilité d'évaluer la dispersion des mélanges par des méthodes numériques.

1.2 Rappel sur les polymères

Comme leur nom l'indique les polymères sont les matériaux composés de molécules de poids moléculaire très élevé. Ces molécules composées de très grands nombres d'unités

chimiques (Figure 1-1) répétitives sont généralement appelées les macromolécules (Figure 1-2). Les propriétés uniques des polymères et la diversité des méthodes de mise en œuvre sont attribuées à leur structure moléculaire. Un paramètre très important pour caractériser les propriétés des polymères est le poids moléculaire.

Lors du procédé de polymérisation, la croissance des chaînes et le mécanisme de terminaison entraînent la production de chaînes identiques mais de grosseurs différentes. En conséquence, un polymère possède une distribution de poids moléculaire (polydisperse) et non un poids moléculaire unique. Cela signifie que le comportement d'un polymère dépend de la moyenne de différentes grosseurs de molécules dans l'échantillon. Les mouvements moléculaires, la rotation autour des liaisons chimiques peuvent changer continuellement dû à la thermique et au champ des contraintes lors de l'écoulement.

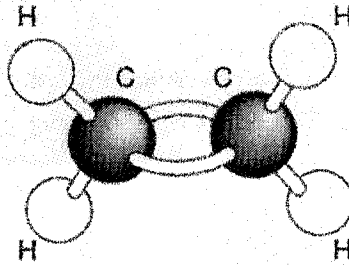


Figure 1-1: Schéma représentatif d'un monomère de polyéthylène (Osswald, 1998)

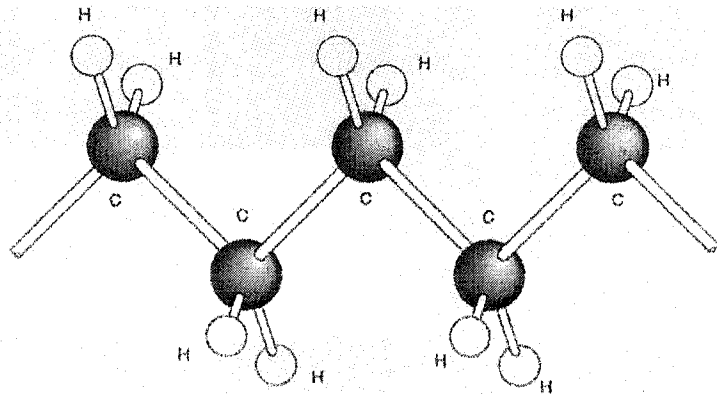


Figure 1-2: Schéma d'une molécule de polyéthylène (Osswald, 1998)

Les propriétés mécaniques, les transitions de phase, la fusion des zones cristallines, les propriétés *rhéologiques* par exemple sont fortement influencées par la grosseur des chaînes.

Plus souvent on est intéressé à prédire le comportement de polymère comme la matière fondue que de connaître les mouvements moléculaires. Pour cette raison, les équations constitutives sont exprimées à partir de la mécanique des milieux continus plutôt qu'en utilisant les bases de la théorie de la chimie moléculaire.

En fin de compte, cette structure moléculaire fait que les polymères ont un comportement viscoélastique; entre le solide élastique et le liquide visqueux. Nous allons surtout nous intéresser au comportement visqueux, ce que nous allons justifier dans la section 1.2.1.

La viscosité des polymères diffère de celle des liquides à bas poids moléculaire. Les expériences ont montré deux régimes de dépendance de la viscosité en fonction de la masse moléculaire (Agassant, 1996).

- en dessous d'une certaine masse critique M_c , la viscosité des polymères varie presque proportionnellement à la masse moléculaire; de plus ces matériaux sont presque newtoniens en cisaillement simple.

- au-dessus de M_c la viscosité augmente beaucoup plus vite que la masse moléculaire; on trouve généralement une loi de type (Ferry, 1970):

$$\eta \approx KM^{3,4} \quad (1.1)$$

où M est la masse moléculaire et K une constante. De plus ces polymères sont fortement non-newtoniens en cisaillement simple. L'interprétation du phénomène que les polymères de masse moléculaire élevée sont fortement non-newtoniens est donnée grâce au concept d'enchevêtrement ((Graessley, 1967), (Bueche, 1968)). Il s'agit des modèles de mouvement d'une chaîne et de ses voisines pour expliquer la dépendance de la

viscosité par rapport à la masse moléculaire, pour des chaînes macromoléculaires de masse supérieure à la masse entre enchevêtrement.

Les polymères industriels ont une distribution de masse moléculaire et la viscosité est alors une fonction plus complexe de cette distribution.

1.2.1 Comportement rhéologique des polymères fondus

La rhéologie est l'étude des propriétés des matériaux qui gouvernent l'interaction entre la déformation et les contraintes (Carreau et Lafleur, 1997). Sous l'action d'une force externe, des matériaux vont se déformer de façons différentes. Pour certains matériaux, la déformation peut être complètement élastique ou complètement visqueuse. La plupart des matériaux qui sont soumis à des contraintes se comportent simultanément de façon élastique et visqueuse, ce que on appelle le comportement viscoélastique.

Etant donné qu'en réalité les polymères sont viscoélastiques, les lois de comportement traduisant ces propriétés sont beaucoup plus complexes que les simples lois visqueuses. Toutefois, les phénomènes viscoélastiques sont surtout importants dans les écoulements à surfaces libres (en sortie de la filière par exemple) ou lorsque la géométrie évolue de façon brutale. Pour cela, dans cette étude seulement le comportement visqueux est considéré.

Une équation de comportement rhéologique est une équation qui relie les contraintes subies par un milieu continu à sa vitesse de déformation. On définit la viscosité, pour un écoulement de cisaillement simple, comme étant le rapport entre la contrainte de cisaillement et le taux de cisaillement.

$$\tau_{ij} = \eta \dot{\gamma}_{ij} \quad (1.2)$$

Où τ_{ij} est la composante du tenseur contrainte de cisaillement, η est la viscosité dynamique et $\dot{\gamma}_{ij}$ est la composante du tenseur de taux de cisaillement. Elle est définie par:

$$\dot{\gamma}_{ij} = \left(\frac{\partial u_i}{\partial x_j} + \frac{\partial u_j}{\partial x_i} \right) \quad (1.3)$$

Les équations d'équilibre dynamique, de continuité et d'énergie qui sont couplées à une équation de comportement rhéologique forment un système complet. Si tous les termes de comportement sont linéaires, le matériau est considéré comme ayant un comportement linéaire, autrement on parle d'un comportement non-linéaire.

1.2.2 Comportement des fluides newtoniens

Pour les liquides monophasiques à bas poids moléculaire et pour les polymères soumis à des très faibles taux de cisaillement, la viscosité est indépendante de la vitesse de cisaillement et ne dépend que de la température et de la pression. La viscosité Newtonienne est une caractéristique du matériau et elle est suffisante pour prédire la réponse d'un fluide Newtonien à une déformation quelconque.

L'équation du comportement rhéologique pour un fluide Newtonien est la suivante.

$$\tau_{ij} = \mu \left(\frac{\partial u_i}{\partial x_j} + \frac{\partial u_j}{\partial x_i} \right) \quad (1.4)$$

Donc, le comportement newtonien est l'approximation la plus simple du comportement rhéologique des polymères fondus et l'équation précédente nous permet de calculer la déformation d'un fluide Newtonien soumis à des contraintes externes.

1.2.3 Comportement non-Newtonien

Pour tous les polymères, la viscosité dépend du taux de cisaillement et de la température du fluide. Ce qui signifie que les polymères ont un comportement dit non-Newtonien et la seule mesure de la viscosité η n'est pas suffisante pour caractériser rhéologiquement ces matériaux. Sur le Figure 1-3, nous observons deux types de comportements: a) Newtonien et b) non-Newtonien. Si nous avons deux tubes remplis de fluides Newtoniens de même viscosité, bouchés en bas et si on les débouche en même temps, les fluides vont s'écouler en même temps. Par contre, si nous reproduisons la même expérience avec deux fluides, un Newtonien et un autre non-Newtonien, le comportement rhéofluidifiant (la viscosité diminue lorsque le taux de cisaillement augmente) va contribuer à faire s'écouler le fluide non-Newtonien plus rapidement que le fluide Newtonien.

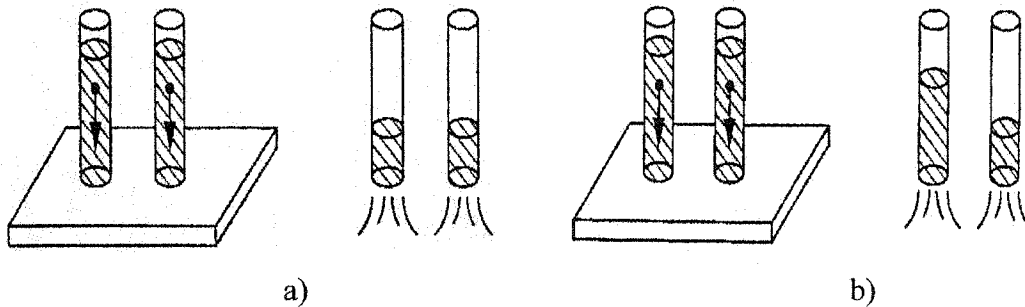


Figure 1-3: Ecoulement dans un tube; Représentation schématique pour un fluide Newtonien (a) et pour un fluide non-Newtonien (b). (Bird, 1987)

Plusieurs équations de comportement ont été développées pour modéliser le comportement d'un fluide Newtonien généralisé. On pourra observer qu'il n'y a pas de relation linéaire entre la contrainte de cisaillement et le taux de cisaillement. Pour un écoulement en cisaillement simple nous écrivons,

$$\eta(\dot{\gamma}) = \frac{\tau(\dot{\gamma})}{\dot{\gamma}} \quad (1.5)$$

La contrainte et le taux de cisaillement sont des tenseurs. Par contre, la viscosité est un scalaire. Nous établissons que la viscosité d'un fluide non-Newtonien est une fonction du tenseur des vitesses de déformation. Par conséquent la viscosité est une fonction du tenseur des vitesses de déformation qui est un scalaire (invariant). Pour un écoulement en cisaillement simple, la viscosité est fonction du second invariant.

$$\eta = f(II) \quad (1.6)$$

Où le second invariant est défini par l'égalité suivante:

$$II = \sum_i \sum_j \dot{\gamma}_{ij} \dot{\gamma}_{ji} \quad (1.7)$$

1.2.3.1 Loi de puissance

Le premier modèle de comportement pour un fluide Newtonien généralisé a été développé par W.Ostwald et A. de Waele (Bird, 1987; De Waele, 1923; Ostwald, 1925). C'est le modèle le plus simple qui est basé sur l'observation d'une plage linéaire de la viscosité en fonction du taux de cisaillement en représentation logarithmique.

$$\eta = m(\dot{\gamma})^{n-1} \quad (1.8)$$

$$\dot{\gamma} = \sqrt{\frac{1}{2} II} \quad (1.9)$$

Où m est la consistance du matériau [$\text{Pa} \cdot \text{sec}^n$] et n est l'indice de pseudoplasticité. Représenté sur un graphique en échelle logarithmique, la loi de puissance se traduit par une droite de pente $n-1$. Si $n=1$ et $m = \mu$ le fluide a un comportement Newtonien. Si $n < 1$ le fluide est dit pseudoplastique ou rhéofluidifiant. Si $n > 1$ le fluide est appelé rhéoépaississant.

Dans l'Annexe 1 (Tableau 1) on peut trouver les valeurs de m et n pour une série de polymères commerciaux (Tadmor, 1979).

1.2.3.2 Modèle de Carreau Yasuda

Le modèle de la loi de puissance s'applique sur une plage limitée de la viscosité. Carreau (Carreau et Lafleur, 1997) a développé un modèle qui représente complètement la courbe de viscosité.

$$\frac{\eta - \eta_{\infty}}{\eta_0 - \eta_{\infty}} = \left[1 + (\lambda \dot{\gamma})^a \right]^{\frac{n-1}{a}} \quad (1.10)$$

Où η_0 est la viscosité à cisaillement nul (Newtonienne), η_{∞} est la viscosité à cisaillement infini, λ est la constante de temps et n est l'indice de la loi de puissance. Il faut noter que $a = 2$ pour la loi de Carreau à 4 paramètres. Ce paramètre additionnel " a " améliore la description de la zone de transition entre le plateau Newtonien et la pente de la loi de puissance. Sur la Figure 1-4, la viscosité est représentée schématiquement en fonction du taux de cisaillement.

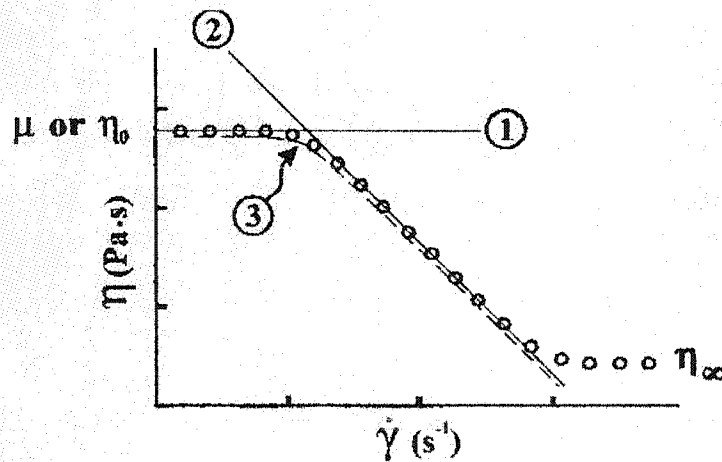


Figure 1-4 : Schéma représentatif de la viscosité en fonction du taux de cisaillement (échelle logarithmique), (Carreau et Lafleur, 1997)

Également sur la Figure 1-4 nous voyons les performances de chaque modèle rhéologique. La droite 1 représente la viscosité d'un fluide Newtonien. La capacité du modèle de loi de puissance à représenter la viscosité en fonction du taux de cisaillement est donnée par la droite 2. Le modèle n'est donc valable que pour une plage des valeurs du taux de cisaillement. Pour le taux de cisaillement faible et très élevé la prédiction du comportement rhéologique devient fausse. Le modèle de Carreau est représenté par la courbe 3. La courbe de viscosité est correctement représentée. Pour un taux de cisaillement faible, la viscosité est égale à la viscosité Newtonienne η_0 et pour le taux de cisaillement élevé la courbe suit bien les données expérimentales de la viscosité pour un taux de cisaillement très élevé. Sur le graphique de la Figure 1-4, η_∞ est la viscosité à cisaillement infini pour les polymères en solutions. Dans l'Annexe 1 (Tableau 2) on trouve les valeurs des coefficients du modèle de Carreau pour certains polymères commerciaux (Tadmor, 1979).

Malgré son éloignement de la réalité à très faible taux de cisaillement, la loi de puissance conduit en général à des bonnes approximations et autorise une résolution analytique ou numérique (Agassant, 1996).

1.3 Mélange des polymères

1.3.1 Notion de mélange

Le mélange des polymères et des additifs est le procédé classique afin de créer des nouveaux matériaux plastiques. Ces nouveaux matériaux ont des caractéristiques spécifiques et une très large variété de propriétés physiques, ce qui n'est pas possible de réaliser avec les matériaux individuels.

Le mélange est la combinaison de deux ou plusieurs substances (composants) afin d'améliorer l'homogénéité spatiale du mélange. Sans tenir compte de l'efficacité du

procédé de mélange, la ségrégation des substances apparaît. L'intensité de la ségrégation du mélange final peut être mesurée par microscopie, ou tout simplement elle peut être évaluée à l'œil nu. Donc, le mélange consiste en deux ou plusieurs phases où la phase majeure représente la matrice et la phase mineure représente la phase secondaire.

On peut citer de nombreux exemples d'opérations de mélange des polymères. Dans cette opération, on peut inclure des solides et des liquides. Les mélanges des particules de polymère avec des pigments de couleur, avec des charges ou avec d'autres additifs sont des exemples des opérations de mélange solide-solide. La dispersion du noir de carbone dans le polyéthylène est un exemple typique de mélange solide-liquide. Finalement, le mélange de deux polymères fondus est un exemple de mélange liquide-liquide. À travers les nombreux procédés de mélange, ceux incluant les systèmes liquide-liquide et solide-liquide sont probablement les plus caractéristiques.

Le procédé de mélange est une opération qui permet de réduire la non-uniformité d'un mélange. Cela peut être réalisé en induisant les mouvements physiques des ingrédients (des composants) du mélange. Trois types de mouvements peuvent intervenir dans cette opération (Tadmor, 1979) :

- diffusion moléculaire
- diffusion turbulente « eddy diffusion »
- convection « bulk diffusion »

À cause de la viscosité élevée des polymères fondus, dans les procédés de mélanges des polymères, la diffusion turbulente est très rarement rencontrée et la diffusion moléculaire est négligeable. Donc, l'écoulement convectif reste le mouvement et le mécanisme dominant dans le procédé de mélange. Cette convection implique les mouvements des particules de fluide ou des agglomérats de solide d'une position à une autre dans le système.

1.3.2 Mélanges distributifs et dispersifs

Dans les procédés de mélange des polymères, on peut distinguer deux mécanismes importants qui agissent différemment sur l'action de mélange: le *mélange distributif* et le *mélange dispersif*.

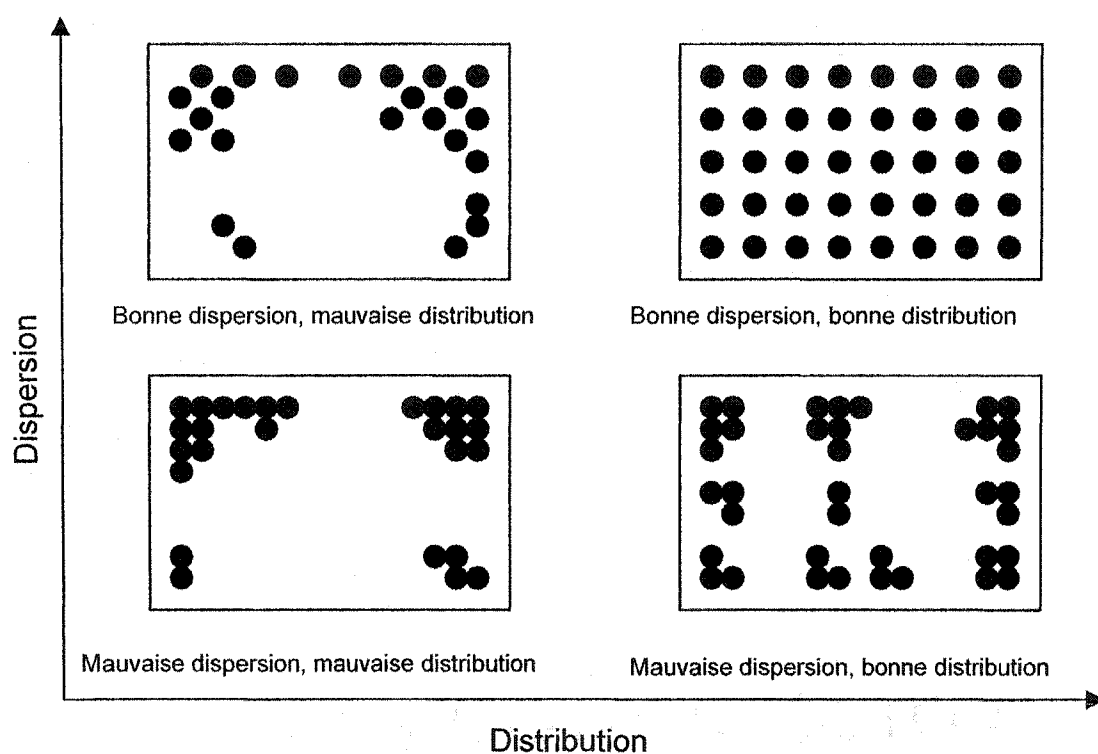


Figure 1-5: Mécanismes de mélange distributif et dispersif représentés schématiquement

La Figure 1-5 montre différentes combinaisons de mélanges dispersifs et distributifs. Pour les charges cohésives, une bonne dispersion et une distribution uniforme sont nécessaires afin d'éviter une perte de la résistance mécanique du composite. En général, le degré de mélange, la nature et la stabilité des morphologies obtenues sont liées aux interactions physiques et chimiques entre la matrice et l'additif. Pour des charges

cohésives et des polymères immiscibles, un mélange efficace nécessite la destruction des agglomérats (mélange dispersif) suivie par une distribution des fragments (mélange distributif). Pour obtenir un matériau composite uniforme, les agrégats, issus de la rupture, doivent être distribués dans la matrice de façon homogène.

Les mélanges distributifs et dispersifs ne peuvent pas être séparés physiquement. Le mélange distributif est automatiquement lié et intervient toujours dans le cas de mélange dispersif. Le cas inverse n'est pas toujours vrai. Dans le cas de mélange distributif, le mélange dispersif peut avoir lieu seulement si nous avons la phase secondaire solide et si les contraintes appliquées à cette phase dépassent les forces de cohésion entre des particules de cette phase.

1.3.2.1 Mélange distributif

Le mélange distributif fait référence à l'homogénéisation des composants du mélange et de la température à travers la matrice. A cause de la viscosité élevée des polymères de faible nombre de Reynolds et de faible coefficient de diffusivité en résultent. Les écoulements turbulents deviennent impossibles et les transferts de masse, pour être efficaces, demandent des temps de contact très longs qui risquent de dégrader le polymère (Ottino et Chella, 1983). Il y a une très faible contribution au mélange distributif. Ceci explique la difficulté de mélanger des fluides de haute viscosité comparativement aux autres solutions liquides très fluides qui se mélangent aisément par turbulence ou inter diffusion. Par contre les écoulements laminaires, nettement moins efficaces, seront responsables du mélange distributif. Ce qui devient important alors est de perturber au maximum l'écoulement du polymère et de lui appliquer de grandes déformations. Le suivi des lignes de courant, le temps de séjour et le taux de déformation deviennent cruciaux.

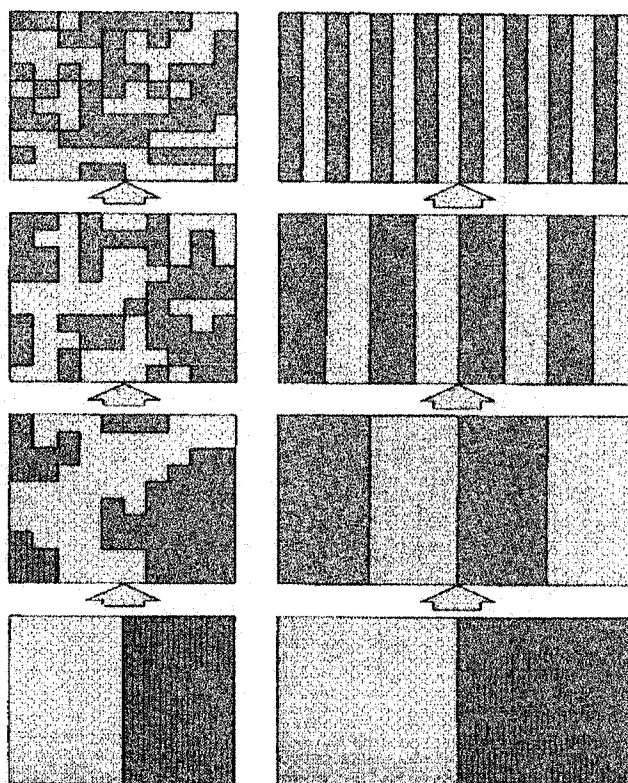


Figure 1-6: Mélange distributif ; aléatoire (à gauche), ordonné (à droite) (Tadmor, 1979)

Spencer et Wiley (1951) font référence au mélange distributif comme étant un mélange répétitif. Ce type de mélange peut réduire les non-uniformités jusqu'à l'échelle moléculaire. Ces réarrangements répétitifs dans le mélange distributif peuvent être aléatoires ou ordonnés comme le montre la Figure 1-6. Le mélange distributif ordonné n'est réalisable que par les mélangeurs statiques.

1.3.2.2 Mélange dispersif

Le mélange dispersif, quant à lui, consiste à briser des agglomérats présents dans le polymère à l'aide de contraintes de cisaillement élevées. Ce qui compte alors est de réduire le plus possible la taille des agglomérats qui, souvent, se fait au-delà d'une

certaine contrainte critique. La rupture des phases dispersées se produit si les contraintes appliquées à l'interface dépassent les forces de cohésion des agglomérats (lesquelles dépendent de la nature et de la taille du solide) ou la tension interfaciale pour le mélange de polymères immiscibles (Rauwendaal, 1986). La rupture se produit dans des zones de mélange dispersif où les forces hydrodynamiques induites sur les surfaces solides dépassent les forces de cohésion. Si les écoulements ne sont pas à déformation importante dans des géométries non-restrictives, il ne peut y avoir aucun mélange dispersif, comme c'est le cas sur les extrudeuses de grande taille offrant des grandes surfaces d'écoulement de l'entrée de la vis jusqu'à la sortie de la filière.

1.3.3 Forces engendrées par le type d'écoulement

L'analyse quantitative de la dispersion pourra considérablement aider à la conception des mélangeurs pendant la mise en forme des matières plastiques. Bird et al. (1971) ont proposé un modèle quantitatif en considérant les forces agissant sur un seul agglomérat dans un champ d'écoulement. Cet agglomérat est de la forme d'une haltère, constituée de deux sphères de rayons r_1 et r_2 . Les centres sont séparés par une distance L et l'haltère est placé dans un fluide incompressible newtonien où les agglomérats ne perturbent pas l'écoulement. Pour calculer les forces qui agissent sur les agglomérats, les auteurs ont calculé les forces produites par la traînée visqueuse de l'écoulement dans le connecteur. Tadmor (1976) a adopté la même approche en élargissant le modèle pour des sphères de différents rayons et en incluant les effets de mouvement Brownien.

Tadmor a analysé la rupture de paires de particules avec interaction dans des champs d'écoulement en cisaillement simple et élongationnel. Suivant le type d'écoulement, les forces maximales vont être différentes.

Les forces maximales qui agissent pour un écoulement de *cisaillement simple* sont atteintes quand les particules sont orientées à 45° par rapport à l'écoulement et peuvent s'exprimer par :

$$F_{\max} = 3\pi\mu\dot{\gamma}L \frac{r_1 r_2}{r_1 + r_2} \quad (1.11a)$$

Quand les sphères sont en contact ($L = r_1 + r_2$), l'équation (1.11a) se réduit à,

$$F_{\max} = 3\pi \left(\mu \dot{\gamma} \right) r_1 r_2 \quad (1.11b)$$

Où $\mu \dot{\gamma}$ est la contrainte de cisaillement avec μ la viscosité newtonienne et $\dot{\gamma}$ le taux de cisaillement. A partir des équations (1.11a) et (1.11b), nous pouvons constater que la force dans le connecteur est directement proportionnelle à la contrainte de cisaillement et au produit des rayons. Ainsi, dans le même champs d'écoulement, la force (force de rupture) dans le connecteur va diminuer avec la diminution de la taille des sphères. Si la force de rupture de l'agglomérat reste constante, la rupture de l'agglomérat va se poursuivre jusqu'à ce que la taille de l'agglomérat atteigne un certain minimum. Sur la Figure 1-7 ce type d'écoulement est représenté schématiquement.

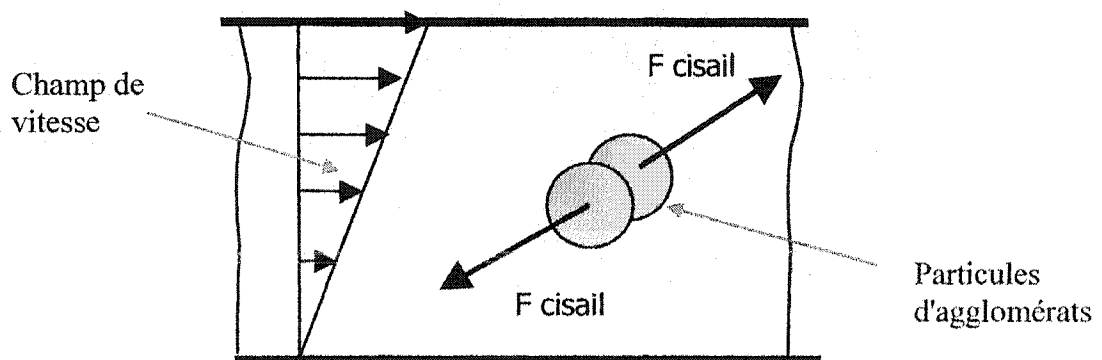


Figure 1-7: Ecoulement de cisaillement

Pour un écoulement permanent *élongationnel*, la force maximale dans le connecteur est obtenue quand l'haltère est aligné avec la direction de l'écoulement. La force maximale qui agit sur les particules lors d'un écoulement élongationnel peut s'exprimer par :

$$F_{\max} = 6\pi(\dot{\epsilon}\mu)r_1r_2 \quad (1.12)$$

Où $\dot{\epsilon}$ est le taux d'élongation. Si on compare les équations (1.11b) et (1.12), les forces maximales qui agissent sur les agglomérats, pour un même taux de déformation dans les écoulements élongationnels sont deux fois supérieures à celles du cisaillement simple. Donc les écoulements élongationnels sont à favoriser. Un écoulement élongationnel est représenté schématiquement sur la Figure 1-8.

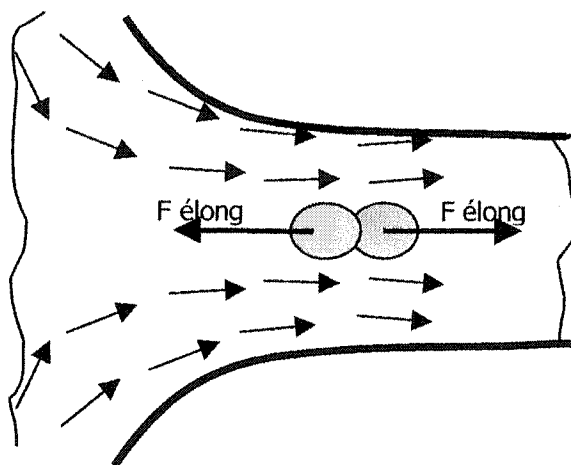


Figure 1-8 : Écoulement élongationnel

Dans la plupart des mélangeurs dispersifs utilisés, l'écoulement engendré sera une combinaison de l'écoulement de cisaillement et de l'écoulement d'élongation. Malheureusement, les modèles d'écoulement sont trop complexes pour permettre d'avoir une description mathématique précise. Comme résultat, la géométrie du mélangeur n'est pas déterminée à partir d'une analyse analytique, mais par l'expérience, les connaissances empiriques, l'intuition ou par une analyse numérique (Rauwendaal, 1986).

1.3.4 Mélange des liquides immiscibles

Dans le cas du mélange des polymères (liquides immiscibles), la phase mineure est présente comme phase dispersée (gouttelettes ou fils) dans la phase continue (Figure 1-9). L'opération élémentaire dans le procédé de mélange est la déformation des gouttelettes dispersées dans l'écoulement engendrant une augmentation de l'aire de l'interface entre les deux composants. Celle-ci est aussi accompagnée par la diminution de la dimension locale, perpendiculaire à la direction de l'écoulement (Elemans, 1990).

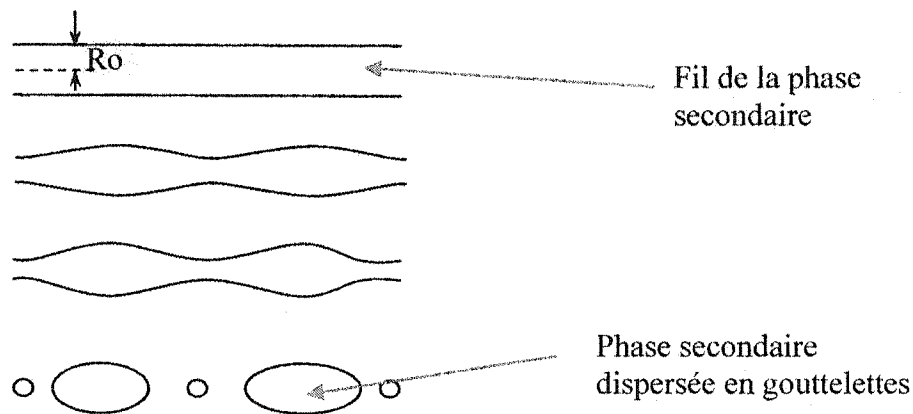


Figure 1-9: Désintégration du fil de la phase secondaire puis dispersion de celle-ci

La déformation des gouttelettes est favorisée par la contrainte de cisaillement τ exercée sur la gouttelette par le champ d'écoulement et ralentie par la contrainte interfaciale σ / R (avec σ la tension interfaciale et R le rayon local de la gouttelette) minimisant le ratio de la surface sur le volume. Le rapport entre ces deux contraintes est appelé le nombre capillaire Ca .

$$Ca = \frac{\tau R}{\sigma} \quad (1.13)$$

Le bris des gouttelettes se produit quand le nombre capillaire critique Ca_{crit} est atteint. Ca_{crit} est de l'ordre de l'unité. Apparemment, le bris des gouttelettes survient quand les

contraintes τR et σ sont du même ordre de grandeur. Ca_{crit} dépend du type d'écoulement ; l'écoulement de cisaillement et l'écoulement d'élongation, ainsi que du rapport de la viscosité p des deux phases (Figure 1-10). Le rapport de viscosité p est défini par:

$$p = \frac{\eta_c}{\eta_d} \quad (1.14)$$

Où η_c est la viscosité de la matrice (phase continues), η_d est la viscosité de la phase secondaire (discontinue).

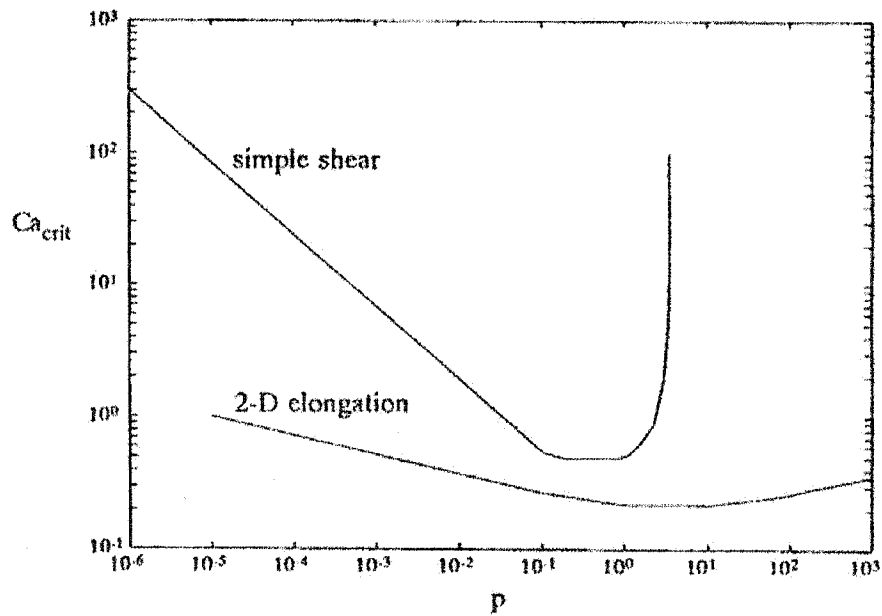


Figure 1-10: Nombre capillaire en fonction de la viscosité, pour les écoulements de cisaillement et d'élongation (Grace, 1982)

En plus de l'application simple de contraintes suffisamment élevées, l'écoulement doit maintenir les contraintes pendant un temps suffisant pour permettre le bris des particules.

1.3.5 Classification des mélangeurs

Les diverses opérations de mélange sont effectuées dans des types d'appareils de mélange variés. Certains d'entre eux sont conçus pour des applications « spécifiques » contrairement aux dispositifs « ordinaires » qui peuvent être appliqués aussi bien aux procédés de mise en forme des matières plastiques qu'aux procédés de mélange des polymères.

En essayant de classer les mélangeurs, premièrement nous distinguons :

- les mélangeurs discontinus
- les mélangeurs continus

La différence principale entre ces deux classes de mélangeurs est le type d'alimentation et d'extraction du mélange. Les mélangeurs discontinus sont caractérisés comme des très bons mélangeurs dispersifs possédant une très grande flexibilité pour la création de nouveaux mélanges. Les principaux avantages des mélangeurs continus sont une sortie très large, l'opération ininterrompue, une meilleure uniformité du produit, le contrôle de la qualité plus facile et la réduction de la main-d'œuvre.

Les extrudeuses monovis et bivio sont les deux machines les plus utilisées en tant que mélangeurs continus. L'extrusion monovis est un des processus le plus commun dans l'industrie de mise en forme des matières plastiques. Lors de la mise en forme des matières plastiques il est très intéressant d'obtenir en même temps un mélange efficace. Cet objectif est facilement réalisable en faisant des petites modifications des équipements dans les extrudeuses. Faisant l'objet de ce projet, l'extrusion monovis sera désormais étudiée comme le procédé de mélange des polymères.

1.3.6 Mélanges en extrusion

L'extrusion monovis est un procédé de transformation des polymères très important. À toute fin pratique, tous les polymères d'usage courant ont passé au travers d'une

extrudeuse à un moment ou l'autre de leur cycle de transformation. Sur la Figure 1-11, on voit l'extrudeuse monovis de laboratoire utilisée pour les expériences et connectée par l'intermédiaire d'un système d'acquisition à un ordinateur.

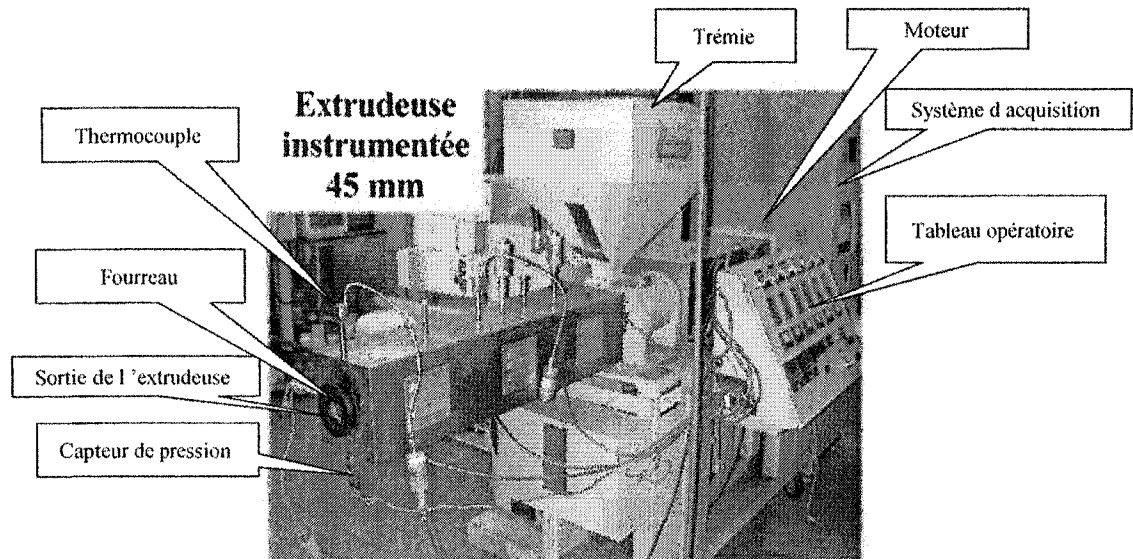


Figure 1-11: Extrudeuse monovis

Le principe de l'extrudeuse est de convoyer de la matière par la rotation de la vis et de la chauffer à une température donnée, puis d'assurer la mise en pression du polymère fondu.

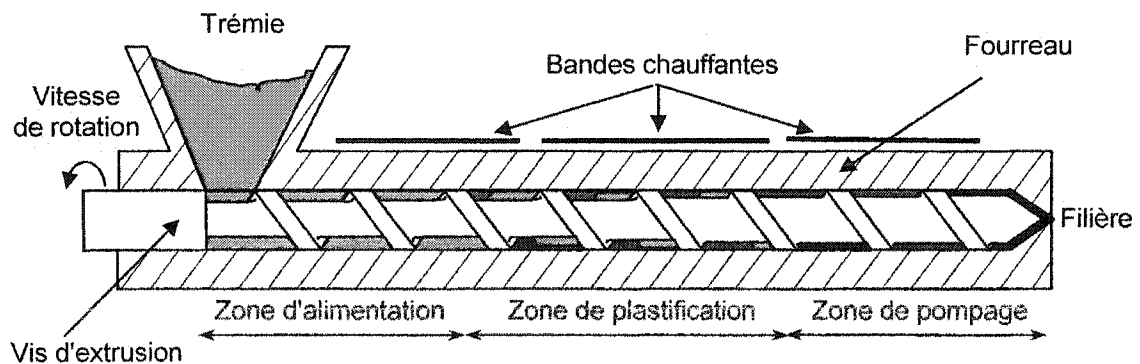


Figure 1-12: Schéma en coupe longitudinale du principe de l'extrudeuse monovis

Sur la Figure 1-12a, on voit un schéma en coupe longitudinale et les différentes zones de l'extrudeuse monovis. La matière en passant par la trémie et la zone d'alimentation est sous forme granuleuse ou poudreuse (état solide). Ensuite, elle est convoyée vers la zone de fusion où il y a coexistence de solide et de matière fondue. À la fin, la matière passe par la zone de pompage et de mélange où elle est sous forme complètement fondue.

Le polymère, qui a été fondu dans le système vis-fourreau d'une extrudeuse, s'écoule sous pression à travers une filière qui donne la forme du produit.

Le dessin optimal de la vis dépend de la matière extrudée. Elle peut être à pas constant, ou à pas successifs différents; le noyau de la vis peut être cylindrique ou conique. Sur la Figure 1-13, une portion de la vis est représentée schématiquement avec ses paramètres principaux.

Les principes du mélange, rencontrés en extrusion des thermoplastiques, sont bien expliqués par Rauwendaal (1986) et Ottino et Chella (1983). Le mélange en extrusion monovis a été obtenu par l'écoulement du polymère à travers les chenaux. La zone de mélange en extrusion commence à l'entrée de la zone de plastification (fusion) et se termine à la sortie de la filière.

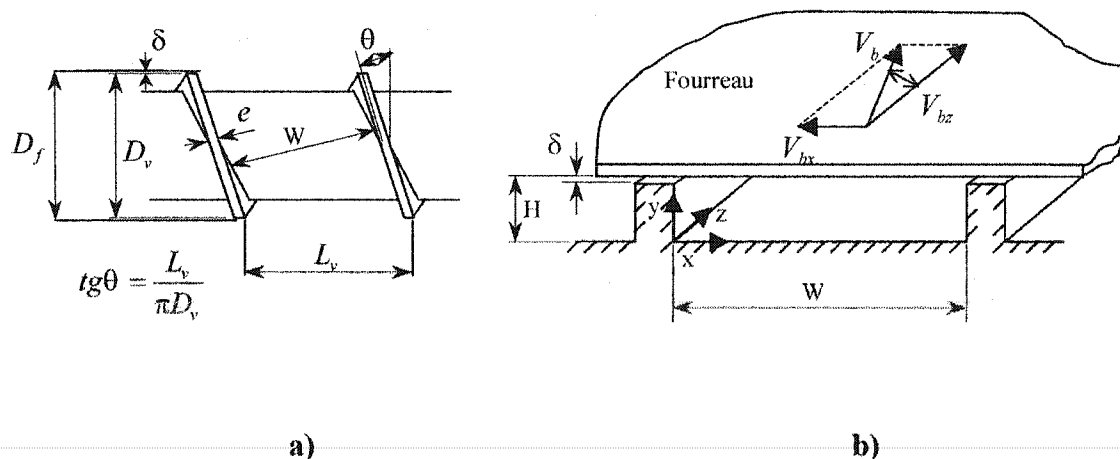


Figure 1-13: Schéma de la coupe longitudinale d'un canal de la vis d'extrusion avec paramètres principaux et les vitesses entraînant la matière fondue

Pour décrire les écoulements de la matière entre la vis et le fourreau, nous allons considérer le schéma de la Figure 1-13b en appliquant les conditions limites simplifiées, en considérant que la vis est fixe et le fourreau est mobile.

Le mélange dans les vis d'extrusion a principalement lieu dans la phase liquide, à partir du moment où le polymère fond dans le film au-dessus du lit solide jusqu'à la sortie de la vis (Figure 1-14). Le mélange dispersif s'effectue surtout dans le film de polymère fondu au-dessus du lit solide et dans l'entrefer entre les filets et le fourreau.

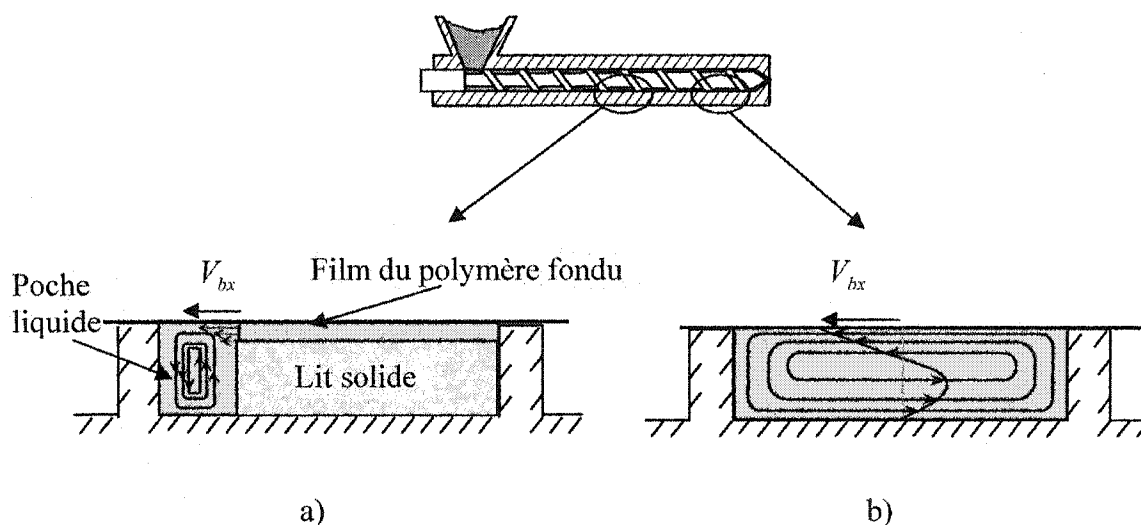


Figure 1-14: Profils des vitesses dans la coupe longitudinale d'un canal dans les zones: a) de plastification et b) de pompage

L'efficacité du mélange dispersif dans le film dépend largement de son épaisseur. De faibles épaisseurs sont évidemment à favoriser mais en extrusion, il n'est pas clair que cette condition soit réalisée. Surtout en considérant que la compression des solides vers le fourreau, ce qui diminue l'épaisseur du film, peut facilement entraîner l'obstruction de la vis et des fluctuations sérieuses de débit. Egalement, avec de faibles épaisseurs de films, un bon mélange dispersif n'est pas assuré en raison du bris du lit solide vers la fin de la fusion fréquemment observé pour beaucoup de polymères. Si aucun mélangeur dispersif n'est ajouté à la vis, des débris solides infondus pourront facilement se rendre

jusqu'à la filière. L'écoulement du polymère au-dessus des filets de la vis offre de meilleures conditions de mélange dispersif en raison des faibles valeurs de l'entrefer habituellement rencontré à cet endroit (δ sur la Figure 1-13 qui est de l'ordre de $0,01 D_f$). Cependant le débit de matière passant au-dessus du filet ne représente qu'un faible pourcentage du débit total en sortie de filière et il en résulte un pauvre mélange dispersif. Il faut aussi comprendre que même en favorisant un débit plus élevé au-dessus des filets, l'uniformité du mélange dispersif ne serait pas très bonne. Une couche de polymère se formerait autour du fourreau et le centre de l'écoulement ne participerait que rarement à l'écoulement au-dessus du filet.

L'action de mélange distributif est principalement déterminée par l'histoire de déformation que subit une particule sur une ligne de courant. Au-dessus du lit solide, les lignes de courant sont assez directes et mènent au canal du polymère fondu. Dans le canal de polymère fondu, le suivi des particules donne lieu à des lignes de courant en hélice (Figure 1-14a) de plus en plus développées en s'éloignant du centre de l'écoulement. Ceci est dû à la traînée transversale qui, de ce fait, est le principal mécanisme d'homogénéisation dans l'extrudeuse (Ottino et Chella, 1983).

Toutefois, la vis d'extrusion n'est pas un bon mélangeur pour autant. Il y a d'abord la non-uniformité des histoires de déformations qui sont évidentes en considérant le polymère près du fourreau qui subit beaucoup de recirculation et le polymère près du centre qui en subit beaucoup moins (Figure 1-14b). Egaleme nt, l'addition du polymère fraîchement fondu tout le long du lit solide peut sérieusement affecter l'uniformité des temps de séjour. Ceci peut s'avérer dramatique dans le cas de débits élevés où les vis d'extrusion sont tout juste assez longues pour assurer une fusion complète. Finalement, la faible réorientation des interfaces (interfaces entre deux ou plusieurs composantes du mélange) nuit considérablement à l'action de mélange de la vis. Avec l'application de déformations, les interfaces deviennent vites parallèles avec la direction de l'écoulement

et on comprend alors pourquoi le mélange devient difficile, surtout pour des écoulements "relativement calmes" rencontrés dans les extrudeuses.

Le besoin d'ajouter des sections de mélange aux vis d'extrusion est maintenant mieux compris. Les éléments de mélange ont pour rôle principal de redistribuer les lignes de courants, de favoriser une certaine réorientation des interfaces et d'appliquer des déformations au polymère. Si des régions à hautes contraintes sont intégrées au mélangeur, il est également possible de nettement améliorer le mélange dispersif.

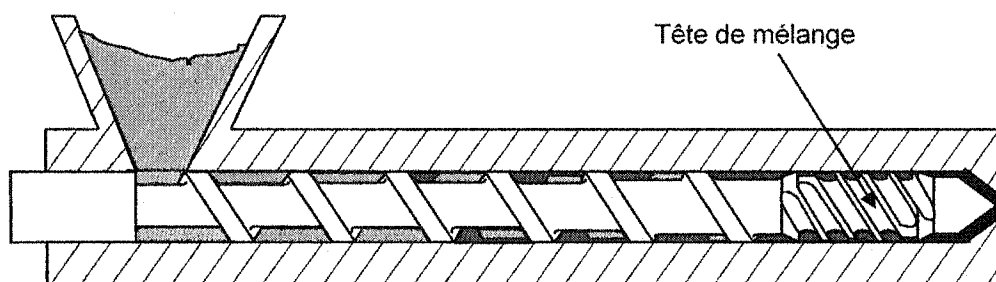


Figure 1-15: Extrudeuse monovis dotée d'une tête de mélange

Par exemple, lors de l'extrusion de bandes de PVC, les pigments présents dans le polymère qui sortent de l'extrudeuse doivent être mélangés de manière à obtenir la couleur et la consistance recherchées et ce, sans produire de défauts de surface (piques, stries et bulles d'air). Pour cela, la maîtrise du mélange en extrusion est évidente. Une méthode couramment pratiquée pour améliorer les performances du mélange est l'utilisation de têtes de mélange (Figure 1-15).

1.3.7 Éléments de mélange

1.3.7.1 Mélangeurs distributifs

Sur le Figure 1-16, nous voyons différents types de mélangeurs distributifs fréquemment utilisés en extrusion. Les arrangements des ergots cylindriques entre les filets (Figure 1-16a) ou à la fin de la vis (Figure 1-16b) interrompent l'écoulement de la matière fondue et le divise en couches minces. Le nombre des ergots et leur dimension dépendent du type de polymère, de la viscosité et de la taille de l'extrudeuse (Hansen, 1994).

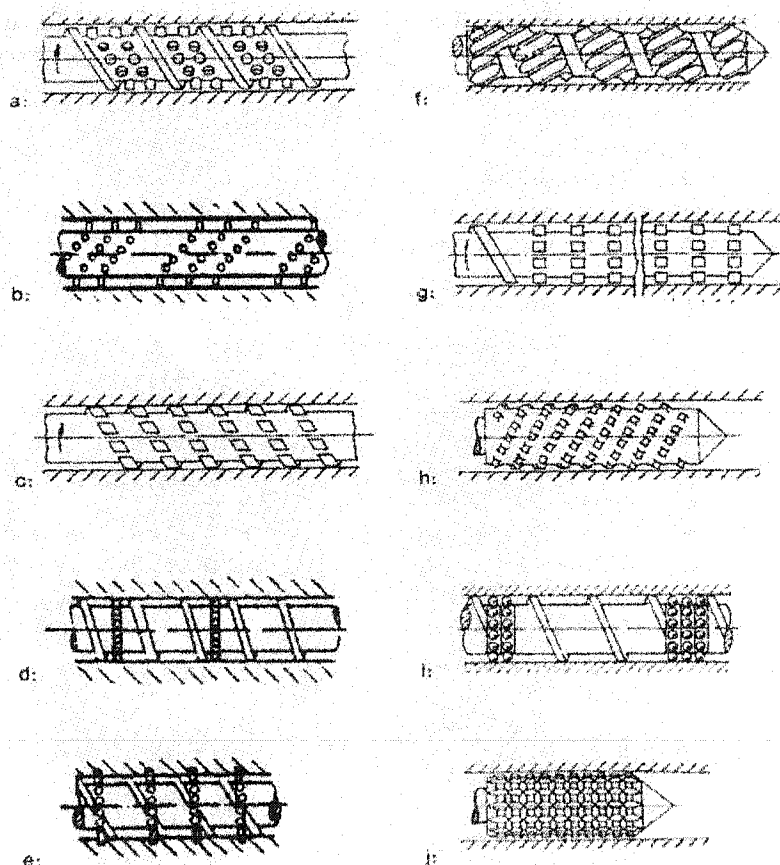


Figure 1-16: Différents mélangeurs distributifs: a), b), d), e) mélangeurs à ergots c) mélangeur à filets interrompus, f) mélangeur Saxton, g), h) mélangeurs à rhomboïdes, i) mélangeur à roulements, j) mélangeur ananas, (Hansen, 1994)

Sur la Figure 1-16c, le plastique fondu passe du front d'un filet à l'arrière en créant les effets de mélange. L'inconvénient de cet élément de mélange est la réduction des caractéristiques de convoyage de la matière par la vis. Le mélangeur de la Figure 1-16f, encore appelé mélangeur "Saxton", produit une combinaison de mélange distributif accompagné de cisaillement. Pour des polymères très sensibles à la dégradation thermique, les mélangeurs rhomboïdes (Figure 1-16g et h) sont utilisés afin de minimiser les zones mortes. Par contre pour les polymères moins sensibles à la dégradation thermique, les mélangeurs à roulements (Figure 1-16i) peuvent être utilisés. Dans ce cas les roulements agissent à la fois comme des barrières et des malaxeurs.

Les différents éléments de mélange créent différentes pertes de pression. Comme les polymères et les mélanges demandés sont différents suivant l'application, la sélection des éléments de mélange doit être faite suivant chaque cas. Pour cela il faut prendre en compte tous les aspects importants comme la perte de pression, le temps de séjour, les zones mortes, la dispersion et le coût (Hansen, 1994).

1.3.7.2 Mélangeurs dispersifs

Le but visé par l'utilisation de ces mélangeurs est le bris de particules solides ou de gouttelettes liquides par le passage dans une région à haute contrainte de cisaillement et d'assurer une certaine homogénéité de cette dispersion. Dans tous les cas, le temps de séjour du polymère dans une région à haute contrainte est assez court et représente en fait, un compromis entre un temps minimum pour réaliser la dispersion et la perte de charge combinée à la dégradation thermique que le polymère subit dans l'élément.

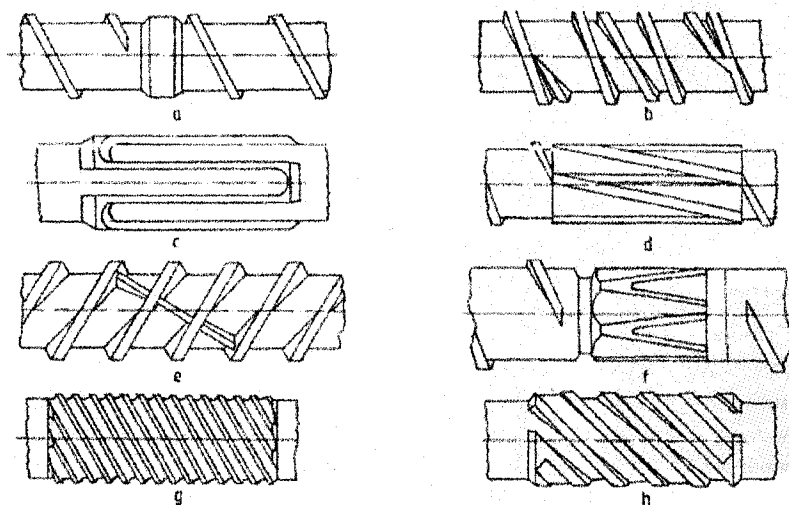


Figure 1-17: Les éléments de mélange dispersifs: a) anneau d'étranglement, b) "Maillefer flight", c) mélangeur Maddock, d) mélangeur Troester, e) mélangeur à barrière, f) mélangeur Dray, g) mélangeur Dumlage, e) mélangeur Egan (Hansen, 1994)

Les mélangeurs dispersifs sont regroupés en plusieurs catégories : mélangeurs dispersifs purs, mélangeurs à canaux, mélangeurs à barrière transverse et les mélangeurs à engrenages planétaires. Sur la Figure 1-17 les trois premières catégories sont présentées. Durant le passage dans l'entrefer entre l'anneau et le fourreau (Figure 1-17a), le polymère est soumis aux fortes contraintes de cisaillement. Sur la Figure 1-17b et la Figure 1-17d, les mélangeurs sont composés de canaux de largeur diminuant progressivement. Les canaux de sortie sont fermés et le polymère est forcé de passer au-dessus des filets. Le mélangeur de type Maddock est représenté sur la Figure 1-17c. La géométrie de ce mélangeur est divisée en certain nombre de paires de canaux d'entrée et de sortie. Dans chacune des paires, le polymère est forcé de passer par-dessus un filet barrière. L'épaisseur des canaux est constante sur toute la longueur. Comme son nom l'indique, le mélangeur à barrière (Figure 1-17e) possède des barrières placées directement en travers des canaux d'écoulement. Les mélangeurs Dumlage et Egan, représentés respectivement sur la Figure 1-17g et la Figure 1-17h, ont des canaux

inclinés. Le mélangeur Egan a des canaux avec profondeur de rainure variable. Dans les canaux d'entrée, la profondeur diminue et pour les canaux de sortie, elle augmente.

Dans cette étude, les mélangeurs de type mélangeurs à canaux sont utilisés, inspirés par le mélangeur de Union Carbide, popularisé par la tête de mélange Maddock. Un schéma de la tête de mélange utilisée dans la partie expérimentale est montré sur la Figure 1-18. Par rapport à la tête de mélange Maddock classique, les canaux sont inclinés d'un certain angle comme dans le cas du mélangeur Egan.

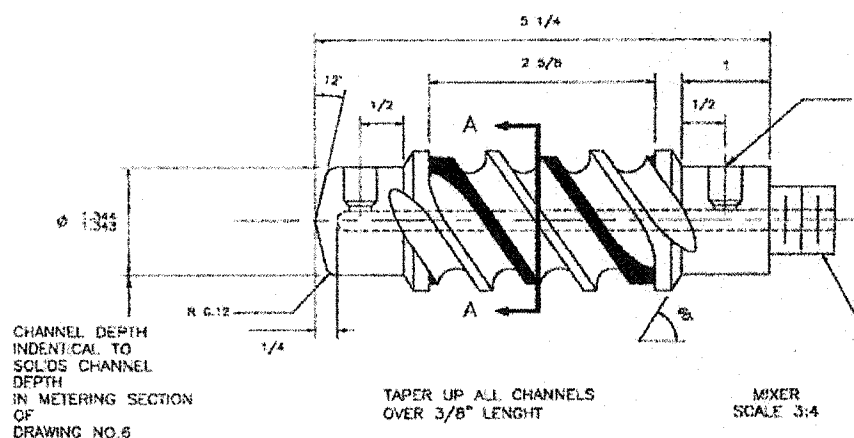


Figure 1-18: Tête de mélange "Spiral Maddock"

Cette tête de mélange fera l'objet de l'étude expérimentale et numérique. Etant une tête de mélange dispersive, nous nous intéresserons à ses performances dispersives par rapport à une vis simple sans tête de mélange.

1.3.8 Caractérisation de la qualité d'un mélange

La caractérisation complète de l'état de mélange nécessite la spécification de la taille, de la forme, de l'orientation et de la position de chaque particule, agrégat ou agglomérat de la composante mineure.

Pour beaucoup d'applications, une caractérisation complète du mélange n'est pas très importante. Dans ce cas, des méthodes simples peuvent être suffisantes. Les méthodes utilisées sont par exemple: la comparaison des couleurs par rapport au standard pour la caractérisation qualitative de l'homogénéité visuelle ou des mesures de certaines propriétés physiques (mécaniques).

Généralement pour quantifier la qualité du mélange, il faut examiner :

- l'uniformité brute de la composition du mélange
- la texture du produit
- la structure locale

Par l'uniformité brute, nous considérons une mesure quantitative de la qualité de la distribution de la phase mineure au sein de la pièce ou du système analysé. L'uniformité brute parfaite implique une concentration uniforme dans tous les échantillons observés. En prenant une uniformité brute parfaite pour des échantillons considérés, ces derniers peuvent avoir des textures différentes sous formes d'aspérités, de taches (présence de plus de pigments), de rayures etc..

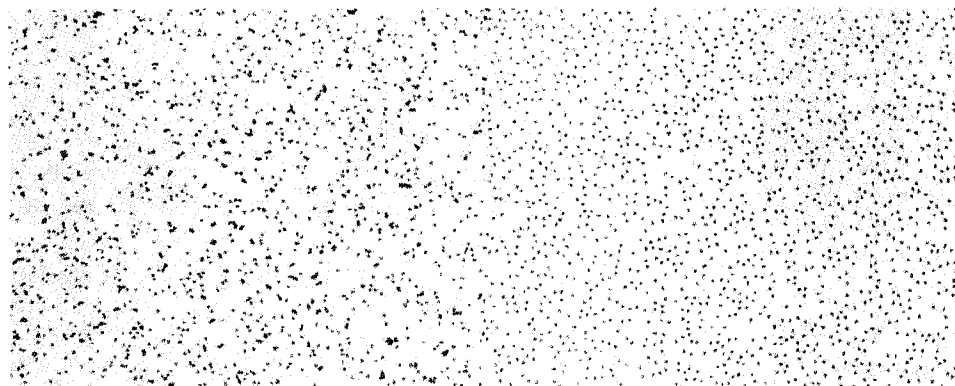


Figure 1-19: Schéma explicatif de deux échantillons avec l'uniformité brute identique (le même nombre de points noirs) et texture différente (à gauche aléatoire, à droite au moins une distance de 10 diamètres de points entre deux points) .(Tadmor, 1979)

La Figure 1-19, montre la différence entre l'uniformité de composition liée à l'opération de mélange et à la texture de l'échantillon. Deux échantillons sont observés, ils ont le même nombre de points donc la même uniformité produite, mais leur texture est complètement différente.

En premier lieu, l'échelle à laquelle nous examinons la composition de la non-uniformité est fondamentale. L'échelle d'observation est la taille de l'échantillon complet pour lequel nous analysons l'uniformité de la composition. Elle peut être définie comme un ordre de grandeur de longueur, de surface ou de volume. Pour mesurer la concentration de la phase mineure, nous devons préparer des petits échantillons (échantillons de test). Ces échantillons doivent être petits par rapport aux échantillons préparés pour les tests de l'uniformité et grands par rapport à la taille de la particule.

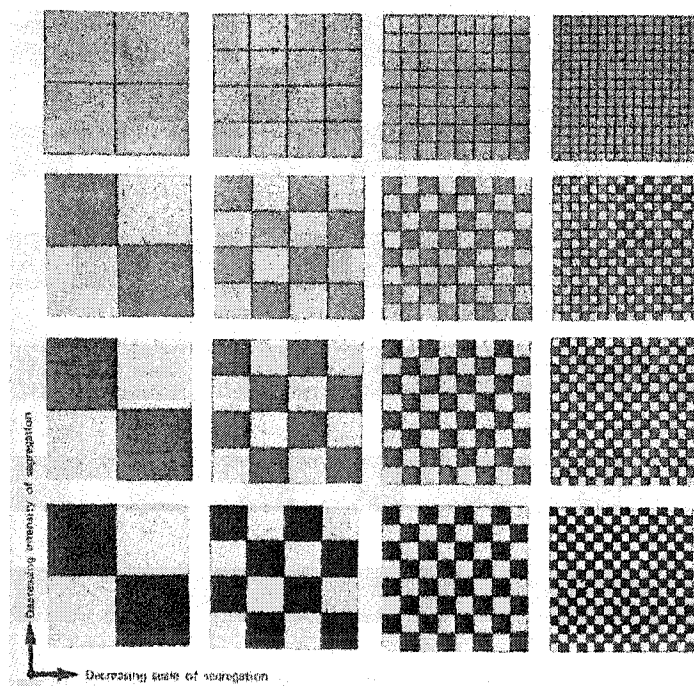


Figure 1-20: Illustration de l'échelle et de l'intensité de ségrégation (Tadmor, 1979)

Prenons un échantillon géométriquement ordonné (forme de carré) de couleurs noir gris et blanc pour analyser la caractérisation quantitative de la texture. La texture peut être complètement caractérisée par la mesure de la longueur des carrés et par l'intensité de la couleur des carrés (plus ou moins claire ou foncée). La longueur des carrés caractérise l'échelle de la ségrégation et l'intensité de la couleur présente l'intensité de la ségrégation.

Ce concept a été développé par Danckwerts (1953) pour caractériser l'état du mélange dans les réacteurs chimiques et ensuite suggéré pour caractériser la texture. En réduisant l'échelle et l'intensité de la ségrégation d'un mélange, un matériau dépourvu de texture sera obtenu. La Figure 1-20 met en évidence ce phénomène.

Par conséquent, faire la moyenne significative est nécessaire afin de rendre cette technique utilisable pour caractériser des textures complexes.

1.3.9 Méthodes de la caractérisation de la dispersion

Plusieurs méthodes de caractérisation de la dispersion sont exposées dans la littérature. Ces méthodes peuvent être classées en méthodes directes et indirectes. Il faut rappeler qu'à chaque méthode de caractérisation de la dispersion il est nécessaire d'associer une ou plusieurs techniques de préparation des échantillons. Hess (1991) a très bien élaboré toutes les techniques de préparation des échantillons. Au fur et à mesure de la présentation de ces méthodes de caractérisation de la dispersion, ces techniques de préparation des échantillons vont être rappelées.

1.3.9.1 Méthodes directes

L'analyse de la dispersion dans sa forme la plus simple, implique une inspection directe des particules dispersées dans les échantillons du système chargé. Selon le relief et la taille des particules, on peut employer la microscopie optique ou la microscopie électronique.

Les microscopes optiques, en mode de réflexion ou de transmission, permettent de caractériser normalement des agglomérats supérieurs à 10 μm (Figure 1-21). La distribution de taille est calculée à partir des images obtenues par différents microscopes en combinaison avec un analyseur d'images.

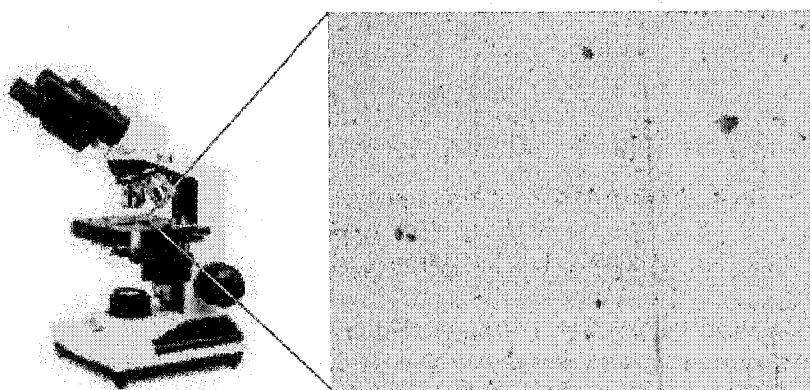


Figure 1-21: Photo d'un microscope optique et l'image de l'échantillon pris par ce microscope

Plusieurs techniques de caractérisation de l'état de dispersion ont été testées par Ess (1989) dans le cas de composites PP/CaCO₃. Il a montré que la technique la plus efficace était la microscopie de sections polies en lumière réfléchie. Des opérations de polissage ont été menées en utilisant les standards techniques de métallographie. Cette méthode permet de préparer facilement et rapidement les échantillons et d'analyser une surface importante de l'échantillon. Ess a analysé des agglomérats de CaCO₃ de taille supérieure à 10 μm . Compte tenu des différents indices de réflexion entre la matrice et les agglomérats, ces derniers sont facilement détectables à l'aide d'un microscope optique à réflexion. Cette technique s'est avérée très efficace pour caractériser la

dispersion globale du matériau. Lozano et al. (2002) ont utilisé la même méthode d'observation en appliquant une technique de polissage un peu modifiée (Figure 1-22).

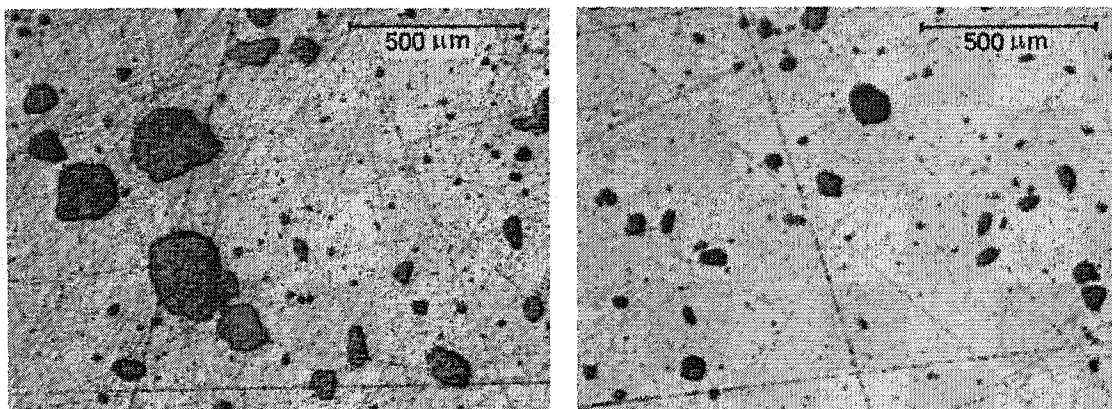


Figure 1-22: Photos obtenues par la microscopie optique des échantillons polis (Lozano, Lafleur et al., 2002)

Afin d'obtenir les échantillons bien polis, le polissage est réalisé sous l'eau froide, avec du papier ultra fin de carbure de silicium. Cette technique permet une observation très large de ces échantillons par microscopie optique. Une surface d'observation très large des échantillons par la microscopie optique est l'avantage le plus important de cette technique. Bories (1998) a caractérisé la dispersion à partir de l'observation d'un film contenant une faible concentration de charge minérale (5% en poids) préparé par le procédé d'extrusion-soufflage avec un microscope optique à transmission. Si cette technique est relativement facile à mettre en œuvre, elle nécessite toutefois une importante quantité de matière lors de la préparation des films. Dans le cas de l'examen d'un mélange préparé dans un mélangeur interne, il faut préparer plusieurs "lots" de matière dans cet appareil pour la mise en œuvre des films. Cette méthode repose sur l'hypothèse qu'au cours de la mise en forme (extrusion-soufflage) des films, l'état de dispersion n'est pas modifié.

Un des avantages de la microscopie optique est une bonne résolution des agglomérats surtout dans le cas des mélanges chargés avec du noir de carbone. La méthode n'est pas influencée par le type de polymère, bien que certains polymères soient plus difficiles à cryosectionner. Un autre avantage est la capacité d'analyser de très petits échantillons. Les inconvénients de la méthode incluent la difficulté et le temps assez long pour préparer les échantillons et également pour effectuer l'analyse optique. La méthode de microscopie optique n'est pas hautement quantitative. Il existe une certaine subjectivité pendant les mesures comme en sélectionnant les sections à analyser. Les sections très minces ont tendance à faire apparaître la meilleure dispersion. Pour éviter cela il faut s'assurer d'avoir des sections d'épaisseur uniforme.

La principale limitation de la microscopie optique est sa résolution. La loi de Rayleigh énonce en effet que le détail le plus petit que l'on peut observer est égal à la demi longueur d'onde de l'onde d'éclairement. Cela ne sert à rien d'augmenter le grossissement au delà de cette limite, on n'aboutit qu'à diminuer la netteté de l'image. En microscopie optique, en utilisant les ondes les plus courtes possibles (les ultraviolets) la limite est d'environ $0,25\ \mu\text{m}$. Puisque le photon ne permet pas d'aller plus loin, il est nécessaire d'utiliser une autre particule élémentaire, en l'occurrence l'électron. La longueur d'onde associée à l'électron est en effet très inférieure à celle du photon ultraviolet et la résolution finale est beaucoup plus élevée de l'ordre du nanomètre. Il existe deux variantes de la microscopie électronique:

- la microscopie à transmission
- la microscopie à balayage

Microscopie électronique à balayage (MEB): Les microscopes à balayage utilisent un faisceau très fin d'électrons accélérés par un canon à électron qui balaie point par point la surface de l'échantillon. Le principe du balayage consiste à explorer la surface de l'échantillon par lignes successives et à transmettre le signal du détecteur à un écran cathodique pour obtenir une image précise de la surface. Sous l'impact du faisceau, des

électrons rétrodiffusés et des électrons secondaires émis par l'échantillon sont recueillis sélectivement par des détecteurs qui transmettent un signal à un écran cathodique.

Suetsugu (1990) a analysés par MEB des échantillons cryosectionnés et des surfaces préparées par traitement plasma afin de quantifier la dispersion de carbonate de calcium dans la matrice de polypropylène.

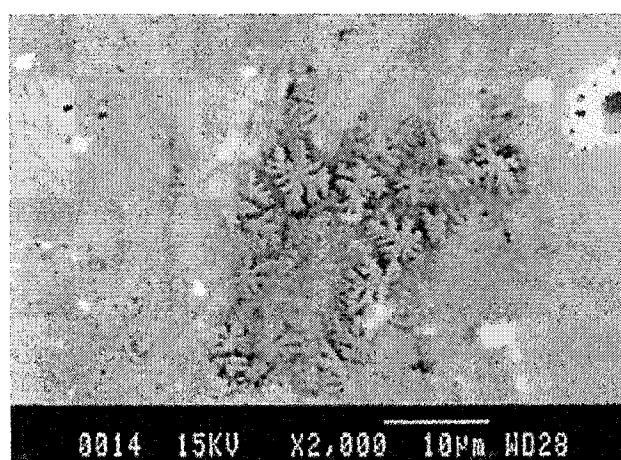


Figure 1-23: Photo MEB d'un échantillon de PP chargé avec 5% en poids de CaCO₃ (Lozano, 2003)

Un aspect intéressant de la microscopie électronique à balayage est une mise en évidence facile des cristaux. La longueur d'onde de l'électron est du même ordre de grandeur que les liaisons atomiques. Lozano et al. (2003) ont utilisé le MEB pour observer la présence de la phase β du polypropylène qui est étroitement liée à la qualité de la dispersion des charges de carbonate de calcium (Figure 1-23) en montrant à la fois que si la taille des agglomérats est plus petite la formation de la phase cristalline β du polypropylène sera plus importante.

Si le MEB permet une meilleure résolution que la microscopie optique, la détermination de la dispersion globale d'un matériau demeure toutefois plus longue qu'avec un

microscope optique. La préparation d'une surface par traitement plasma est délicate. Le temps d'attaque est un facteur très important lors de la révélation de la morphologie. Or, des temps de préparation (temps d'attaque) très longs peuvent entraîner la destruction des agglomérats.

La microscopie électronique à transmission (MET). Dans son principe, elle ressemble à la microscopie optique en lumière directe. Le faisceau d'électrons est émis par un canon à électron, focalisé sur l'échantillon et le traverse à l'aide de lentilles électromagnétiques. Les électrons sont plus ou moins absorbés et l'image se forme derrière l'échantillon sur un écran fluorescent. La MET est la méthode qui offre la résolution la plus élevée de toutes procédures microscopiques et elle est généralement limitée aux études de la microdispersion des agrégats de pigment primaire. La MET a été surtout utilisée pour analyser les mélanges d'élastomères (Hess, 1991).

Le plus grand avantage de la microscopie électronique à transmission par rapport aux autres méthodes appartient à la résolution (de l'ordre $0.1-0.2\text{nm}$) grâce à laquelle on peut distinguer des plus petits détails.

Les inconvénients de la microscopie électronique à transmission sont liés à la difficulté de préparation des échantillons, et au temps nécessaire pour cette préparation, car il faut utiliser des objets de petite épaisseur ($0,5\text{ nm}$) afin d'être le plus possible transparent aux électrons. La dispersion est très difficile à quantifier par rapport aux autres méthodes de caractérisation de la dispersion.

La radiographie par rayon X (Hess, 1991) est la technique la plus adaptée pour la résolution des agglomérats inorganiques ou des impuretés. Les appareils modernes industriels sont capables d'irradier des échantillons très larges de l'ordre de 20 cm et quelques centimètres d'épaisseur, selon leur composition. Les coefficients d'absorption de la charge étant très supérieurs à ceux du polymère, les régions occupées par le polymère transmettront les rayons sur un papier photosensible et seront noircies, tandis

que les particules de charge absorbant des rayons laisseront des tâches blanches sur le fond noir. Sur les positifs, la situation est inversée, le fond est blanc tacheté de points noirs. Couplées avec des analyseurs d'images, elles permettent de quantifier la dispersion.

Le plus grand avantage de la radiographie par rayon X est la capacité d'examiner les échantillons très larges en présence de charges inorganiques ou de contaminants. La caractérisation des échantillons larges est particulièrement importante quand on veut identifier des problèmes pour lesquels une petite quantité de charges inorganiques dans le mélange provoque les défauts du matériaux ou des problèmes d'apparence. Quand le repérage des différentes quantités de charges est très difficile par les techniques microscopiques ou les techniques d'analyse surfacique, la technique de radiographie par rayon X peut être une alternative.

L'inconvénient de cette technique est qu'elle est très longue à mettre en œuvre (temps pour préparer les échantillons microtomés et pour obtenir les microradiographies) et que son coût demeure élevé. L'autre inconvénient de cette technique, est qu'elle n'est pas adaptée pour caractériser la dispersion du noir de carbone.

Inspection visuelle de la surface; Cela comprend un très large spectre des méthodes qui sont utilisées pour évaluer visuellement la dispersion dans les élastomères, les plastiques et les peintures. Les surfaces coupées ou déchirées sont observées à l'œil nu ou par la microscopie (optique ou électronique). Cette technique de caractérisation de la dispersion est le plus souvent appliquée au cas de mesure de la dispersion du noir de carbone. Également, il existe des normes ASTM (ASTM D 2663) pour estimer visuellement la qualité de la dispersion de ce type de mélange ayant une valeur de 1 à 5 (plus le nombre est élevé, meilleure est la dispersion) (Hess, 1991).

Les méthodes d'inspection visuelle offrent des procédures simples, rapides et de coût bas. L'inconvénient évident de cette technique concerne une faible résolution de l'observation et une subjectivité très élevée de l'opérateur.

1.3.9.2 Méthodes indirectes

Il existe plusieurs méthodes indirectes pour caractériser la dispersion des charges parmi lesquelles on peut citer:

- les mesures de rugosité de surface par stylet
- les mesures optiques de rugosité
- les mesures de conductivité électrique

La méthode de la mesure de la rugosité de surface par stylet est basée sur le passage d'un stylet fin sur un échantillon afin de mesurer la rugosité de la surface causée par la présence d'agglomérats. Une surface lisse indique une bonne dispersion tandis qu'une surface rugueuse indique une mauvaise dispersion. Cette technique est détaillée dans la norme ASTM D2663, méthode C. La mesure de rugosité de surface est très précise, rapide et elle s'applique principalement aux élastomères (Hess, Chirico et al., 1980). Elle ne s'applique pas aux plastiques en raison des ruptures fragiles pouvant survenir lors de la préparation de l'échantillon. L'inconvénient principal de ce type de mesure est lié à la calibration de l'appareil qui nécessite une méthode microscopique.

La méthode de mesure optique de rugosité permet d'obtenir le même type de résultats que la méthode de mesure de rugosité de surface par stylet. Ebell et al. (1981) ont développé une technique basée sur l'analyse de l'image de champ foncé produite par un photomicroscope reflété afin de mesurer la dispersion du noir de carbone dans le caoutchouc. La méthode est basée sur la projection d'un faisceau lumineux de forme conique creuse sur la surface de l'échantillon. Le faisceau de lumière ne passe pas au travers de la lentille de l'objectif avant de traverser l'échantillon. Ceci entraîne qu'il n'y

a pas de diffraction de la lumière sur la lentille pour des surfaces parfaitement plates. Seules les irrégularités de la surface agissent en diffractant le centre, qui apparaît comme le repère lumineux sur le fond noir vu sur l'écran du moniteur. Cela produit l'intensité de la trace linéaire, ce qui est analogue à la trace de la rugosité par les mesures de rugosité de surface par stylet. Le balayage optique a été appliqué pour mesurer les protrusions surfaciques sur les bandes plastiques obtenues en extrusion. La méthode est basée sur le balayage du laser à travers une surface large suivant la longueur de la bande. Ce type de méthode peut être classé comme la méthode de mesures des défauts plutôt que la méthode de mesure de la dispersion. Il est souvent important de savoir si ces défauts sont liés à une mauvaise dispersion des charges ou une contamination dans le mélange.

La méthode de mesure de conductivité électrique est seulement applicable à des charges conductrices telles que le noir de carbone. Cette technique est très bien expliquée par Medalia (1986). Pour des faibles teneurs de noir de carbone dans le polymère, la conductivité est faible. La conductivité augmente avec la teneur en noir de carbone. La conductivité électrique est principalement reliée au degré de séparation des agglomérats. Plus la séparation des agglomérats est grande, plus la résistivité du composite augmente. Ces méthodes indirectes donnent une idée de l'état de dispersion, mais ne permettent pas d'accéder à la taille des agglomérats. Pour quantifier la dispersion, il faut des techniques microscopiques couplées à une analyse d'images.

1.3.10 Analyse d'image

Cette science a émergé rapidement pendant les derniers 20-25 ans. Un très grand nombre de logiciels d'analyse d'image commerciaux sont disponibles maintenant pour les mesures quantitatives des images obtenues par la microscopie optique, par la microscopie électronique à balayage et par la microscopie électronique à transmission.

Le facteur majeur de l'utilisation pratique de l'analyse d'image pour mesurer la dispersion est l'existence de la frontière bien démarquée et du contraste élevé entre les particules, les agrégats, les agglomérats et la matrice. Un fond uniforme et net est vivement désiré, bien que la plupart des logiciels d'analyse d'images ont la capacité de filtrer le bruit indésirable.

L'analyse d'image a été appliquée particulièrement pour mesurer les propriétés au niveau de la taille des particules et des agrégats des charges ou des autres pigments. Ces mesures sont plus en relation avec la caractérisation de la morphologie qu'avec la dispersion. Pour des volumes de charges faibles, les mêmes procédures que l'analyse d'image utilisées pour la taille des agrégats sont applicables pour l'analyse de la dispersion. La technique de préparation des échantillons peut grandement réduire les problèmes liés à l'analyse d'image. Les grandes étapes de l'analyse d'image sont:

- la saisie des images
- la soustraction du fond
- la binarisation et la mesure de la surface

Dans cette étude nous avons utilisé le logiciel "Sigma Scan Pro5[®]" pour faire l'analyse d'image. Au lieu de faire une soustraction du fond et une binarisation automatique les agglomérats sont détectés manuellement à l'aide d'une table digitalisante. Le logiciel nous permet ensuite de calculer les périmètres des agglomérats et ainsi de déduire le diamètre de chaque agglomérat.

L'avantage le plus significatif de l'analyse d'image par rapport aux autres procédures est la capacité d'analyser directement la taille et la distribution spatiale des particules, des agrégats et des agglomérats.

La difficulté de préparation des échantillons très chargés (noir de carbone) pour l'analyse d'image est un des inconvénients majeurs de cette procédure. Pour cela

l'analyse d'image est limitée à mesurer les différences de tailles d'agglomérations des particules.

1.3.11 Indices de dispersion

Avec le développement informatique durant ces dernières années, de nombreux logiciels de traitement d'image sont apparus. Ces logiciels traitent les images obtenues par les différentes techniques de microscopie. Les analyseurs d'image sélectionnent et dénombrent les particules dont la dimension est supérieure à une valeur donnée.

A partir de ces informations quantitatives sur le nombre d'agglomérats et leur dimension, il est possible de calculer une distribution de la taille, et divers indices de dispersion. De plus, il est possible de rendre compte de la texture de l'échantillon. On notera néanmoins qu'il est difficile d'analyser des systèmes très chargés.

1.3.12 Fraction surfacique d'agglomérats

La fraction surfacique ϕ_a d'agglomérats est obtenue par observation, à l'aide d'un microscope électronique à balayage, d'une surface d'un échantillon microtomé. Cette approche a été développée par Suetsugu (1990).

$$\phi_a = \frac{\pi}{4A_s\phi_v} \sum_{i=1}^N d_i^2 n_i \quad (1.15)$$

où A_s est la surface observée sous le microscope, ϕ_v la fraction volumique de la charge, d_i et n_i sont respectivement le diamètre et le nombre d'agglomérats. Lorsque l'indice de Suetsugu ($1 - \phi_a$) est proche de 0 on a une mauvaise dispersion et lorsqu'il tend vers 1, on a une bonne dispersion.

$$0 \leq 1 - \phi_a \leq 1 \quad (1.16)$$

1.3.13 Fraction relative d'agglomérats

Bories (1998) a développé l'expression d'un indice de dispersion des agglomérats dans les films obtenus par le procédé d'extrusion des films gonflés. Les échantillons de films sont observés à l'aide du microscope optique, et ensuite à partir des agglomérats observés, l'indice de dispersion est défini par l'équation :

$$f = \frac{\rho_f \pi \sum_i n_i d_i^3}{6A_s W_f \phi_v} \quad (1.17)$$

Cette méthode sera utilisée dans le cadre de cette thèse pour caractériser la dispersion des charges de carbonate de calcium (CaCO_3) dans la matrice de polypropylène. Elle sera détaillée dans le Chapitre II de ce manuscrit.

1.3.14 Les divers diamètres moyens

A partir de la connaissance des diamètres des agglomérats obtenus par l'analyse d'image (quelle que soit la microscopie utilisée), il est possible de calculer différentes moyennes, suivant la valeur de l'exposant j choisie.

$$d = \frac{\sum_i n_i d_i^j}{\sum_i n_i d_i^{j-1}}, \text{ avec } j \geq 1 \quad (1.18)$$

Les diamètres moyens les plus couramment utilisés sont :

- le diamètre moyen en nombre dn : $j = 2$
- le diamètre moyen en volume dv : $j = 3$

Plus l'exposant du numérateur est élevé, plus les grosses particules influencent la valeur du diamètre moyen

1.4 Evaluation numérique de la dispersion

1.4.1 Nombre d'écoulement

Le type d'écoulement est important pour l'évaluation du mélange. Certaines auteurs (Cheng et Manas-Zloczower, 1990, Gramann et Osswald, 1992, Osswald, 1998) ont utilisé "the flow number" pour déterminer localement le type d'écoulement.

$$\lambda = \frac{\gamma}{\gamma + \dot{\omega}} \quad (1.19)$$

Où γ est le taux de cisaillement, $\dot{\omega}$ est la valeur du second invariant du tenseur de vitesse de rotation

En produisant un écoulement de cisaillement (Figure 1-7), les particules sont sollicitées au maximum quand elles sont orientées à 45° par rapport à la direction d'écoulement, car les agglomérats de particules tournent au cours de l'écoulement. L'écoulement de cisaillement est facile à obtenir et le plus rencontré en extrusion.

L'écoulement recherché est l'écoulement élongationnel (Figure 1-8) où $\lambda = 1$ (idéal). Dans ce cas, les contraintes produites par l'écoulement orientent les particules à 0°. Les particules tendent de garder cette orientation et restent sollicitées en permanence par des forces d'élongation.

Par ailleurs si :

$\lambda = 0$ nous avons un écoulement rotationnel.

$\lambda = 0.5$ nous avons un écoulement de cisaillement pur.

1.4.2 Distribution des déformations

Plus la déformation appliquée sur la matière est importante, meilleure est la qualité du mélange distributif obtenue dans l'extrudeuse. La déformation totale subie sur une ligne de courant, pendant le temps t' peut être décrite par :

$$\gamma(t') = \int_0^{t'} \dot{\gamma}(t) dt \quad (1.20)$$

Où : $\dot{\gamma}$ est la valeur du taux de cisaillement à t . Le calcul de la déformation totale subie en extrusion est une opération complexe. Un calcul complet du polymère fondu doit prendre en compte la présence du lit solide. Le principe consiste à suivre une particule à partir du moment où elle quitte le lit solide et d'accumuler la déformation tout au long du parcours de la particule (Lidor et Tadmor, 1976). Pour calculer cette déformation totale nous avons besoin de connaître les champs de vitesses dans toute la géométrie.

Pinto et Tadmor (1970) ont montré que la moyenne des déformations totales (WATS) pouvait être utilisée comme un bon indicateur de la qualité du mélange. L'inconvénient de cette méthode, c'est que l'orientation initiale des particules n'est pas prise en compte.

$$WATS = \frac{\sum_{np} \gamma_i(t')}{np} \quad (1.21)$$

Où np est le nombre de particules.

1.4.3 Fonction de distribution de temps de séjour

La fonction de distribution de temps de séjour (FCDTS) peut être calculée numériquement en traçant le parcours de chaque particule et en mesurant le temps que passe chaque particule dans une extrudeuse ou dans un mélangeur. Pour calculer la FCDTS en respectant l'écoulement bouchon (le cas le plus défavorable) et le mélangeur parfait (le meilleur cas possible – réacteur parfaitement agité), Bigg (1975) a proposé un indice de mélange qui est en relation avec les deux courbes idéales et avec celles mesurées;

$$\beta = 1 - \frac{\Delta A_1}{\Delta A_2} \quad (1.22)$$

où, ΔA_1 est la différence de l'aire entre la courbe de la (FCDTS) du mélangeur parfait et le dispositif utilisé (extrudeuse ou mélangeur) (Figure 1-24). ΔA_2 est la différence de l'aire entre la courbe de la FCDTS du mélangeur parfait et celle de l'écoulement bouchon et elle est égale à 0.368. Pour un mélangeur parfait β est égal à 1, et pour un écoulement bouchon $\beta = 0$. La FCDTS du mélangeur parfait est définie par (Baird, 1995):

$$F(t) = 1 - e^{-t/\bar{t}} \quad (1.23)$$

où, $\bar{t}$ est le temps de séjour moyen. L'aire au-dessous de la FCDTS du mélangeur parfait nécessaire pour calculer ΔA_1 est donnée par,

$$A_{\text{parfait}} = \int_0^t (1 - e^{-t/\bar{t}}) d(t/\bar{t}) = \frac{t}{\bar{t}} + (e^{-t/\bar{t}} - 1) \quad (1.24)$$

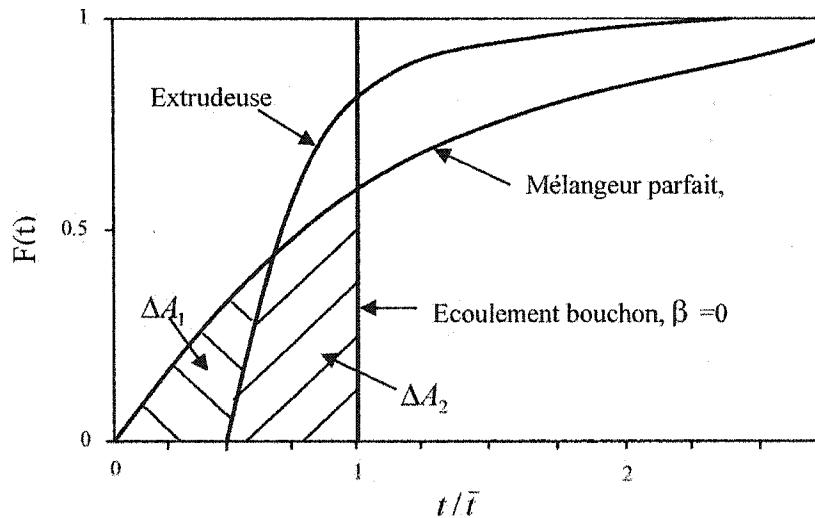


Figure 1-24: Fonction cumulée de distribution de temps de séjour dans différents systèmes

Rappelons que la distribution du temps de séjour est uniquement mesurée dans la direction principale de l'écoulement. Donc, l'indice de mélange β évalue seulement le mélange dans la direction axiale en négligeant le mélange transversal.

1.5 Conclusion partielle

Les polymères sont des matériaux qui ont une microstructure très complexe. Leur comportement macroscopique (rhéologique) est non-linéaire car la viscosité est une fonction du taux de cisaillement. Plusieurs modèles de viscosité existent, notamment le modèle d'Ostwald et de Carreau dont on se sert pour exprimer les équations du mouvement de ces polymères.

Une manière d'obtenir une pièce avec des caractéristiques améliorées ou bien moins chères, est de réaliser le mélange entre plusieurs polymères ou avec des charges. Dans ce cas, l'objectif est d'obtenir un mélange homogène, c'est à dire un mélange avec des propriétés identiques dans tout le volume. La compréhension des mécanismes de mélange nous permet de favoriser certains types d'écoulement comme l'écoulement élongationnel. Ces types d'écoulements sont obtenus à l'aide des machines de mise en forme des matières plastiques, dans notre cas des extrudeuses. Pour améliorer l'efficacité du mélange obtenu en extrusion, les extrudeuses peuvent être dotées de têtes de mélange.

Un point très important est de savoir caractériser les mélanges de polymères. La caractérisation expérimentale est un processus assez long, commençant par la préparation des échantillons, puis l'observation de ces échantillons, et finalement l'analyse des résultats. Il existe plusieurs indicateurs permettant d'exprimer la qualité de la dispersion à partir des images obtenus par microscopie.

Le protocole expérimental de la caractérisation de mélange est long, coûteux et des fois difficile à mettre en œuvre. Pour cette raison on utilise l'approche numérique qui nous permet aussi de faire la caractérisation du mélange. Cette étude est basée sur la détermination du type d'écoulement et du taux de déformation du mélange produit par le procédé de mise en forme des matières plastiques. La méthode numérique est un outil rapide pour caractériser le mélange mais limitée par rapport aux méthodes expérimentales. Elle présente une alternative ou une étude complémentaire par rapport à la méthode expérimentale. L'approche numérique sera développée au Chapitre III.

CHAPITRE II

2 Étude expérimentale

2.1 Préambule

Dans ce chapitre, une étude expérimentale de la caractérisation du mélange est présentée. Cette étude a pour objectif la préparation des échantillons, leur observation et la détermination quantitative de leur dispersion.

Avec cette étude expérimentale, nous avons essayé de mettre en évidence l'utilité bénéfique de la tête de mélange (Maddock spirale) sur la dispersion des différents types d'agglomérats dans les différentes matrices polymère. L'autre aspect de cette étude consistait à étudier l'influence de certains paramètres sur la dispersion. Parmi eux, les plus importants sont la vitesse de rotation de vis, la pression et la quantité de phase secondaire. Cette étude expérimentale n'est pas une étude approfondie, car elle est basée sur des modèles de mesure de la dispersion déjà existants. Ces mesures nous permettront de faire une première confrontation entre les résultats expérimentaux et les simulations numériques et aussi d'interpréter les tendances de ces simulations.

L'étude expérimentale consistait à effectuer plusieurs essais d'extrusion monovis, puis à caractériser la dispersion dans ces mélanges. Une extrudeuse Killion ($L/D=24$) de 45 mm de diamètre a été utilisée pour étudier l'effet de la tête de mélange Maddock spirale (voir *Chapitre I, section 1.3.7.2*) sur la dispersion.

Deux types d'essais ont été menés. La première étude avait pour but de déterminer la dispersion des différents types d'agglomérats dans une matrice de PVC en extrudant des bandes de forme rectangulaires. Le second type d'essais devait permettre de déterminer la dispersion des charges de carbonate de calcium (CaCO_3) dans une matrice de

polypropylène. Pour ce type d'expérimentation, deux méthodes de caractérisation de la dispersion sont employées en utilisant deux techniques pour la préparation des échantillons:

- La méthode de Bories (1998), où les échantillons sont obtenus à partir du film gonflé produit par l'extrusion soufflage,
- La méthode de Suetsugu (1990), où les échantillons sont obtenus par le polissage des pièces extrudées.

Remarque : Pour la suite du texte, le terme "tête de mélange" fera référence à une tête de mélange Maddock spirale.

2.2 Quantification de la dispersion des bandes de PVC extrudées

Le premier test effectué est l'extrusion de bandes de PVC, servant à la fabrication des bandes de chant pour l'industrie des meubles. Le problème consiste à déterminer la dispersion des pigments de couleur rouge dans le PVC. En fait, on observe la quantité des pics causés par la ré-agglomération des pigments rouges ou des autres particules sur la surface. Au niveau des pics, particules solides ou infondus dans les bandes de chant, c'est un type de mélange bien différent qui entre en jeu dont le mécanisme est de réduire la taille des agglomérats de toutes sortes. La réduction de taille des particules implique un mélange dispersif. La nature des pics rencontrés peut être très diverse de par la composition très complexe des formulations du PVC. Tout d'abord, le PVC lui-même possède une morphologie très spéciale. On peut distinguer 4 structures emboîtées les unes dans les autres. De la plus fondamentale à la plus complexe on retrouve : les particules primaires, les agglomérats de particules primaires, les grains de PVC et probablement les agglomérats de grains de PVC formant les unités visibles dans les poudres. Le schéma de la Figure 2-1 (d'après Huneault (1992)) illustre bien cette dernière structure.

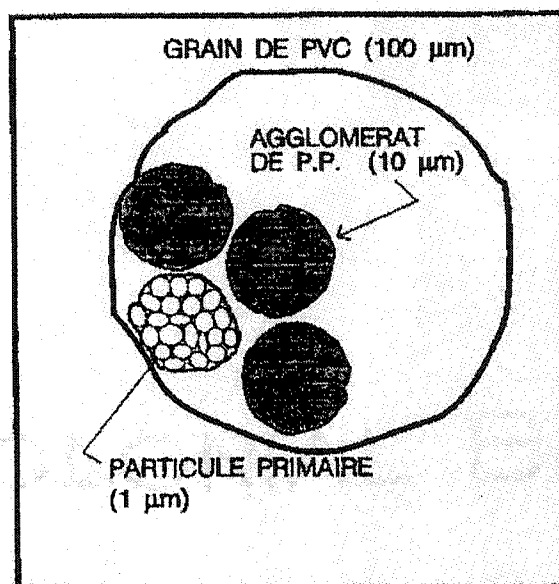


Figure 2-1: Schéma des grains et particules de PVC

Plusieurs additifs sont ajoutés au PVC. Dans notre application, les additifs et leur concentration sont montrés dans le tableau 1.

Tableau 2-1: Formulation du PVC utilisé

Additifs	Composition (%)
Stabilisant	1.2
Lubrifiant	1.2
Agent de mise en forme	1.2
Modifiant	6.3
Charge	4.2
Pigment	2.5

Dans le cadre de cette formulation, les pics peuvent être d'origine multiple : agglomérats de particules primaires non encore fusionnés, agglomérats de pigments et ainsi de suite. Bien sûr, une caractérisation poussée serait très intéressante mais nous nous intéressons ici au travail dispersif à effectuer afin de briser des agglomérats de toutes sortes. Cette approche, bien que très qualitative, nous permettra de vérifier les tendances obtenues lors des simulations numériques.

Nous avons extrudé des bandes de PVC en faisant varier les conditions opératoires. Trois variables d'entrée ont été utilisées afin d'étudier leur effet sur les variables de sortie. Les variables d'entrée les plus intéressantes sont *la vitesse de rotation* et la *configuration de vis* (vis avec tête de mélange et vis sans tête de mélange). Les vitesses de rotation varient de 15 rpm à 25 rpm. La pression dans la zone de pompage est de 18,9MPa (pour 15rpm), 19,7MPa (pour 19rpm), 20,5MPa (pour 20rpm) et 22,2MPa (pour 25rpm). La température d'extrusion est de 185°C dans toutes les sections de l'extrudeuse afin que le PVC soit bien fondu et qu'il ne se dégrade pas.

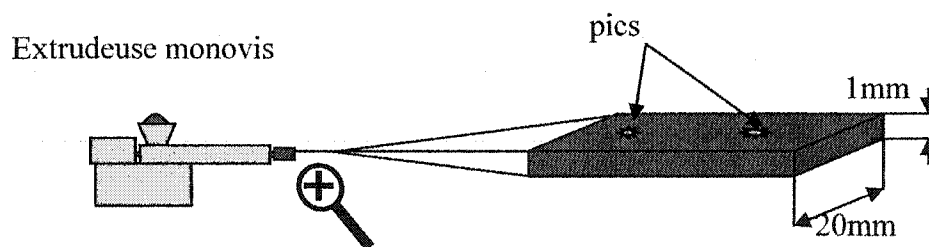


Figure 2-2: Schéma du montage de l'extrusion des bandes de PVC

La bande extrudée passe par le banc de refroidissement rempli d'eau à la température ambiante et est ensuite bobinée sur une enrouleuse. La bande obtenue de cette façon est prête à être examinée.

Sur la Figure 2-2, nous voyons le schéma de l'extrusion des bandes de PVC et les dimensions de l'échantillon à examiner.

La Figure 2-3 représente le diagramme de densité des pics en fonction de la vitesse de rotation et de la configuration de vis. Pour chaque condition d'extrusion, plusieurs mètres de bandes extrudées sont observés à l'œil nu. Nous avons essayé de faire le dénombrement jusqu'à 1000 pics. La longueur de bande est ensuite mesurée en déduisant la surface observée.

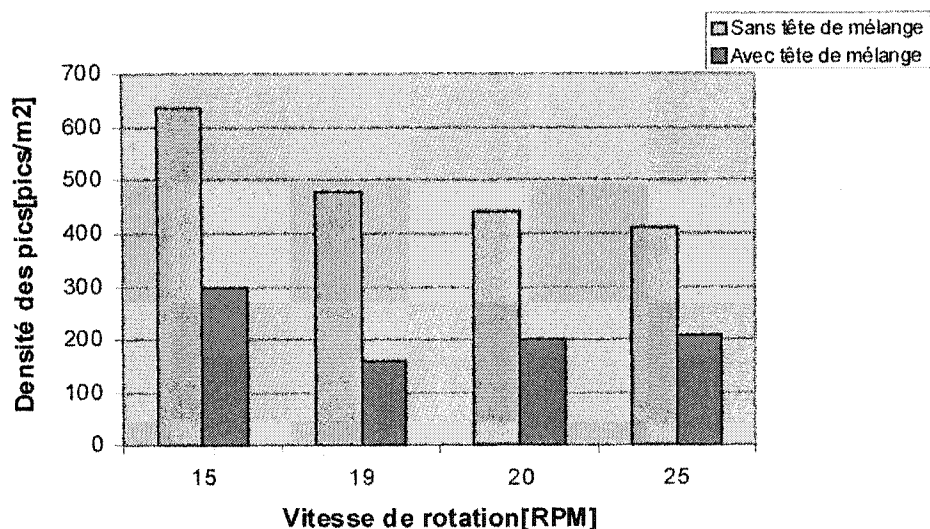


Figure 2-3: Diagramme de densité des pics en fonction de la vitesse de rotation et de la configuration de la vis

On peut constater qu'en augmentant la vitesse de rotation de la vis, on diminue la densité surfacique des pics, ce qui abouti à une meilleure dispersion. De plus, en travaillant avec la vis ayant une tête de mélange, on diminue considérablement le nombre de pics sur la surface, ce qui améliore nettement la dispersion.

2.3 Dispersion des charges de CaCO_3 dans la matrice de polypropylène (PP)

Le second type d'extrusion a été mené en utilisant du polypropylène (PP) mélangé avec des charges inorganiques de carbonate de calcium (CaCO_3). Une technique de mesure de dispersion a été développée dans le laboratoire du CRASP (Bories, 1998). Elle est basée sur l'observation au microscope optique de films obtenus par extrusion-soufflage.

Une autre technique utilisée pour caractériser la dispersion des charges de CaCO_3 dans la matrice de PP est celle développée par Suetsugu (1990), élaborée et adaptée par Lozano et al. (2003).

2.3.1 Matériaux utilisés

Le polypropylène utilisé est commercialisé par Montell (Canada) sous le nom PP SM 6100. La masse moléculaire de ce polymère est de 264 000 g/mol, son indice de fluidité est de 1,2 g/min et sa masse volumique est de 0,9 g/cm³.

Le carbonate de calcium CaCO_3 utilisé est le OMIYACARB UFT. C'est un carbonate de calcium ultra fin avec une surface traitée. Il est spécifiquement recommandé pour les applications où des propriétés de résistance à l'impact sont nécessaires. La taille des particules médianes, tout comme l'absence des impuretés, réduit significativement l'abrasion dans les mélangeurs et dans les extrudeuses. De plus, un traitement de la surface des charges facilite une meilleure dispersion.

Tableau 2-2: La taille typique des particules de CaCO_3

Diamètre médian [μm]	0.7
Coupe du sommet [μm]	4
Pourcentage des particules <2 μm	90
Pourcentage des particules <1 μm	65

La masse volumique du CaCO_3 est d'environ 2,7 g/cm³.

Tableau 2-3: Composition chimique du CaCO₃

Pourcentage de CaCO ₃ [%]	>98
Carbonate de magnésium [%]	<1
Acide insoluble [%]	>0.9
Traitement [%]	1

2.3.2 Préparation des films

Avant de commencer l'extrusion des films gonflés, il est nécessaire d'effectuer une dilution des granulés issus de l'extrusion bivis dont la concentration en minéraux est très élevée (50% de CaCO₃). Pour ce faire, une certaine quantité de granulés extrudés est mélangée avec du polymère vierge de manière à ramener la concentration du mélange à 5 % en masse de CaCO₃.

Pour la préparation des films par extrusion-soufflage, le polymère est introduit dans une extrudeuse monovis où il est fondu avant d'être extrudé à travers une filière annulaire (Figure 2-4). La gaine ainsi obtenue est gonflée au moyen d'une surpression d'air et simultanément étirée à l'aide de rouleaux d'entraînement. Le refroidissement de la bulle s'effectue par soufflage d'air au niveau d'un anneau extérieur, placé sur la filière.

Les films de polypropylène ainsi obtenus sont transparents. Dès lors, si des films d'un mélange de PP et de carbonate de calcium sont préparés, les agglomérats (de couleur blanche) pourront être détectés, soit à l'œil nu, soit par une technique de microscopie optique. Pour faciliter leur détection, les films doivent être translucides.

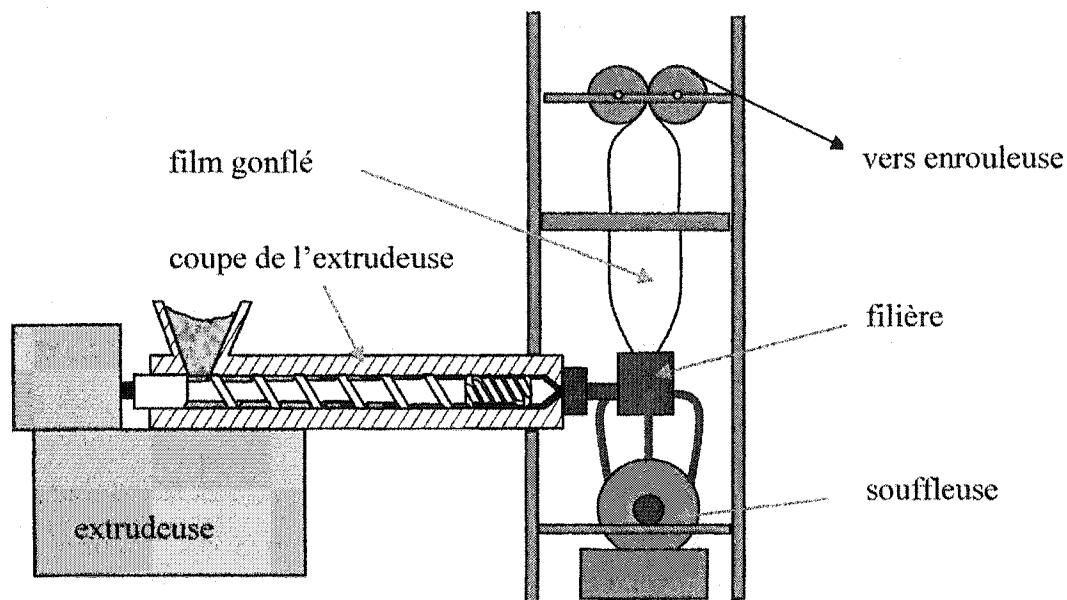


Figure 2-4: Extrusion-soufflage de films

Différentes vitesses de rotation (15rpm, 20rpm et 25rpm) de la vis sont utilisées afin de vérifier l'influence de ce paramètre sur la mesure de la dispersion. Le profil de la température dans l'extrudeuse est le suivant : 185°C dans la zone d'alimentation, 190°C dans la zone de fusion, 195°C dans la zone de pompage et 200°C à la sortie de l'extrudeuse. La pression est contrôlée par une ouverture (by-pass) au niveau de la filière. Pour chaque vitesse de rotation une pression est obtenue quand le by-pass est fermé et la seconde pression est obtenue en ouvrant le by-pass de telle façon que la pression diminue de moitié. Les pressions sont représentées sur le Tableau 2-4 (l'indice o signifie que le by-pass est ouvert et l'indice f signifie que le by-pass est fermé).

Tableau 2-4: Pressions en fonction des vitesses de rotation et position du by-pass

15o	15f	20o	20f	25o	25f
1.79MPa	3.58MPa	2.05MPa	4.10MPa	2.34MPa	4.68MPa

L'inspection visuelle du film permet de détecter les agglomérats de dimension supérieure à $200\mu m$ et donne une première information sur la dispersion obtenue. La présence d'un grand nombre de gros agglomérats ($300\mu m$ à 1 ou 2mm) est caractéristique d'une mauvaise dispersion. Ainsi, par une simple comparaison des films, il est possible de déterminer lequel a la meilleure dispersion. L'épaisseur des films est variable en raison de la présence des agglomérats. Toutefois, l'épaisseur moyenne ne dépasse pas $30\mu m$.

2.3.3 Mesure de la dispersion

Les films gonflés sont observés à l'aide d'un microscope optique *Nikon* (Optiphot 2). Une caméra *Sony* (CDD/IRIS RGB modèle DCX-151-A) est montée au-dessus de la lentille puis reliée à un ordinateur par l'intermédiaire d'une carte vidéo. On utilise deux logiciels d'acquisition d'image: Visilog et TCPro. Le premier est utilisé pour configurer le système d'acquisition de l'ordinateur avec la caméra, et le deuxième est utilisé pour l'acquisition d'images.

Pour chaque film gonflé, 15 à 20 échantillons de dimension approximatives 3cm par 2cm sont découpés de façon aléatoire. Chaque échantillon est alors placé entre deux lames de verre, à leur tour monté sur le plateau situé sous la lentille du microscope. En utilisant les molettes de déplacement du plateau, deux zones d'échantillons sont sélectionnées de manière aléatoire. Une image de chaque zone est saisie par la caméra, puis stockée dans l'ordinateur. Les grossissements de l'objectif et de la lentille permettent l'observation d'une surface de film de dimension 1.4 mm par 2.2 mm. Ainsi, 30 à 40 images sont traitées pour chaque mélange préparé. Sur la Figure 2-5, on voit l'image prise par une caméra montée sur le microscope optique.

Les images obtenues sont imprimées par le logiciel d'acquisition d'images sur le papier, puis on procède à l'étape de détection et de dénombrement des particules à l'aide d'une

table digitalisante. Plus les images sont claires, plus la tâche de détection des particules sera facilitée. Nous entourons les particules sur les photos par un stylet, qui sera ensuite détecté par la table digitalisante. Le logiciel *Sigma Scan Pro 5* ajoute le fond aux contours entourés, fait le dénombrement et calcule le périmètre et la surface de chaque particule. A partir de la surface, ce logiciel calcule le diamètre de chaque particule qui servira pour le calcul de l'indice de dispersion. Les particules à prendre en considération sont celles dont le diamètre est supérieur à $15\mu\text{m}$. En effet les particules plus petites n'ont pas une influence notable sur l'indice de dispersion. Nous avons pris l'hypothèse que la dispersion n'est pas influencée par la filière.

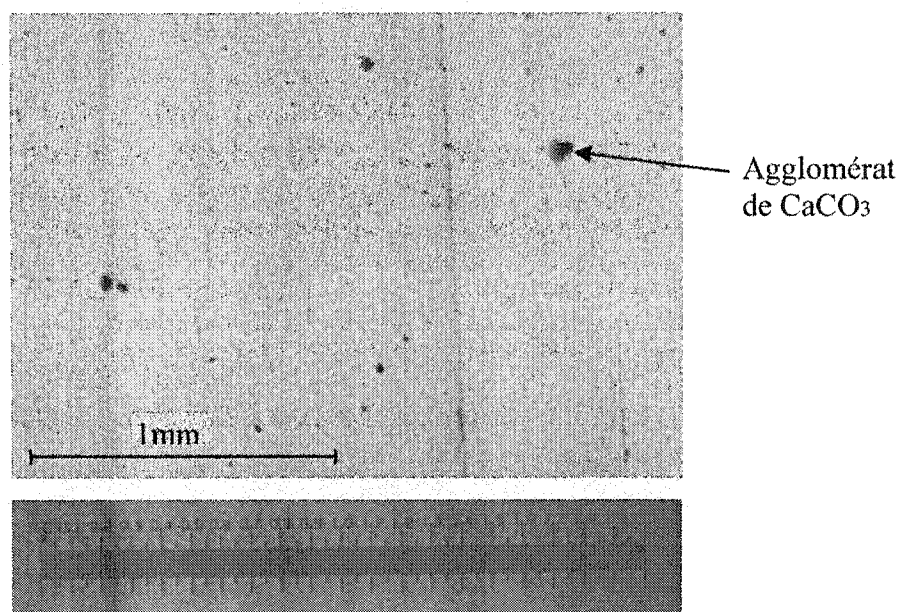


Figure 2-5: Image du film gonflé, pris par la caméra montée sur le microscope avec un grossissement X10 (en haut). La règle en bas de l'image mesure 2mm.

Les surfaces de tous les agglomérats obtenues par la procédure de dénombrement précédente, sont introduites dans un tableur (Excel). Si on suppose les agglomérats de forme sphérique, les diamètres sont alors facilement calculables. Des classes de diamètres sont définies, par exemple la classe de 15 à $20\mu\text{m}$, et le nombre

d'agglomérats par classe est déterminé. À partir de ces résultats, il est possible de tracer une distribution de taille.

A partir du diamètre des agglomérats, l'indice de dispersion (f) est défini par l'équation :

$$f = \frac{\rho_f \pi \sum n_i d_i^3}{6 A_s W_f \phi_v} \quad (2.1)$$

n_i : nombre de particules de diamètre d_i

A_s : surface totale observée

W_f : masse par unité de surface de film

ρ_f : masse volumique du film

ϕ_v : fraction volumique de charges dans le film (5% en masse représente 1.75% en volume).

Cet indice de dispersion représente le rapport entre la fraction volumique d'agglomérats de dimension supérieure à 15 μm et la fraction volumique de charges dans le film. Il s'agit donc d'une fraction volumique relative d'agglomérats. L'indice peut varier entre deux valeurs extrêmes.

$$(meilleure dispersion) \quad 0 \leq f \leq \frac{\rho_{CaCO_3}}{\rho_{agglomerat}} \quad (mauvaise dispersion) \quad (2.2)$$

La valeur 0 est atteinte, lorsque aucun agglomérat supérieur à 15 μm n'est observable sur le film. La valeur supérieure de l'indice de dispersion n'est pas connue et peut dépasser l'unité. En effet, un agglomérat est constitué par un réseau d'agrégats et de particules primaires maintenues ensemble sous l'effet des forces de cohésion. Il existe alors au sein de l'agglomérat un certain degré de vide occupé par l'air, par le polymère

ou bien par les deux. En conséquent, la masse volumique de l'agglomérat est inférieure à celle du carbonate de calcium.

La mesure de la masse par unité de surface est effectuée de la façon suivante. Trois échantillons de film de dimensions 10 cm par 10 cm sont découpés. Pour chacun d'entre eux, l'épaisseur est relevée en 3 points différents, puis une épaisseur moyenne est calculée. Chaque morceau de film est introduit dans un récipient préalablement étalonné, puis pesé à l'aide d'une balance analytique. La masse moyenne par unité de surface est calculée par la relation.

$$W_f = \frac{\sum_{i=1}^3 m_i}{\sum_{i=1}^3 S_i} \quad (2.3)$$

La masse volumique est calculée d'après la norme ASTM (*American Society for Testing and Materials*) D792-91, destinée à la mesure de masse volumique des plastiques solides.

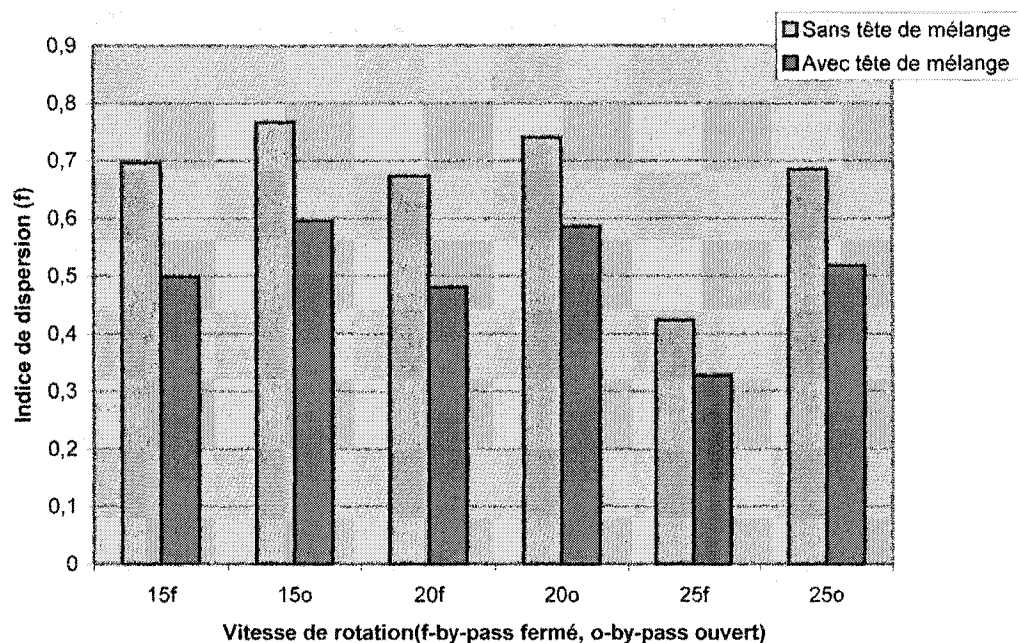


Figure 2-6: Indice de dispersion en fonction de la vitesse de rotation, de la pression et de la configuration de la vis.

La Figure 2-6 montre l'indice de dispersion en fonction des différentes conditions d'extrusion du $PP/CaCO_3$: la vitesse de rotation, la pression et la configuration de la vis.

On peut ainsi constater que l'effet lié à l'utilisation de la vis avec la tête de mélange est plus important lorsque l'on augmente la vitesse de rotation (Figure 2-6). L'effet de la vitesse sur la dispersion est moins important quand nous utilisons la vis simple avec le by-pass ouvert. La contre-pression joue aussi un rôle très important dans l'extrusion. On peut constater que pour les essais réalisés avec le "by-pass" fermé, la dispersion est meilleure. En effet, en augmentant la pression, les forces de cohésion des particules sont plus facilement atteintes. Une meilleure dispersion est obtenue en utilisant la tête de mélange pour une vitesse de rotation de 25 rpm avec le by-pass fermé.

2.3.4 Calcul de la dispersion par la méthode de Suetsugu

L'approche développée par Suetsugu (1990) a été aussi utilisée pour caractériser la dispersion des charges de carbonate de calcium (CaCO_3) dans une matrice de polypropylène (PP). Dans le cadre de cette caractérisation de la dispersion, nous utilisons 10% et 25% de CaCO_3 respectivement dans 90% et 75% de PP. Cette approche, déjà expliquée dans le *Chapitre I* (paragraphe 2.3.12) consiste à observer des échantillons polis avec un microscope électronique à balayage (MEB) ou un microscope optique à réflexion. Les échantillons sont préparés par polissage sous eau froide avec du papier ultra fin (Lozano, 2003). Le but du polissage est d'obtenir une surface lisse afin qu'elle puisse être observée par le MEB ou par le microscopie optique à réflexion. Une photographie d'un échantillon est montrée sur la Figure 2-7.

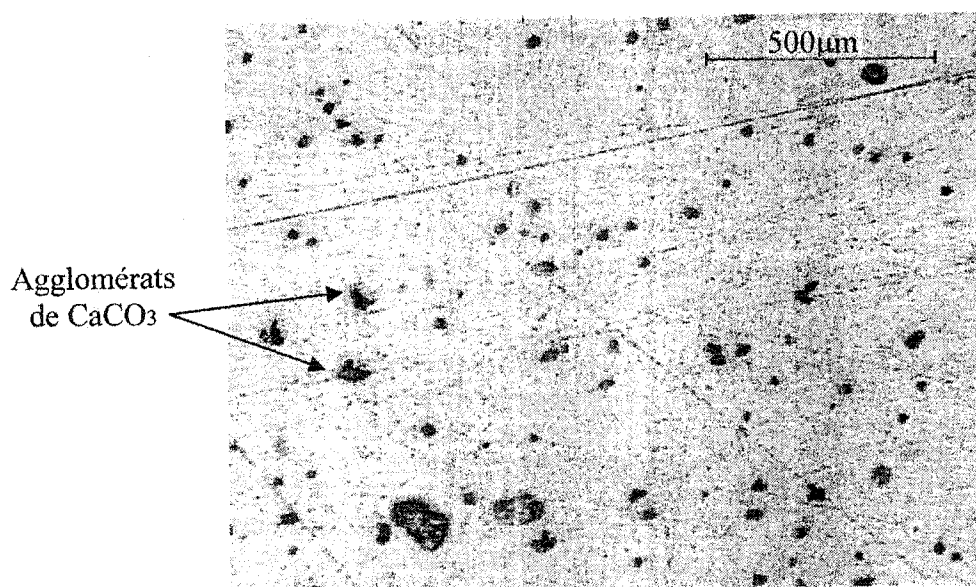


Figure 2-7: Echantillon de PP/ CaCO_3 obtenu par polissage

Comme dans le cas de la microtomie, les premières analyses permettent de conserver l'hypothèse que les grandes particules restent dans la matrice afin que le protocole soit valide pour l'évaluation de la dispersion.

Dans le cas du MEB, l'avantage du polissage par rapport à la microtomie est la vitesse de préparation des échantillons.

Le but de ce test comme dans les cas précédents, est de mettre en évidence l'effet bénéfique de la tête de mélange sur la qualité de la dispersion. Pour cela, nous avons fait des tests d'extrusion avec tête de mélange et sans tête de mélange (vis simple).

2.3.5 Préparation des échantillons

A partir du mélange extrudé de PP-CaCO₃, nous remplissons les cellules d'une grille qui est placée entre deux plaques en métal, recouverte du papier d'aluminium, afin d'éviter que la matière plastique colle au métal. Les plaques sont chauffées à 200°C pendant environ 10 minutes et l'échantillon est ensuite compressé pendant quelques secondes. Après cette phase, l'échantillon est de nouveau compressé mais à froid pendant quelques minutes.

Pour réaliser le polissage, l'échantillon est enrobé à l'aide d'une résine epoxy. Le polissage est ensuite réalisé par abrasion de couches minces de la résine et de l'échantillon. Le défaut principal du polissage est l'apparition de lignes de polissage s'il n'est pas réalisé correctement. Bien que le cycle de polissage soit long (environ 30 min), la possibilité de réaliser le polissage de plusieurs échantillons (6 ou 12 échantillons) à la fois réduit le temps moyen de préparation d'un échantillon.

2.3.6 Observation des échantillons

Un point fort de la méthode de Suetsugu est qu'elle autorise un choix de microscopie par MEB ou de microscopie optique à réflexion. Evidement, le MEB donne une meilleure résolution, ce qui permet d'être plus précis dans la détermination de la dispersion du CaCO_3 dans le PP. Mais, en contre partie, ce type de microscopie nécessite un temps d'observation plus important. Cependant, la microscopie optique à réflexion, reste plus facile à mettre en place, les photographies pouvant être prises plus rapidement mais ceci au détriment de la définition des images. Pour cette étude, la définition d'image obtenue par la microscopie optique à réflexion reste satisfaisante car nous ne détectons que les agglomérats de diamètre supérieur à $10\mu\text{m}$.

2.3.7 Calcul de l'indice de Suetsugu

Une fois que les photos sont prises, on procède à l'analyse d'image. Elle est réalisée comme lors de la caractérisation de la dispersion dans le cas de films gonflés (section 2.3.3), en utilisant une table digitalisante. A partir des surfaces des agglomérats, nous calculons les diamètres de ceux-ci qui serviront par la suite pour calculer l'indice de Suetsugu (IS).

Rappelons l'équation développée par Suetsugu

$$\phi_a = \frac{\pi}{4A_s\phi_v} \sum_{i=1}^N d_i^2 n_i \quad (2.4)$$

L'indice de dispersion de Suetsugu peut ainsi être exprimé de la façon suivante:

$$IS = 1 - \phi_a \quad (2.5)$$

Pour les deux concentrations des charges utilisées (10% et de 25%) la fraction volumique est calculée suivant l'équation:

$$\phi_v = \frac{V(CaCO_3)}{V(CaCO_3) + V(PP)} \quad (2.6)$$

Tableau 2-5: Résultats de la fraction volumique

PP/CaCO ₃ =90/10	$\phi_v=0.0357$
PP/CaCO ₃ =75/25	$\phi_v=0.04$

Pour un agrandissement $\times 40$, la surface observée par la microscopie optique à réflexion est de 185234,69 μm^2 . Environ une dizaine d'échantillons ont été observés pour chaque condition d'extrusion (avec ou sans tête de mélange) qui comportent chacun plusieurs centaines d'agglomérats. La vitesse d'extrusion dans ce type de tests est maintenue à 25rpm. Les résultats sont présentés dans le Tableau 2-6.

Tableau 2-6: Résultats de l'indice de dispersion de Suetsugu

	$\phi_a(10\%)$	$1-\phi_a(10\%)$	$\phi_a(25\%)$	$1-\phi_a(25\%)$
Avec tête de mélange	0,8833	0.1166	0.1975	0.8025
Sans tête de mélange	0,9615	0.0384	0.7874	0.2126

Rappelons aussi que:

$$\text{(mauvaise dispersion)} \quad 0 \leq 1 - \phi_a \leq 1 \quad \text{(bonne dispersion)} \quad (2.7)$$

Cette méthode nous a permis de mesurer la dispersion des charges pour des concentrations plus importantes par rapport à la méthode précédente. En utilisant la méthode de Suetsugu, comme dans les cas précédents, on constate que les essais réalisés avec la tête de mélange donnent une meilleure dispersion que pour une vis simple.

2.4 Conclusion partielle

Dans le cadre de cette étude expérimentale, nous avons essayé trois méthodes de calcul de la dispersion. La première méthode permet de caractériser la dispersion des différents types d'agglomérats dans la matrice de PVC en fonction de la configuration de la vis (avec ou sans tête de mélange) et de la vitesse de rotation. Cette méthode d'observation de la dispersion est la plus simple et ne demande aucun moyen d'observation. C'est donc une méthode très rapide de mesure de la dispersion. La méthode de mesure de la dispersion sur les films gonflés nous permet de mieux observer la dispersion des agglomérats de la phase secondaire dans la matrice. Cette technique est développée pour mesurer la dispersion de CaCO_3 dans la matrice de PP. Elle est limitée à des faibles concentrations des charges. Sinon, l'influence de la filière sur la dispersion est mise en question. Pour cette raison, nous avons utilisé une concentration de charges de 5% en poids en modifiant les différents paramètres d'extrusion. La fabrication des films gonflés rend cette méthode plus difficile à mettre en place. En revanche, l'observation des échantillons est simplifiée. La dernière méthode de caractérisation de la dispersion est plus complète que la méthode précédente pour la caractérisation de la dispersion des charges de CaCO_3 dans la matrice de PP. Elle nous permet de mesurer la dispersion même pour des concentrations de charges très élevées (d'ordre de 50% en poids de charges). L'inconvénient de cette méthode est qu'elle demande plus de temps pour la préparation des échantillons.

La vitesse de rotation de vis améliore la dispersion des agglomérats dans la matrice, surtout lors de l'utilisation de la tête de mélange. Ce paramètre joue un rôle moins important quand le by-pass est ouvert (dépression créée par l'ouverture du by-pass) et si nous utilisons une vis sans tête de mélange. Ce phénomène pourrait être expliqué par le temps de résidence plus long. Nous pouvons remarquer sur le graphique (Figure 2-6) que la pression joue aussi un rôle important. En la diminuant (pendant l'ouverture du by-pass), la dispersion sera moins bonne. Finalement, la tête de mélange s'est avérée être un dispositif de très grande importance pour l'amélioration de la dispersion. Dans tous les essais menés durant cette étude, l'efficacité de la tête de mélange par rapport à une vis simple est évidente.

CHAPITRE III

3 Méthode des éléments frontières (BEM)

3.1 Préambule

L'objectif de ce chapitre est de faire une présentation de la Méthode des Eléments Frontières (Boundary element method ou BEM) et de son application dans le cas des écoulements de polymères fondus. La transformation des équations différentielles de Stokes en équations intégrales nous amène à une relation dite de Somigliana. Cette dernière relation, qui est à la base de la méthode des éléments frontières est ensuite exprimée sous une forme discrète. La forme discrète de cette relation est assemblée en un système matriciel. En appliquant les conditions aux limites, ce système est réarrangé, puis résolu. Des difficultés sont à noter, notamment l'apparition de singularités pour des nœuds de collocation et des nœuds de location en contact, qui est causée par la forme en $1/r^n$ de la solution fondamentale. L'application des transformations de cette intégrale est nécessaire pour résoudre ce problème.

Puisque les polymères ont un comportement non linéaire, nous aurons la présence de termes sources dans les équations constitutives. Les termes non-linéaires provoquent l'apparition d'une intégrale volumique qui limite les avantages de la Méthodes des Eléments Frontières. Des méthodes disponibles sont présentées, afin de transformer cette intégrale en une intégrale d'une dimension inférieure.

3.2 Application des méthodes numériques en extrusion

Les solutions des problèmes des écoulements non-Newtoniens visqueux sont compliquées dues aux non-linéarités inhérentes de l'équation constitutive. Une meilleure

compréhension du comportement de ces fluides visqueux serait sans doute bénéfique dans la mise en forme des matières plastiques. Les recherches en mécanique des fluides non-Newtoniens pendant une longue période se sont concentrées sur le développement des équations constitutives pour des matériaux et la résolution des problèmes. Relativement très peu de problèmes peuvent être résolus analytiquement. On fait donc souvent appel aux méthodes numériques pour résoudre les problèmes de géométries réelles et complexes. Les méthodes les plus souvent utilisées sont *la Méthode des Différence Finies* (FDM), *la Méthode des Eléments Finis* (FEM), *la Méthode des Volumes Finis* ainsi que *la Méthode des Eléments Frontières* (BEM). De nombreux auteurs ont utilisé ces méthodes numériques pour modéliser les écoulements en mise en forme des matières plastiques et on peut citer certains travaux appliqués à l'extrusion.

La méthode des différence finies est basée sur la discrétisation directe des équations différentielles constitutives pour un nombre de points (nœuds) suffisant dans le domaine résultant dans un système matriciel à matrice bande. Kim et White (Kim and White, 1989) ont utilisé la méthode des différences finies qu'ils appellent *flow analysis network* (FAN) dans le cas de la modélisation des écoulements en extrusion bivis.

Dans la méthode des éléments finis, le domaine est discrétisé en plusieurs éléments et la distribution de chaque variable physique (déplacements, contraintes) sur un élément est entièrement déterminée à l'aide de fonctions d'interpolation des valeurs nodales. Comme les propriétés du matériaux sont spécifiées au niveau des éléments, la méthode des éléments finis peut être appliquée aussi facilement aux matériaux non-homogènes qu'aux matériaux homogènes. Manas-Zloczower et al. (1989), (1994) ont utilisé la méthode des éléments finis pour modéliser les mélangeurs internes du type Branbury. Ils ont analysé l'efficacité du mélange en calculant la dispersion et la distribution dans ce mélangeur.

La méthode des éléments frontières a aussi été appliquée dans la modélisation des écoulements dans la phase de plastification en extrusion. Plusieurs auteurs ont utilisé cette méthode avec succès parmi lesquels on peut citer les travaux de Davis(1995), Rios (1999), Florez (2002) etc.

3.3 Base de la méthode des éléments frontières

La méthode des éléments frontières est une méthode numérique, dont les bases datent de la fin du siècle dernier. La première approche pour la résolution par la méthode des équations intégrales des problèmes d'élasticité a été établie par Somigliana en 1886 (Brebbia, 1992). Cette forme est toujours utilisée aujourd'hui, pour la résolution de problèmes en contraintes-déplacements dans la méthode des éléments frontières. La plus importante innovation, dans les calculs par intégrales frontières, apparaît avec le développement des moyens informatiques et l'acceptation industrielle des techniques numériques, comme la méthode des éléments finis dans les applications techniques. Enfin, sur les bases des travaux de Jawson (1963), Brebbia (1978) a développé la méthode en l'appelant la méthode des éléments frontières.

L'avantage de la méthode des éléments frontières par rapport à la méthode des éléments finis et d'autres méthodes (volumes finis, différences finies) est le gain d'une dimension en maillage. Donc, dans les problèmes en 3D, on utilisera un maillage surfacique et dans les problèmes en 2D, on utilisera un maillage de contour.

La résolution des problèmes d'écoulements de fluides newtoniens incompressibles est très précise, car on calcule à la fois le champ de vitesse $\vec{U}$ et le vecteur contrainte $\vec{T}$.

D'après Zheng (1991), on a un gain de 90 à 95 % de temps CPU entre la méthode des éléments frontières et la méthode des éléments finis dans les problèmes où il y a déplacement de matière. Le remaillage en éléments finis est beaucoup plus compliqué.

La méthode des éléments frontières nous offre des possibilités de faire facilement le suivi des particules lors d'un écoulement sans faire le remaillage.

Une des possibilités les plus intéressantes est qu'il est facile de combiner la technique avec d'autres méthodes numériques (méthode des éléments finis, quadrature de Gauss,...).

Lorsque le matériau est non homogène, la méthode des éléments frontières s'applique plus difficilement.

Dans la méthode des éléments frontières, la matrice du système formé est pleine par rapport à la méthode des éléments finis qui possède une matrice bande symétrique ce qui facilite l'inversion et le stockage du système.

3.4 Comparaison par rapport aux éléments finis

Le but du présent paragraphe est de montrer que, contrairement à l'idée reçue, la méthode des éléments frontières n'est pas beaucoup moins coûteuse que celles des éléments finis (Perchat, 2000).

Considérons le cas simple d'un cube de cote 1 discrétisé de manière régulière par des triangles ou des tétraèdres linéaires. Soit h la taille de maille qui sera notre unité commune. On peut effectuer les estimations suivantes :

Tableau 3-1: Tableau comparatif entre BEM et FEM

	BEM	FEM
Nombre de nœuds	$\approx \frac{6}{h^2}$	$\approx \frac{1}{h^3}$
Nombre d'éléments	$\approx \frac{12}{h^2}$	$\approx \frac{5}{h^3}$
Stockage de(s) matrice(s)	2 matrices pleines	1 matrice creuse
Nombre de réels double précision	$2 \frac{9 \times 36}{h^4}$	$\approx \frac{27}{h^5}$
Assemblage du système linéaire Nombre d'opérations	$2 \frac{9 \times 36}{h^4}$	$\approx \frac{10}{h^3}$
Résolution du système linéaire	solveur direct	solveur itératif avec préconditionneur diagonal
Nombre d'opérations	$\approx \frac{6^3}{h^6}$	$\approx \frac{768 \times C}{h^{5.25}}$

Ainsi l'assemblage des deux matrices pleines nécessaire dans le cadre de la méthode des éléments frontières coûte clairement plus cher que l'assemblage matriciel en éléments finis. Celui-ci est d'ailleurs d'autant plus coûteux que les schémas d'intégration utilisés doivent généralement être plus riches en raison des singularités en $\frac{1}{r^\alpha}$.

Il apparaît aussi que le coût de la résolution des systèmes linéaires, étape cruciale dans les logiciels d'éléments finis, est aussi plus élevé dans le cadre de la méthode des éléments frontières. Toutefois on peut relativiser cette dernière estimation car :

1. Pour des problèmes de petite ou moyenne taille, la méthode reste généralement très compétitive, la constante $768 \times C$ associée à la résolution itérative étant élevée.
2. Des techniques issues des méthodes de décomposition de domaines, basées sur la construction de complément de Schur, peuvent permettre de réduire le coût asymptotique de la résolution directe.

Pour des problèmes à géométries tournantes, on n'a pas besoin de remaillage avec BEM du moins en approche Lagrangienne.

3.5 Formulation intégrale aux frontières

Lors de la modélisation des écoulements en mise en forme des matières plastiques, on utilise les hypothèses suivantes : l'écoulement est laminaire avec le nombre de Reynolds inférieur à 1, donc on néglige les effets d'inertie par rapport aux termes de viscosité. D'autre part, nous négligeons les termes de pesanteur car les termes de viscosité sont beaucoup plus importants par rapport aux termes de pesanteur (Nombre de Stokes $\gg 1$). La chaleur dissipée par la viscosité et les transferts de chaleur seront négligés, l'écoulement sera supposé isotherme.

L'obtention des équations intégrales se fait à partir des équations de conservation de la dynamique des milieux continus, notamment de la conservation de la quantité de mouvement et de la conservation de la masse. Les équations d'équilibre statique s'expriment de la façon suivante (Bird, Stewart et al., 1960) :

$$\frac{\partial p}{\partial x_i} = \left(\frac{\partial \tau_{ij}}{\partial x_j} \right)_{\text{Newtonien}} \quad (3.1)$$

Si l'écoulement est supposé incompressible, l'équation de continuité se réduit à :

$$\frac{\partial u_i}{\partial x_i} = 0 \quad (3.2)$$

Le dérivée du tenseur de contrainte peut être encore exprimé à l'aide de ses composantes newtonienne et non-newtonienne,

$$\frac{\partial \sigma_{ij}}{\partial x_j} = -\frac{\partial p}{\partial x_i} + \left(\frac{\partial \tau_{ij}}{\partial x_j} \right)_{\text{Newtonien}} + \left(\frac{\partial \tau_{ij}}{\partial x_j} \right)_{\text{Non-Newtonien}} \quad (3.3)$$

En remplaçant la partie newtonienne de l'équation (3.3) par celles de l'équation (3.1) nous obtenons :

$$\frac{\partial \sigma_{ij}}{\partial x_j} = \left(\frac{\partial \tau_{ij}}{\partial x_j} \right)_{\text{Non-Newtonien}} \quad (3.4)$$

avec σ_{ij} composantes du tenseur des contraintes, x_j coordonnées suivant la direction j .

Au départ nous allons considérer que le comportement du polymère fondu en écoulement est Newtonien. Les termes non Newtoniens ne seront considérés que dans la section 3.10. Donc, l'équation d'équilibre 3.4 se réduit à:

$$\frac{\partial \sigma_{ij}}{\partial x_j} = 0 \quad (3.5)$$

Soit Ω un domaine contenant un fluide newtonien, homogène et isotrope en équilibre statique et $\Gamma = \partial\Omega$ sa frontière. Multiplions maintenant (3.5) par la $i^{\text{ème}}$ composante du vecteur vitesse virtuel u_i^* puis intégrons sur le volume Ω :

$$\int_{\Omega} \frac{\partial \sigma_{ij}}{\partial x_j} u_i^* d\Omega = 0 \quad (3.6)$$

En intégrant par partie et en utilisant le théorème de Green-Ostrogradski, on obtient :

$$\int_{\Omega} \frac{\partial \sigma_{ij}}{\partial x_j} u_i^* d\Omega = \int_{\Gamma} (\sigma_{ij} n_j) u_i^* d\Gamma - \int_{\Omega} \sigma_{ij} \frac{\partial u_i^*}{\partial x_j} d\Omega \quad (3.7)$$

avec n_j $j^{\text{ème}}$ composante de la normale à la surface Γ orientée vers l'extérieur. En utilisant la définition du vecteur contrainte:

$$T_i = \sigma_{ij} n_j \quad (3.8)$$

et la symétrie du tenseur des contraintes on peut montrer que :

$$\sigma_{ij} \frac{\partial u_i^*}{\partial x_j} = \sigma_{ij} \dot{\varepsilon}_{ij}^* \quad (3.9)$$

avec $\dot{\varepsilon}_{ij}^* = \frac{1}{2} \left(\frac{\partial u_i^*}{\partial x_j} + \frac{\partial u_j^*}{\partial x_i} \right)$ composantes du tenseur de vitesse de déformations. Il vient en

remplaçant dans (3.7) :

$$\int_{\Omega} \sigma_{ij} \dot{\varepsilon}_{ij}^* d\Omega = \int_{\Gamma} T_i u_i^* d\Gamma \quad (3.10)$$

encore appelé *Principe des Puissances Virtuelles*. Nous allons maintenant utiliser le théorème de réciprocité de Maxwell-Betti (Brebbia et Dominguez, 1992) tel que :

$$\int_{\Omega} \sigma_{ij} \dot{\varepsilon}_{ij}^* d\Omega = \int_{\Omega} \sigma_{ij}^* \dot{\varepsilon}_{ij} d\Omega \quad (3.11)$$

Soit encore :

$$\int_{\Omega} \frac{\partial \sigma_{ij}^*}{\partial x_j} u_i d\Omega = \int_{\Gamma} T_i^* u_i d\Gamma - \int_{\Gamma} T_i u_i^* d\Gamma \quad (3.12)$$

La solution σ_{ij}^* dite « fondamentale » est choisie comme celle résultant du chargement ponctuel sous un effort unitaire d'un domaine infini Figure 3-1).

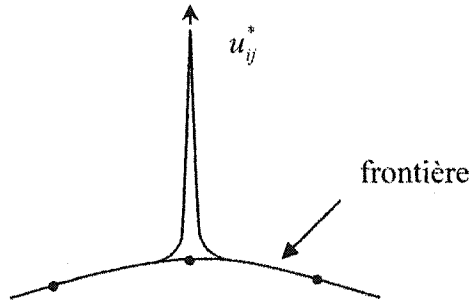


Figure 3-1: Représentation graphique de la solution fondamentale

$$\frac{\partial \sigma_{ij}^*}{\partial x_j} + \Delta^i e_i = 0 \quad (3.13)$$

avec Δ^i chargement unitaire appliqué au point 'I' dans la direction du vecteur unitaire e_i . Δ^i est la fonction de Dirac définie comme suit :

$$\Delta^i = \delta(\vec{x} - \vec{x}_I) = \begin{cases} 0 & \text{si } \vec{x} \neq \vec{x}_I \\ \infty & \text{si } \vec{x} = \vec{x}_I \end{cases} \quad \text{et} \quad \int_{\Omega} \Delta^i d\Omega = 1 \quad (3.14)$$

La solution fondamentale peut alors s'exprimer comme suit :

$$u_j^* = u_{ij}^* e_i \quad (3.15)$$

$$T_j^* = T_{ij}^* e_i \quad (3.16)$$

où u_{ij}^* et T_{ij}^* sont les $j^{\text{ème}}$ composantes du champ de vitesse et du vecteur contrainte résultant d'un chargement unitaire dans la direction i . Pour les fluides Newtoniens, incompressibles, elles sont données par les équations (3.20) et (3.21). On peut montrer alors que :

$$\int_{\Omega} \frac{\partial \sigma_{ij}^*}{\partial x_j} u_i d\Omega = - \int_{\Omega} \Delta' u_i e_i d\Omega = -c_{ij}^I u_i^I \quad (3.17)$$

$$\text{avec } c_{ij}^I = \begin{cases} \delta_{ij} & \text{si } I \text{ est un point interne au domaine } \Omega \\ \frac{1}{2} \delta_{ij} & \text{si } I \text{ est un point de la frontière } \Gamma \text{ et si } \Gamma \text{ est régulière en } I \end{cases}$$

avec δ_{ij} symbole de Kronecker défini par :

$$\delta_{ij} = \begin{cases} 1 & \text{si } j = i \\ 0 & \text{si } j \neq i \end{cases} \quad (3.18)$$

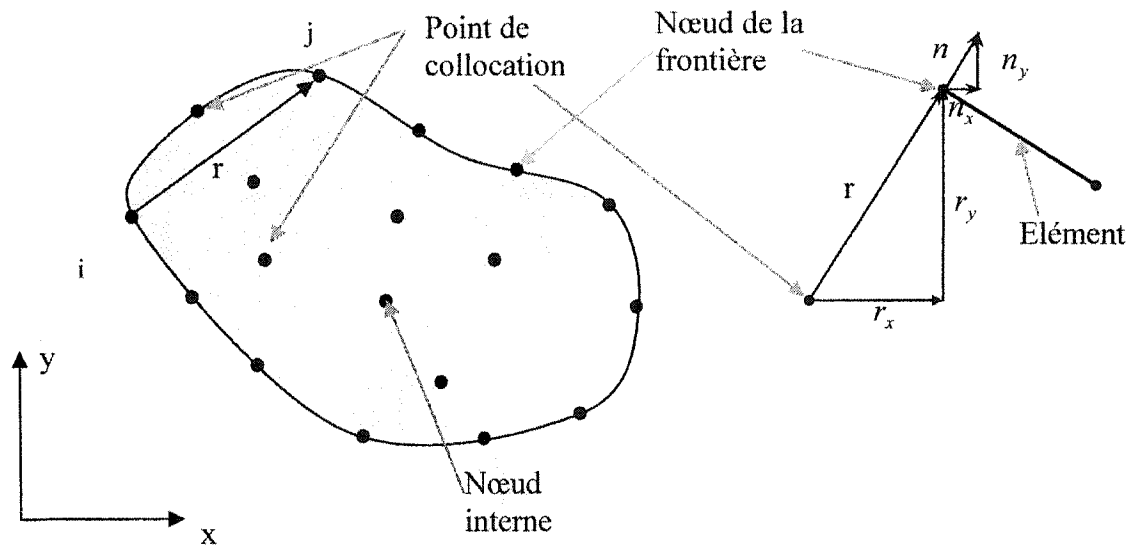


Figure 3-2: Schéma du maillage de domaine par la méthode des éléments frontières

Finalement on obtient la relation de Somigliana :

$$c_{ij}^I u_i^I + \int_{\Gamma} T_{ij}^* u_j d\Gamma = \int_{\Gamma} u_j^* T_j d\Gamma \quad (3.19)$$

Cette relation n'est valable que pour un solide élastique ou un fluide newtonien. Sur la Figure 3-2, un schéma de maillage par la méthode des éléments frontières est montré.

Les points de collocation " i " représentent les points des sources ou les points où nous faisons le calcul. Ces points peuvent se trouver sur la frontière (points externes) ou à l'intérieur du domaine (points internes). Les points des locations " j " représentent les nœuds de la frontière relatifs aux nœuds des éléments sur lesquels les conditions limites sont appliquées.

Les solutions fondamentales dans le cas des équations de l'élasto-staticité nous permettent de calculer les solutions fondamentales pour un fluide newtonien incompressible (Annexe 2). Alors, les solutions fondamentales en 2D s'écrivent :

$$\begin{aligned} u_{ij}^* &= \frac{1}{4\pi\mu} \left[\ln\left(\frac{1}{r}\right) \delta_{ij} + r_{,i} r_{,j} \right] \\ T_{ij}^* &= -\frac{1}{\pi r} r_{,i} r_{,j} r_{,n} \end{aligned} \quad (3.20)$$

Pour le cas en 3D, ces équations s'écrivent :

$$\begin{aligned} u_{ij}^* &= \frac{1}{8\pi\mu r} [\delta_{ij} + r_{,i} r_{,j}] \\ T_{ij}^* &= -\frac{3}{4\pi r^2} r_{,i} r_{,j} \end{aligned} \quad (3.21)$$

Où r est la distance euclidienne entre le point courant et le point de collocation X^i .

$$r = \sqrt{(x - x_i)^2 + (y - y_i)^2 + (z - z_i)^2} \quad (3.22)$$

$r_{,j}$ est la dérivée de la distance r par rapport à la direction x_j . Elle est définie par :

$$r_j = \frac{\partial r}{\partial x_j} = \frac{r_j}{r} = \frac{x_j - x_i}{r} \quad (3.23)$$

La dérivée de la distance par rapport à la normale s'écrit :

$$\frac{\partial r}{\partial n} = \frac{\partial r}{\partial x_j} n_j \quad (3.24)$$

3.6 Discrétisation et formulation éléments frontières

La numérotation des éléments le long des frontières est faite de telle sorte que les normales se trouvent orientés vers l'extérieur du domaine. La numérotation le long d'une surface externe se fait dans le sens trigonométrique et la numérotation le long d'une surface interne se fait dans le sens des aiguilles d'une montre.

Dans le cadre de cette thèse, plusieurs types d'éléments en 2D comme en 3D sont utilisés. Les simulations pour le calcul non-Newtonien seront réalisées en 2D à cause de la complexité du problème. Par contre, dans le cas des calculs Newtoniens, les simulations sont effectuées en 3D. Dans les deux cas, les éléments linéaires et quadratiques seront utilisés. En augmentant l'ordre de ces éléments, tout en gardant le même nombre d'éléments, on améliore le niveau de précision.

Les valeurs de u et T en tous points d'un élément peuvent être définies à partir de leurs valeurs nodales dans cet élément. On effectue une discrétisation similaire à celle effectuée dans le cadre d'une méthode éléments finis en posant :

$$u(x) = \sum_{k=1}^{Nel} u_k N_k(x) \quad \text{et} \quad T(x) = \sum_{k=1}^{Nel} T_k N_k(x) \quad (3.25)$$

$N_k(x)$ est la fonction d'interpolation associée au nœud k de l'élément. N_{el} est le nombre de nœuds par élément. Ces fonctions d'interpolation s'écrivent différemment selon le type d'élément utilisé. Bien que dans cette étude, les premières simulations soient réalisées pour des écoulements Newtoniens, nous allons commencer à décrire les éléments 2D afin d'avoir un ordre de complexité logique et croissant.

3.6.1 Maillage 2D

Parmi les éléments que nous avons utilisés en 2D, nous trouvons les éléments linéaires continus et discontinus et les éléments quadratiques (1D), (Figure 3-3).

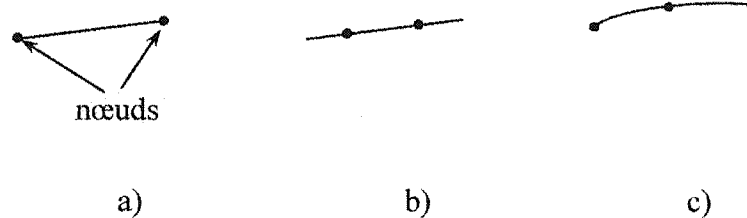


Figure 3-3: Eléments 1D; a) linéaires continus, b) linéaires discontinus et c) quadratiques

Les éléments linéaires sont sûrement plus pauvres au niveau de l'interpolation mais plus simples à mettre en place. Notamment, l'application des éléments linéaires discontinus dans l'implémentation de la technique de multi-domaines (voir la section 3.8) s'est avérée très utile, afin de simplifier le calcul sans perdre en précision. Ce type d'éléments nous permet de n'avoir que deux sous domaines ayant un nœud commun ce qui simplifie énormément l'assemblage des matrices du système (Figure 3-4a). Par contre, si nous avons utilisé des éléments linéaires continus (Figure 3-4b), nous aurions eu quatre sous domaines ayant le même nœud. Dans le cas des éléments quadratiques, les nœuds à l'extrémité auront 4 éléments communs et par contre les nœuds au milieu auront 2 éléments en commun.

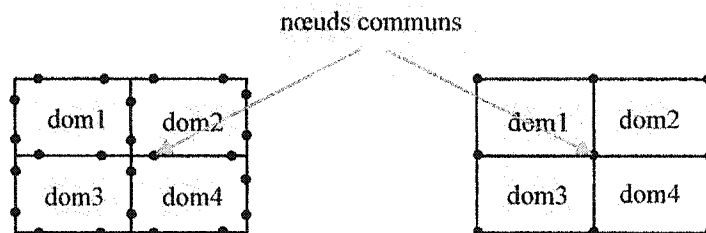


Figure 3-4: Maillage multi domaine 2D; a) éléments discontinus, b) éléments continus

Aussi, en utilisant les éléments linéaires ou quadratiques continus, après assemblage nous allons obtenir des systèmes d'équations surdéterminés (Popov et Power, 1996). Il existe plusieurs manières de traiter cette surdétermination. Le système peut être converti en un système carré fermé, en utilisant les équations normales. Cependant, cette méthode empire le nombre de conditionnement du système final des équations et provoque l'obtention de problèmes mal conditionnés.

Une autre alternative est de résoudre directement le système surdéterminé en utilisant la décomposition des valeurs singulières (Press, 1992) ou en utilisant des algorithmes de minimisation basés sur la méthode des moindres carrés ou des gradients conjugués. Cependant, comme dans tous les cas d'équations non-linéaires ayant plus d'équations que d'inconnus, la solution n'est pas nécessairement unique. Une façon d'éviter l'ennui en ayant plusieurs solutions est donc d'utiliser les éléments discontinus.

3.6.2 Éléments linéaires discontinus 1D

La frontière est divisée en N_{elt} éléments sur lesquels les vitesses et les vecteurs contraintes varient linéairement. Chaque élément possède deux points de calcul

Par rapport aux éléments linéaires continus où nous exprimons les valeurs de vitesse et de traction le long des éléments à partir de leur valeurs aux extrémités des éléments,

pour les éléments linéaires discontinus nous devons exprimer ces valeurs de vitesses et de tractions respectivement à partir de leurs valeurs nodales u^a, u^b, T^a et T^b (voir la figure 5).

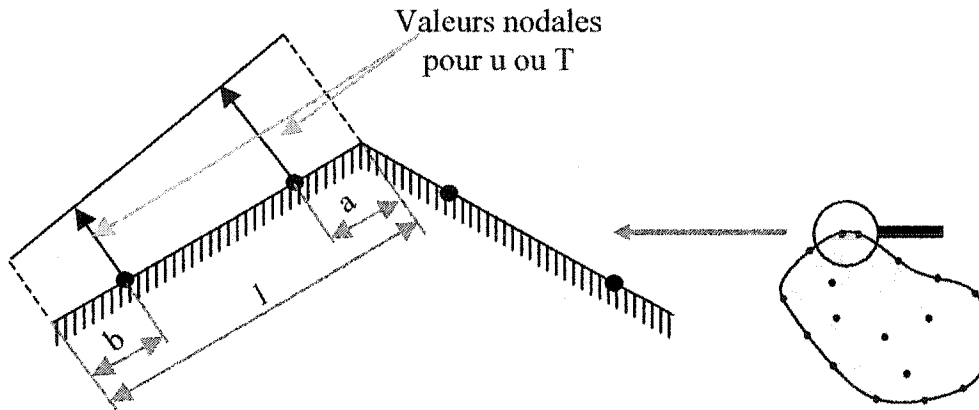


Figure 3-5: Eléments discontinus 1D

Les vitesses et les vecteurs contraintes u et T sont définies comme suit:

$$u(\xi) = [N_1 \quad N_2] Q \begin{Bmatrix} u^a \\ u^b \end{Bmatrix} \quad (3.26)$$

$$T(\xi) = [N_1 \quad N_2] Q \begin{Bmatrix} T^a \\ T^b \end{Bmatrix} \quad (3.27)$$

$$Q = \frac{1}{l-a-b} \begin{bmatrix} l-b & -a \\ -b & l-a \end{bmatrix} \quad (3.28)$$

où les fonctions d'interpolations sont représentées sur la Figure 3-6 et s'écrivent :

$$N_1 = \frac{1}{2}(1-\xi) \text{ et } N_2 = \frac{1}{2}(1+\xi) \quad (3.29)$$

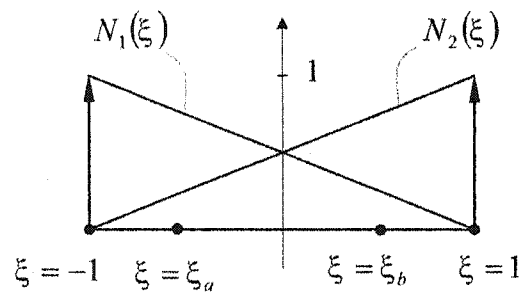


Figure 3-6: Fonctions d'interpolations dans le domaine de référence

3.6.3 Éléments quadratiques 2D

Dans le cas de calcul 3D on effectue un maillage (triangulation ou quadrangulation) surfacique. Sur la Figure 3-7, un élément quadratique incomplet (sans nœud au centre) est présenté.

On notera : $u_k = (u_k^1, u_k^2, u_k^3)$ et $T_k = (T_k^1, T_k^2, T_k^3)$ les vecteurs vitesses et contraintes au nœud k . Dans cette étude nous utiliserons surtout les éléments quadratiques avec $N_{el}=8$.

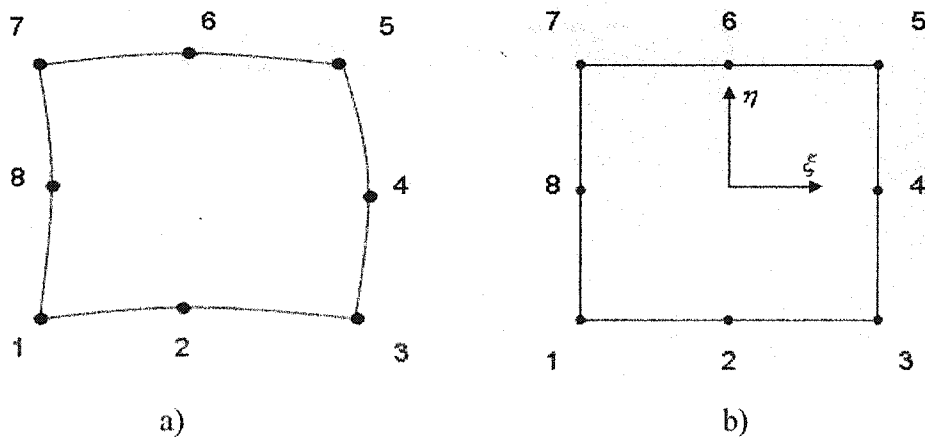


Figure 3-7: Élément quadratique incomplet de la frontière du maillage volumique: a) repère physique, b) repère de référence

Les fonctions d'interpolation $N_k(x)$ pour un élément quadratique incomplet sont données dans l'Annexe 2.

Dans le cadre des éléments frontières, il est plus pratique d'exprimer les différents champs sur chacun des éléments et de travailler avec les matrices plutôt qu'avec une notation indicielle. Sur chaque élément, on exprime la vitesse et le vecteur contrainte comme suit :

$$u = N_k \cdot u_k \quad T = N_k \cdot T_k \quad (3.30)$$

où u_k et T_k représentent respectivement les champs de vitesse et le vecteur contrainte sur un nœud d'élément. Dans le cadre d'une discrétisation de Γ en quadrangles linéaires (à 8 nœuds), nous avons :

$$N_k = \begin{pmatrix} N_1 & 0 & 0 & N_2 & 0 & 0 & N_3 & 0 & 0 & N_8 & 0 & 0 \\ 0 & N_1 & 0 & 0 & N_2 & 0 & 0 & N_3 & 0 & 0 & N_8 & 0 \\ 0 & 0 & N_1 & 0 & 0 & N_2 & 0 & 0 & N_3 & 0 & 0 & N_8 \end{pmatrix} \quad (3.31)$$

$$\begin{aligned} u_k &= (u_1^x, u_1^y, u_1^z, u_2^x, u_2^y, u_2^z, u_3^x, u_3^y, u_3^z, \dots, u_8^x, u_8^y, u_8^z) \\ &= (u_1^1, u_1^2, u_1^3, u_2^1, u_2^2, u_2^3, u_3^1, u_3^2, u_3^3, \dots, u_8^1, u_8^2, u_8^3) \end{aligned} \quad (3.32)$$

3.7 Assemblage et résolution des systèmes

L'expression discrète de la relation de Somigliana (3.19) s'écrit:

$$c^i u^i + \sum_{j=1}^{Nbelt} \left[\int_{\Gamma_j} T^* N_k dS \right] u^j = \sum_{j=1}^{Nbelt} \left[\int_{\Gamma_j} u^* N_k dS \right] T^j \quad (3.33)$$

Cette dernière représentant les 3 équations relatives à un chargement unitaire appliqué au point de colocation $1 \leq i \leq Nbnoe$ dans les 3 directions de l'espace. $Nbnoe$ est le nombre total des nœuds. L'intégration numérique des termes de l'équation (3.33) mène alors à :

$$c^I u^I + \sum_{j=1}^{NN} \overline{H}^{ij} u^j = \sum_{j=1}^{NN} G^{ij} T^j \quad (3.34)$$

Dans le cadre d'une interpolation P1,Q1 (ou encore de degré plus élevé P2, Q2,...) des variables u et T , l'indice NN représente le nombre de nœuds, tandis que dans le cas d'une interpolation constante par éléments P0 ou Q0, NN représente alors le nombre d'éléments.

Pour plus de détails sur l'intégration numérique, on se reportera à la section (3.7).

Posons :

$$H^{ij} = \begin{cases} \overline{H}^{ij} & \text{si } i \neq j \\ c_{ij}^I + \overline{H}^{ij} & \text{si } i = j \end{cases} \quad (3.35)$$

Remarque: Si I est le point de la frontière et que la frontière Γ n'est pas régulière à ce point, nous devons calculer c_{ij}^I par la relation :

$$c_{ij}^I = \frac{\theta}{2\pi} \quad (3.36)$$

où θ est l'angle de la frontière au point source I . Cependant, ce paramètre n'est pas calculé aux points sources de la frontière car c'est un coefficient de la diagonale de la matrice H . Pour les problèmes des écoulements des fluides newtoniens incompressibles, les coefficients diagonaux de la matrice H sont calculés par des considérations de mouvement de corps rigide (cf. paragraphe 3.8).

Les matrices H^{ij} et G^{ij} sont rectangulaires, de taille $(3,3*NeI)$, ($NeI=1$ pour une interpolation Q0, $NeI=4$ en Q1, etc). L'équation (3.34) pour le point de collocation I devient :

$$\sum_{j=1}^{NN} H^{ij} u^j = \sum_{j=1}^{NN} G^{ij} T^j \quad (3.37)$$

Les contributions de tous les points de collocations peuvent être assemblées sous forme matricielle pour donner le système global. On obtient ainsi un problème en vitesse et en vecteur contrainte.

$$Hu = GT \quad (3.38)$$

En introduisant les conditions aux limites (u ou T connue sur chaque nœud), nous formons le système d'équation :

$$[A]\{x\} = \{b\} \quad (3.39)$$

Prenons un exemple très simple pour expliquer l'assemblage de ce système. Sur la Figure 3-8, est schématisé le maillage d'un domaine Ω avec différentes conditions limites imposées.

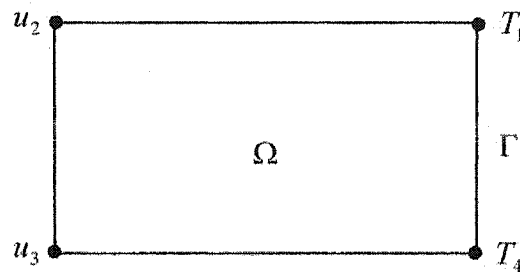


Figure 3-8: Schéma de maillage simplifié avec des conditions limites imposées

Le système d'équations (3.38) pour ce maillage s'écrit sous la forme matricielle suivante:

$$\underbrace{\begin{bmatrix} H_{11} & H_{12} & H_{13} & H_{14} \\ H_{21} & H_{22} & H_{23} & H_{24} \\ H_{31} & H_{32} & H_{33} & H_{34} \\ H_{41} & H_{42} & H_{43} & H_{44} \end{bmatrix}}_H \underbrace{\begin{bmatrix} u_1 \\ u_2 \\ u_3 \\ u_4 \end{bmatrix}}_u = \underbrace{\begin{bmatrix} G_{11} & G_{12} & G_{31} & G_{41} \\ G_{21} & G_{22} & G_{23} & G_{42} \\ G_{31} & G_{32} & G_{33} & G_{43} \\ G_{41} & G_{42} & G_{43} & G_{44} \end{bmatrix}}_G \underbrace{\begin{bmatrix} T_1 \\ T_2 \\ T_3 \\ T_4 \end{bmatrix}}_{T'} \quad (3.40)$$

Les vitesses connues aux nœuds 2 et 3, sont échangées avec les tractions de ces nœuds du vecteur (Zheng, 1991) ce qui entraîne l'échange des colonnes des matrices [H] et [G] correspondant à ces nœuds. Cela nous permet d'obtenir un système matriciel $[A]*[x]=[D]*[CL]$, où le vecteur [x] est composé des inconnues. Si nous multiplions la matrice [D] et le vecteur [CL] (les conditions limites), nous allons obtenir le vecteur (Zheng) et le système final des équations (3.40).

$$\underbrace{\begin{bmatrix} H_{11} & -G_{12} & -G_{13} & H_{14} \\ H_{21} & -G_{22} & -G_{23} & H_{24} \\ H_{31} & -G_{32} & -G_{33} & H_{34} \\ H_{41} & -G_{42} & -G_{43} & H_{44} \end{bmatrix}}_A \underbrace{\begin{bmatrix} u_1 \\ T_2 \\ T_3 \\ u_4 \end{bmatrix}}_x = \underbrace{\begin{bmatrix} G_{11} & -H_{12} & -H_{13} & G_{14} \\ G_{21} & -H_{22} & -H_{23} & G_{24} \\ G_{31} & -H_{32} & -H_{33} & G_{34} \\ G_{41} & -H_{42} & -H_{43} & G_{44} \end{bmatrix}}_D \underbrace{\begin{bmatrix} T_1 \\ u_2 \\ u_3 \\ T_4 \end{bmatrix}}_{CL} \Rightarrow \underbrace{\begin{bmatrix} H_{11} & -G_{12} & -G_{13} & H_{14} \\ H_{21} & -G_{22} & -G_{23} & H_{24} \\ H_{31} & -G_{32} & -G_{33} & H_{34} \\ H_{41} & -G_{42} & -G_{43} & H_{44} \end{bmatrix}}_A \underbrace{\begin{bmatrix} u_1 \\ T_2 \\ T_3 \\ u_4 \end{bmatrix}}_x = \underbrace{\begin{bmatrix} b_1 \\ b_2 \\ b_3 \\ b_4 \end{bmatrix}}_b \quad (3.41)$$

[A] est une matrice pleine et ce système matricielle (3.41) peut être résolu en utilisant la méthode de Gauss pivot ou par décomposition LU. Il existe déjà plusieurs librairies avec des sous-programmes existantes pour résoudre ce type de système linéaire. Dans cette étude, nous utilisons la librairie LAPACK (Anderson, Bai et al., 1999).

3.8 Technique de sous-domaines

Dans la section précédente, nous avons vu l'application de la méthode des éléments frontières dans le cas des milieux homogènes type fluides Newtoniens. Dans la littérature BEM, on trouve très souvent des références qui mènent à la division du domaine d'intégration en plusieurs plus petits domaines. Le but de cette division a deux raisons : premièrement, de résoudre les problèmes qui impliquent des régions avec des caractéristiques physiques différentes ou avec les propriétés différentes du matériau, deuxièmement, d'atteindre une meilleure approximation des géométries complexes.

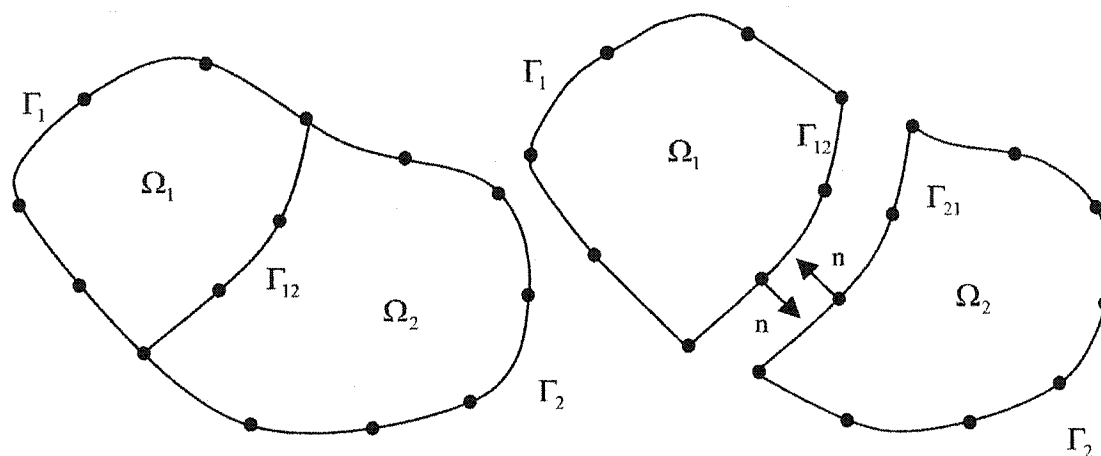


Figure 3-9: Exemple de maillage et de décomposition

Dans plusieurs cas, quand nous avons un milieu non homogène, ce domaine peut alors être divisé en plusieurs sous-domaines et la méthode des éléments frontières peut être appliquée à chacun de ces sous-domaines. Le système final des équations pour le domaine complet peut être obtenu par l'introduction des conditions de continuité des vitesses et des contraintes aux interfaces communes des sous régions.

Considérons les deux sous-domaines Ω_1 et Ω_2 de la Figure 3-9. Nous avons u^1 et T^1 , respectivement les vitesses et les tractions nodales sur la frontière Γ_1 de ce domaine, et nous avons u^{12} et T^{12} , respectivement les vitesses et les tractions nodales à l'interface

Γ_{12} . De la même façon dans le sous domaine Ω_2 nous aurons u^2 et T^2 les vitesses et les tractions respectivement sur la frontière Γ_2 et les vitesses et les tractions u^{21} et T^{21} respectivement sur la frontière de l'interface Γ_{12} . Pour le domaine Ω_1 l'équation (3.38) peut être écrite:

$$\begin{bmatrix} H^1 & H^{12} \end{bmatrix} \begin{Bmatrix} u^1 \\ u^{12} \end{Bmatrix} = \begin{bmatrix} G^1 & G^{12} \end{bmatrix} \begin{Bmatrix} T^1 \\ T^{12} \end{Bmatrix} \quad (3.42)$$

et la même chose pour le domaine Ω_2 :

$$\begin{bmatrix} H^2 & H^{21} \end{bmatrix} \begin{Bmatrix} u^2 \\ u^{21} \end{Bmatrix} = \begin{bmatrix} G^2 & G^{21} \end{bmatrix} \begin{Bmatrix} T^2 \\ T^{21} \end{Bmatrix} \quad (3.43)$$

Les équations de compatibilité sur l'interface Γ_{12} impliquent la continuité de la vitesse,

$$u^{12} = u^{21} \quad (3.44)$$

et l'équilibre des contraintes,

$$T^{12} = -T^{21} \quad (3.45)$$

En utilisant ces conditions, nous pouvons réécrire les systèmes d'équations (3.42) et (3.43) sous la forme générale suivante :

$$\begin{bmatrix} H^1 & H^{12} & 0 \\ 0 & H^{21} & H^2 \end{bmatrix} \begin{Bmatrix} u^1 \\ u^{12} \\ u^2 \end{Bmatrix} = \begin{bmatrix} G^1 & G^{12} & 0 \\ 0 & -G^{21} & G^2 \end{bmatrix} \begin{Bmatrix} T^1 \\ T^{12} \\ T^2 \end{Bmatrix} \quad (3.46)$$

Dans l'approche multi-domaine, le domaine global est divisé en plusieurs sous domaines (Figure 3-10) où chaque sous domaine est formé de 4 éléments linéaires discontinus (Florez et Power, 2002).

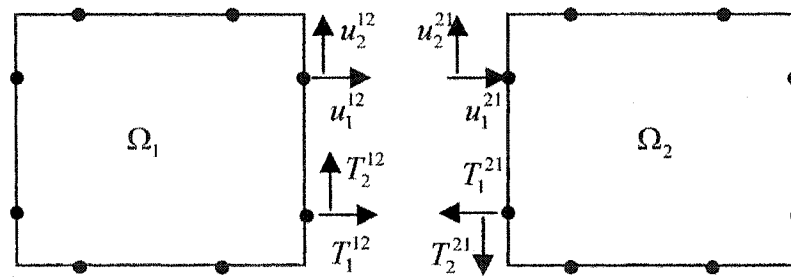


Figure 3-10: Maillage multi-domaine ayant deux sous domaines avec une interface commune et 4 éléments par domaine.

Plus nous avons de sous domaines, plus nous avons de frontières avec des interfaces communes. Dans le cas d'un maillage de 4 sous domaines (Figure 3-4a), les matrices H et G s'écrivent sous une forme matricielle type bande (Figure 3-11a).

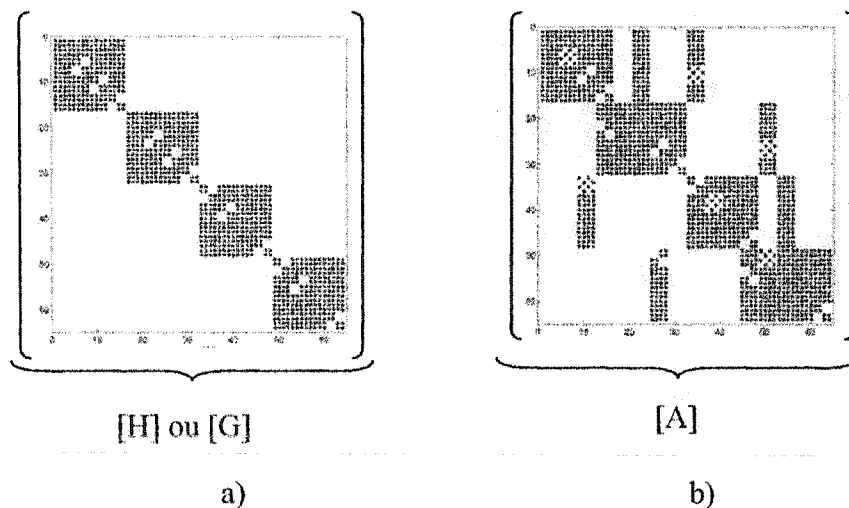


Figure 3-11: Exemple de l'assemblage de la matrice H, a) avant et b) après l'applications des conditions de continuité et d'équilibre des contraintes

Après l'application des conditions aux limites, des conditions de continuité et d'équilibre des vecteurs contraintes, le système d'équations sous forme matricielle devient comme sur la Figure 3-11b.

Les colonnes ayant 2 blocs correspondent aux mêmes interfaces où nous avons des inconnus communs.

3.9 Intégration numérique

3.9.1 Intégration non singulière

Après avoir défini quel type d'élément sera utilisé, les intégrales sur la frontière peuvent être calculées numériquement. Cette intégration peut être accomplie par le schéma de Gauss classique (Dhatt et Touzot, 1984) où l'intégrale d'une fonction $f(\xi)$ pour les problèmes en 2D (pour les problèmes en 3D voir l'Annexe 3) est approximée par :

$$\int_{-1}^1 f(\xi) d\xi = \sum_{n=1}^{npg} f(\xi_n) w(\xi_n) J(\xi_n) \quad (3.47)$$

Où npg est le nombre de points de Gauss. L'intégrale de cette fonction f est déterminé par une sommation des valeurs de la fonction $f(\xi)$ aux points de Gauss ξ_n et pondérée par le poids de Gauss $w(\xi_n)$ et le Jacobien $J(\xi_n)$. Cette expression pour l'intégration de Gauss peut être utilisée pour calculer les coefficients des matrices H et G par l'intégration de la solution fondamentale.

$$h_{ij} = \sum_{n=1}^{npg} N(\xi_n) T_{ij}^*(\xi_n) w(\xi_n) J(\xi_n) \quad (3.48)$$

$$g_{ij} = \sum_{n=1}^{npg} N(\xi_n) u_{ij}^*(\xi_n) w(\xi_n) J(\xi_n) \quad (3.49)$$

Le nombre de points de Gauss utilisés pour l'intégration a une influence sur la précision. L'utilisation d'un plus grand nombre de points de Gauss améliorera la précision mais augmentera le temps de calcul. L'erreur d'intégration E_n en fonction du nombre de points de Gauss s'exprime par (Brebbia et Dominguez, 1992) :

$$E_n = \frac{2^{2N+1} (npg!)^4}{(2npg+1)[2npg!]^3} \frac{d^{2npg} f(\xi)}{d\xi^{2npg}} ; \quad (-1 < \xi < 1) \quad (3.50)$$

Où, $f(\xi)$ est la fonction à intégrer, N est le nombre d'éléments et ξ_i est la coordonnée de $i^{\text{ème}}$ point d'intégration. Le calcul de cette erreur nous permet d'utiliser le nombre de points d'intégration minimal afin d'optimiser le calcul.

3.9.2 Intégration singulière

En raison de la forme particulière des solutions fondamentales (équations 3.20 et 3.21), l'intégration numérique à l'aide du schéma de Gauss classique (Dhatt et Touzot, 1984) s'avère bien plus délicate que dans le cadre de la méthode des éléments finis. En effet, on peut remarquer que en 3D :

$$u_{ij}^* = \Theta\left(\frac{1}{r}\right) \text{ et } T_{ij}^* = \Theta\left(\frac{1}{r^2}\right) \quad (3.51)$$

L'intégration de ces termes sera d'autant plus délicate que la distance entre le point de collocation I et l'élément sur lequel l'intégrale est évaluée sera faible. Les valeurs obtenues par intégration près des points sources sont plus importantes que celles plus éloignées des points sources.

L'intégration des expressions (3.36) devient critique quand i appartient à l'élément. Le problème se présente donc lors de l'assemblage des termes diagonaux des matrices G et H (équation 3.39).

Dans le cas de la matrice H , ce problème est contourné en supposant le mouvement de corps rigide (cf. paragraphe 3.10). Par contre, pour la matrice G , l'intégration numérique doit être effectuée. La technique généralement choisie consiste à appliquer une transformation par un polynôme de degré 3 sur les coordonnées des points d'intégration. Cette technique introduite par Telles (1987) et améliorée ensuite (Telles et Oliveira, 1994) vise à regrouper les points d'intégration autour des singularités de manière à mieux prendre en compte celles-ci.

Les transformées de Telles sont définies en fonction du paramètre libre $\bar{r}$ qui est fonction de la distance normale D entre les points sources et l'élément de la frontière le plus proche. On peut écrire :

$$\xi_T = a\xi^3 + b\xi^2 + c\xi - b \quad (3.52.1)$$

$$J^T = 3a\xi^2 + 2b\xi + c \quad (3.52.2)$$

$$a = (1 - \bar{r})/Q \quad (3.52.3)$$

$$b = -3(1 - \bar{r})\bar{\gamma}/Q \quad (3.52.4)$$

$$c = (\bar{r} + 3\bar{\gamma}^2)/Q \quad (3.52.5)$$

$$Q = 1 + 3\bar{\gamma}^2 \quad (3.52.6)$$

$$\bar{\gamma} = \left[\sqrt[3]{-q + \sqrt{q^2 + p^3}} \right] + \left[\sqrt[3]{-q - \sqrt{q^2 + p^3}} \right] + \frac{\bar{\eta}}{1 + 2\bar{r}} \quad (3.52.7)$$

$$q = \frac{1}{2(1 + 2\bar{r})} \left[\left(\bar{\eta}(3 - 2\bar{r}) - \frac{2\bar{\eta}^3}{1 + 2\bar{r}} \right) \frac{1}{1 + 2\bar{r}} - \bar{\eta} \right] \quad (3.52.8)$$

$$p = \frac{1}{3(1 + 2\bar{r})^2} \left[4\bar{r}(1 - \bar{r}) + 3(1 - \bar{\eta}^2) \right] \quad (3.52.9)$$

Où ξ sont les coordonnées des points d'intégration dans le repère local, ξ_T sont les transformés de ces coordonnées, J^T est le Jacobien de transformé de Telles, $\bar{\eta}$ est la coordonnée du point de singularité.

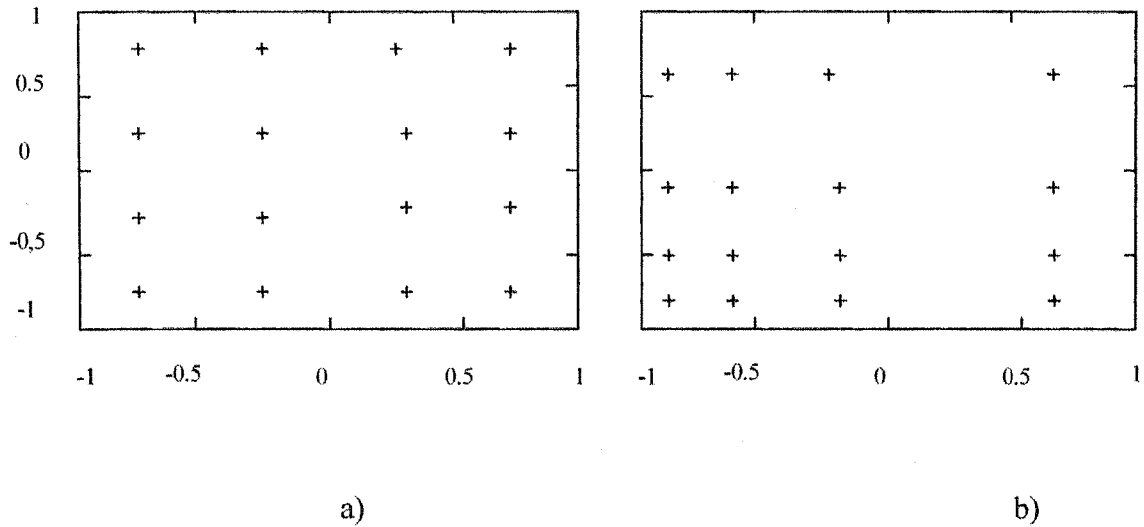


Figure 3-12: Transformation de Telles dans l'espace de référence pour une singularité située en (-1,-1)

Sur la Figure 3-12 deux systèmes de référence sont montrés : a) Espace de référence sans transformation de Telles, b) espace de référence avec la transformation de Telles quand le point de source se trouve en (-1,-1).

Nous pouvons maintenant calculer l'intégrale de singularité en utilisant les poids de Gauss standard et en faisant la somme de tous les points de Gauss.

$$I = \int_{-1}^{+1} \int_{-1}^{+1} f(\xi, \eta) d\xi d\eta = \sum_{i=1}^{npg} \sum_{j=1}^{npg} f(\bar{\eta}_i, \bar{\eta}_j) W_i W_j J_i^T J_j^T J_j J_i^T \quad (3.53)$$

La transformation de Telles en 1D a une expression très semblable de celle en 2D et est détaillée dans les travaux de Telles (1987).

3.10 Mouvement du corps rigide

L'hypothèse de mouvement de corps rigide permet de s'affranchir du calcul de la diagonale de la matrice H . On peut en effet montrer que :

$$H^{ii} = -\sum_{j=1}^N H^{ij} \quad \text{pour } j \neq i \quad (3.54)$$

Cette hypothèse permet de calculer explicitement les termes de la matrice C^I , calcul particulièrement délicat aux coins et arêtes en raison des singularités de la solution fondamentale en ces points. De plus il permet de s'affranchir du calcul des intégrales singulières $\overline{H}^{ii}$.

3.11 Calcul aux points internes

3.11.1 Calcul des vitesses aux points internes

La relation de Somigliana donne les vitesses et les contraintes aux points internes en fonction des vitesses et des contraintes sur la frontière. A partir de la relation de Somigliana, exprimée à l'intérieur du domaine ($c^I = 1$), on déduit :

$$u^i = \sum_{j=1}^{Nbelt} \left\{ \int_{\Gamma_j} u^* d\Gamma \right\} T^j - \sum_{j=1}^{Nbelt} \left\{ \int_{\Gamma_j} T^* d\Gamma \right\} u^j \quad (3.55)$$

Où Γ_j est la surface de l'élément j et, dans ce cas i est le point interne. Cette relation peut encore s'écrire :

$$u^i = \sum_{j=1}^{Nbelt} G^{ij} T^j - \sum_{j=1}^{Nbelt} H^{ij} u^j \quad (3.56)$$

On peut donc calculer la vitesse aux points internes à partir des valeurs sur la frontière.

3.11.2 Calcul des contraintes aux points internes

La relation des contraintes aux points internes pour les problèmes des écoulements de fluides newtoniens incompressibles peut être écrite (Brebbia, 1992):

$$\sigma_{ik} = \int_{\Gamma} D_{ikj} T_j d\Gamma - \int_{\Gamma} S_{ikj} u_j d\Gamma \quad (3.57)$$

Remarque: dans l'équation (3.57) nous utilisons les indices ik pour la contrainte car l'indice j est associé aux valeurs des vitesses et des vecteurs contraintes sur les éléments.

D_{ikj} et S_{ikj} sont les tenseurs d'ordre 3 et s'écrivent :

$$D_{ikj} = \frac{1}{r^\alpha} \frac{\beta r_{,i} r_{,j} r_{,k}}{2\pi} \quad (3.58)$$

$$S_{ikj} = \frac{\mu}{\alpha \pi r^\beta} \left\{ \beta \frac{\partial r}{\partial n} [(\delta_{ij} r_{,k} + \delta_{jk} r_{,i}) - \gamma r_{,i} r_{,j} r_{,k}] + \frac{\beta}{2} (n_i r_{,k} r_{,j} + n_k r_{,i} r_{,j}) + n_j \delta_{ik} \right\} \quad (3.59)$$

Avec : $\alpha = 1$, $\beta = 2$ et $\gamma = 4$ en 2D et $\alpha = 2$, $\beta = 3$ et $\gamma = 5$ en 3D.

3.11.3 Calcul des gradients de vitesses aux points internes

Le calcul des gradients de vitesse aux points internes est obtenu par la dérivation de l'équation (3.55). Ainsi on obtient l'équation suivante :

$$\frac{\partial u^i}{\partial x_k} = \sum_{j=1}^{Nbelt} \left\{ \int_{\Gamma_j} \frac{\partial u^*}{\partial x_k} d\Gamma \right\} T^j - \sum_{j=1}^{Nbelt} \left\{ \int_{\Gamma_j} \frac{\partial T^*}{\partial x_k} d\Gamma \right\} u^j \quad (3.60)$$

Aussi, on peut écrire :

$$\frac{\partial u^i}{\partial x_k} = \sum_{j=1}^{Nbelt} \left\{ \int_{\Gamma_j} DI_{ijk} d\Gamma \right\} T^j - \sum_{j=1}^{Nbelt} \left\{ \int_{\Gamma_j} SI_{ijk} d\Gamma \right\} u^j \quad (3.61)$$

Où DI_{ijk} est la dérivée de la vitesse de la solution fondamentale et SI_{ijk} est la dérivée de la contrainte T^* .

$$DI_{ijk} = -\frac{1}{4\pi\mu} \left[\frac{r_j}{r^2} \delta_{ik} + 2 \frac{r_i r_j r_k}{r^4} - \frac{\delta_{ij} r_k}{r^2} - \frac{\delta_{jk} r_i}{r^2} \right] \quad (3.62)$$

$$SI_{ijk} = -\frac{4r_i r_j r_k}{\pi r^6} + \delta_{ij} \frac{r_n r_k}{\pi r^4} + \delta_{jk} \frac{r_n r_i}{\pi r^4} \quad (3.63)$$

3.12 Evaluation des intégrales du domaine

La résolution des équations d'équilibre est une tâche difficile pour toutes les méthodes numériques, car le système d'équations partielles est non-linéaire et inclut des dérivés premières et secondes dans l'espace. La difficulté principale en appliquant les méthodes d'intégration aux équations d'équilibre est le manque de solution fondamentale. Donc, il

est nécessaire d'écrire les équations d'équilibre en terme de l'opérateur linéaire avec tous les termes non-linéaires introduits dans les termes non homogènes. Avec ce type de formulation, la représentation intégrale de la frontière peut être obtenue pour l'opérateur linéaire de Stokes, tandis que les termes non-linéaires apparaissent dans l'intégrale du domaine.

Dans le cas d'écoulement de polymères, nous avons la présence de termes non-linéaires dus en général au comportement rhéologique non-newtonien. La formulation de la méthode des éléments frontières présentée ci-dessus est bien adaptée pour traiter les problèmes linéaires. Pour tenir compte des termes de non-linéarités cette formulation doit être modifiée. L'équation (3.3) peut s'écrire encore sous notation indicielle :

$$\sigma_{ij} = (\sigma_{ij})_N + (\sigma_{ij})_{NN} \quad (3.64)$$

Où $(\sigma_{ij})_N$ est la composante linéaire du tenseur des contraintes (newtonienne) et $(\sigma_{ij})_{NN}$ est la composante non-linéaire du tenseur des contraintes. On peut écrire l'équation (3.64) :

$$\sigma_{ij} = -p\delta_{ij} + 2\mu\dot{\epsilon}_{ij} + (\tau_{ij})_{NN} \quad (3.65)$$

où μ est la viscosité newtonienne, $(\tau_{ij})_{NN}$ représente les effets des contraintes non-newtoniennes et s'écrit :

$$(\tau_{ij})_{NN} = 2\left(\eta(\dot{\gamma}) - \mu\right)\dot{\epsilon}_{ij} \quad (3.66)$$

L'équation d'équilibre devient :

$$-\frac{\partial p}{\partial x_i} + \frac{\partial}{\partial x_j} \left(2\eta(\gamma) \dot{\varepsilon}_{ij} \right) = 0 \quad (3.67)$$

Que l'on peut mettre sous la forme :

$$\mu \frac{\partial^2 u_i}{\partial x_j^2} - \frac{\partial p}{\partial x_i} = - \frac{\partial (\tau_{ij})_{NN}}{\partial x_j} \quad (3.68)$$

Notons que le terme source ou non-newtonien $(\tau_{ij})_{NN}$ augmente le terme non homogène qu'on écrit :

$$b_j = - \frac{\partial (\tau_{ij})_{NN}}{\partial x_j} \quad (3.69)$$

Donc, b_j représente les termes sources. L'équation (3.19) dans le cas où on considère les termes non-linéaires s'écrit :

$$c_{ij}^I u_j^I + \int_{\Gamma} T_{ij}^* u_j d\Gamma - \int_{\Gamma} T_j u_{ij}^* d\Gamma = \int_{\Omega} b_j \cdot u_{ij}^* d\Omega \quad (3.70)$$

On voit que dans l'équation (3.70), à côté des intégrales sur la frontière, on a la présence d'une intégrale sur le domaine due au comportement non-newtonien du fluide. Le but est de développer une méthode qui permettra de « transformer » cette intégrale de volume en intégrale de surface afin de ne pas avoir à faire un maillage du domaine. Il existe plusieurs méthodes pour ramener cette intégrale de volume à une intégrale de surface :

- Méthode de Réciprocité Duale (Dual reciprocity method (DRM))
- Méthode de Réciprocité Multiple (Multiple reciprocity method (MRM))
- Méthode de Monte Carlo

"Multiple reciprocity method" (MRM) n'est applicable que dans le cas où la fonction b_j est harmonique. Pour cette raison, elle n'est pas considérée dans cette étude. A part de ces trois méthodes de transformation de l'intégrale de volume en intégrale de surface, une méthode très souvent utilisée dans la pratique pour évaluer les intégrales volumiques des termes sources est la méthode de l'Intégration des Cellules (Cell Integration method).

3.12.1 Méthode de l'intégration de cellules (Cell Integration)

La méthode de l'intégration de cellules représente la manière la plus simple pour calculer le terme du domaine de l'équation (3.70). Elle permet de résoudre cette équation sans faire la transformation de l'intégrale de volume en intégrale de surface. Elle a été appliquée pour modéliser des écoulements non-newtoniens visqueux par plusieurs auteurs (Davis, 1995; Skerget et Rek, 1995; Skerget et Samec, 1999; Farrant, Tan et al., 2001) et s'est avérée une méthode très précise. L'équation (3.70) peut être écrite encore :

$$c^I u_i + \int_{\Gamma} T_{ij}^* u_j d\Gamma - \int_{\Gamma} T_j u_{ij}^* d\Gamma = - \int_{\Omega} b_{jk} \cdot \frac{\partial u_{ij}^*}{\partial x_k} d\Omega = d_i^I \quad (3.71)$$

Ou sous la forme matricielle :

$$[H]\{u\} - [G]\{t\} = \{d\} \quad (3.72)$$

Il s'agit de faire la subdivision de la géométrie en plusieurs cellules et de faire l'intégration sur chaque cellule en utilisant la méthode de quadrature de Gauss. Dans le cas 2D, les cellules sont identiques aux éléments frontières utilisés pour une résolution d'un problème 3D (Figure 3-13). L'intégration de Gauss est identique aux cas d'un maillage en 3D. Dans notre cas, on utilise les éléments quadratiques avec 8 nœuds par

élément utilisant le schéma d'intégration pour ces éléments. Les fonctions d'interpolations sont données en Annexe 2.

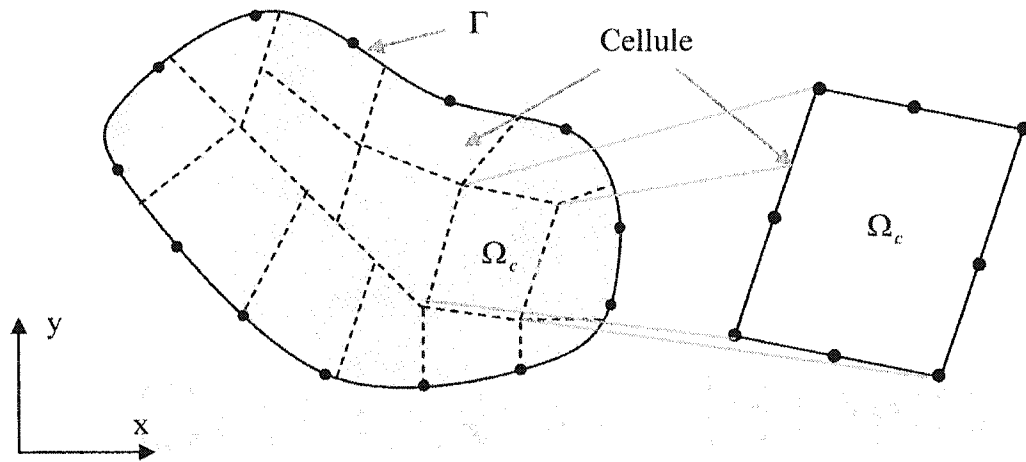


Figure 3-13: Discretisation du domaine utilisant les cellules en 2D

Pour chaque point source "i" l'intégrale est approximée en faisant la somme des intégrales de toutes les cellules du domaine. Le résultat de l'intégration numérique est donné par d_i^I et est différent pour chaque point source "I" que nous écrivons :

$$d_i^I = \sum_{c=1}^M \left[\sum_{n=1}^{npg} \sum_{n=1}^{npg} b_j u_{ij}^* N(\xi_n, \eta_n) w(\xi_n) w(\eta_n) J(\xi_n) J(\eta_n) \right] \quad (3.73)$$

Où M est le nombre de cellules, npg est le nombre de points d'intégration par élément, $w(\xi_n)$ et $w(\eta_n)$ sont les poids de Gauss, $J(\xi_n)$ et $J(\eta_n)$ sont les Jacobiens. Dans chaque intégrale nous avons le terme source $(b_j u_{ij}^*)$ qui est évalué sur chaque point d'intégration.

Le terme b_{jk} est associé à la nature du problème et au type de non-linéarité présent. Dans les équations des écoulements des polymères fondus, la présence des termes sources est liée au comportement non-Newtonien, dû à la viscosité dépendant du taux de cisaillement.

Dans le cas où on exprime des termes sources en utilisant la loi de puissance, on peut aussi écrire :

$$b_{ij} = 2(\mu - m\dot{\gamma}^{n-1})\dot{\epsilon}_{ij} \quad (3.74)$$

A cause de la dépendance de la viscosité en fonction de la vitesse, l'algorithme du schéma itératif du calcul non-newtonien est donné sur la Figure 3-14 (Davis, 1995).

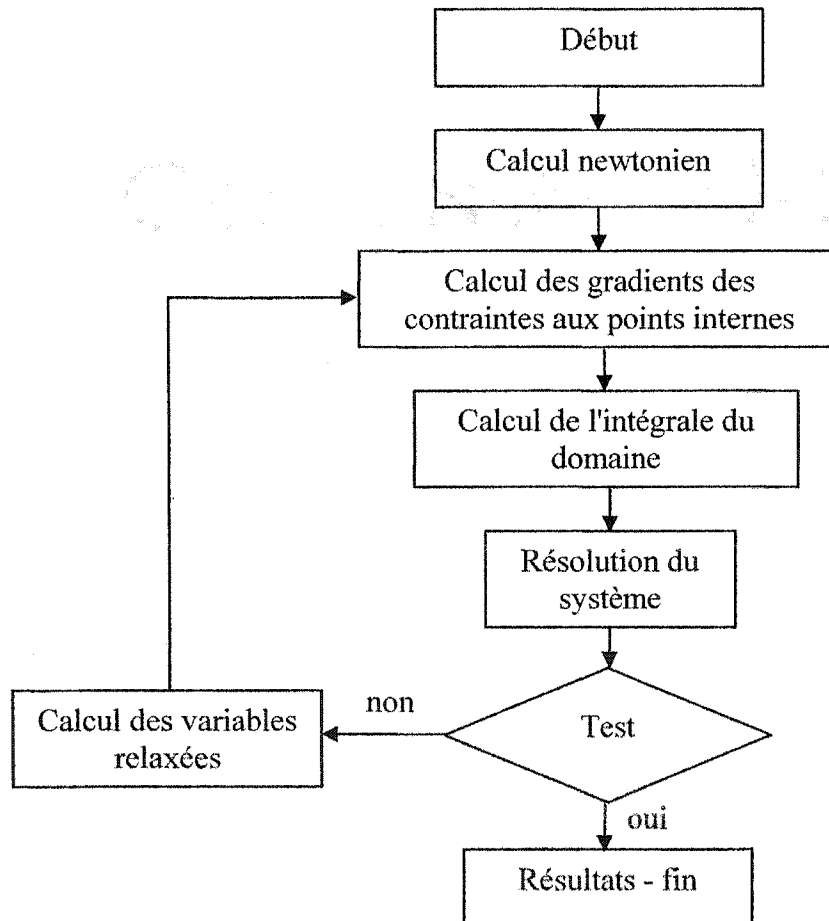


Figure 3-14: Schéma itératif pour le calcul non-newtonien par la méthode de l'Intégration des Cellules (Davis, 1995)

A partir des solutions newtoniennes pour les gradients de vitesses, les termes sources (gradient de contraintes) de l'équation 3.74 sont calculés aux points internes qui correspondent aux nœuds des cellules. Ensuite, nous calculons l'intégrale du domaine en faisant la somme sur toutes les cellules (l'équation 3.71). Après avoir calculé les termes sources, nous faisons la somme de ces termes correspondants aux frontières avec les valeurs du second membre du système matricielle et résolvons le système matriciel. Si la solution tend vers une solution convergente nous arrêtons le calcul. Si non, nous recalculons les gradients de contraintes et ainsi de suite.

3.12.2 La méthode de Monte-Carlo

Les méthodes de Monte-Carlo sont les méthodes de résolution de certains types de problèmes qui utilisent des nombres aléatoires. Bien qu'en théorie ces méthodes convergent finalement vers le résultat correct, dans la pratique, elles ne permettent qu'une modeste précision. Cela est dû à une extrême lenteur des convergences (Scheid, 1986). Les méthodes de Monte-Carlo sont utilisées pour donner de bonnes approximations initiales à utiliser dans des algorithmes plus rapides et plus élaborés. On peut citer deux types d'applications.

La simulation traite des méthodes permettant de donner des imitations arithmétiques des phénomènes réels. En gros c'est l'idée générale à la base des mathématiques appliquées.

L'échantillonnage traite des méthodes dont l'objet est de déduire les propriétés d'un large ensemble d'éléments de l'étude d'un petit sous-ensemble choisi de manière aléatoire. Ainsi par exemple, la valeur moyenne de $f(x)$ peut être estimée à partir de sa moyenne sur un sous-ensemble fini et aléatoire de points pris sur l'intervalle. Dans la mesure où $f(x)$ est en réalité une intégrale, cela revient à appliquer une méthode de Monte-Carlo d'intégration approchée.

Les nombres aléatoires, dans le sens donné généralement à ce terme, ne sont pas des nombres générés au hasard en jetant une pièce ou en faisant tourner la roulette. Ce sont en réalité des nombres générés par un processus arithmétique complètement

déterministe, et les ensembles de nombres ainsi obtenus jouissent de diverses propriétés statistiques qui, prises ensemble, constituent le fait aléatoire.

$$d'_i = \int_{\Omega} b_{jk} \frac{\partial u_{ij}^*}{\partial x_k} d\Omega \approx \frac{V}{N} \sum_{n=1}^N f_n \quad (3.75)$$

Avec, f_n étant défini dans l'équation suivante:

$$f_n = 2(\mu - \eta) \dot{\epsilon}_{jk} \frac{\partial u_{ij}^*}{\partial x_k} \quad (3.76)$$

Qui est évalué aux points d'échantillonnage de Monte-Carlo n . V et N sont respectivement le volume et le nombre de points de Monte-Carlo. Les points n sont distribués aléatoirement dans le volume. L'avantage le plus important est la possibilité de travailler avec des géométries très complexes d'une manière très simple. L'inconvénient de cette méthode est sa faible précision numérique. La méthode est généralement recommandée quand l'intégration traditionnelle n'est pas adéquate ou très complexe à appliquer.

3.12.3 Multi domaine DRM

L'application de la méthode DRM s'est avérée inefficace pour les problèmes des écoulements non-newtoniens dès que l'indice de pseudoplasticité diminue au-dessous de 0.8 (Davis, 1995). Pour cela, la technique de subdivision du domaine puis d'application de la DRM reste la seule solution afin d'appliquer la méthode de DRM aux problèmes des écoulements non-newtoniens. A cause de la viscosité fortement variable, DRM n'est applicable qu'aux petits domaines où il y a une petite variation de la viscosité.

3.12.3.1 Principes de la méthode DRM

La méthode a été initialement introduite par Nardini et Brebbia (1982) dans les problèmes d'élasticité et bien expliquée dans les travaux de Partridge et al. (1992). La relation (3.64) peut être exprimée comme la somme de l'équation de Stokes homogène et de la solution particulière :

$$\frac{\partial \sigma_{ij}}{\partial x_j} - \frac{\partial \hat{\sigma}_{ij}}{\partial x_j} = 0 \quad (3.77)$$

Où $\frac{\partial \hat{\sigma}_{ij}}{\partial x_j}$ est la solution particulière de l'équation de Poisson que l'on peut écrire :

$$\frac{\partial \hat{\sigma}_{ij}}{\partial x_j} = b_i \quad (3.78)$$

Il est difficile de trouver une fonction $\frac{\partial \hat{\sigma}_{ij}}{\partial x_j}$ pour satisfaire la relation ci-dessus, surtout

dans le cas de problèmes non-linéaires. La méthode DRM propose l'utilisation de la série des solutions particulières $\left(\frac{\partial \hat{\sigma}_{ij}}{\partial x_j} \right)_p$ au lieu d'une fonction $\frac{\partial \hat{\sigma}_{ij}}{\partial x_j}$. Le nombre des

solutions particulières de $\left(\frac{\partial \hat{\sigma}_{ij}}{\partial x_j} \right)_p$ est égal au nombre total de nœuds dans le problème.

Si on a $Nbnoe$ nœuds frontières et Npi points internes, on aura $pp = Nbnoe + Npi$ valeurs

de $\left(\frac{\partial \hat{\sigma}_{ij}}{\partial x_j} \right)_p$.

L'approximation suivante est proposée pour b :

$$b_i \cong \left[\sum_{p=1}^{pp} \alpha_p^i f_p \right]_i \quad (3.79)$$

où α_p^i est le $i^{\text{ème}}$ coefficient, initialement inconnu et f_p sont les fonctions d'approximations. La solution particulière $\left(\frac{\partial \hat{\sigma}_{ij}}{\partial x_j} \right)_p$ et la fonction d'approximation f_p sont liées par la relation suivante :

$$\left(\frac{\partial \hat{\sigma}_{ij}}{\partial x_j} \right)_p = f_p \quad (3.80)$$

La fonction f_p est similaire à une fonction d'interpolation comme :

$$\frac{\partial \sigma_{ij}}{\partial x_j} = \sum \phi_p \frac{\partial \hat{\sigma}_{ij}}{\partial x_j} \quad (3.81)$$

Les fonctions f_p dépendent de la géométrie comme la fonction ϕ_p dans la relation (3.81).

En utilisant l'équation (3.78) dans l'équation (3.77), on obtient :

$$b_i = \sum_{p=1}^{pp} \alpha_p^i \left(\frac{\partial \hat{\sigma}_{ij}}{\partial x_j} \right)_p \quad (3.82)$$

A l'aide de l'équation (3.77), (3.78) et (3.79), l'équation (3.77) devient :

$$\frac{\partial \sigma_{ij}}{\partial x_j} = \sum_{p=1}^{PP} \alpha_p^i \left(\frac{\partial \hat{\sigma}_{ij}}{\partial x_j} \right)_p \quad (3.83)$$

L'équation (3.83) peut être multipliée par la solution fondamentale puis intégrée sur le domaine :

$$\int_{\Omega} \frac{\partial \sigma_{ij}}{\partial x_j} u_{ij}^* d\Omega = \sum_{p=1}^{PP} \alpha_p^i \int_{\Omega} \left(\frac{\partial \hat{\sigma}_{ij}}{\partial x_j} \right)_p u^* d\Omega \quad (3.84)$$

Pour transformer chaque intégrale du domaine de l'équation précédente, les nouveaux termes d'écoulement de Stokes auxiliaire non-homogène doivent être définis pour chaque fonction d'interpolation :

$$\mu \frac{\partial^2 \hat{u}_i}{\partial x_j^2} - \frac{\partial \hat{P}}{\partial x_i} = f_p \quad (3.85)$$

En faisant l'intégration par parties et en utilisant le théorème de divergence sur les deux membres de droite et de gauche de l'équation (3.84), la méthode de réciprocity duale nous permet d'écrire l'équation intégrale suivante :

$$c_i u_i + \int_{\Gamma} T_{ij}^* u_j d\Gamma - \int_{\Gamma} u_{ij}^* T_j d\Gamma = \sum_{p=1}^{PP} \alpha_p^i \left(c_i \hat{u}_i + \int_{\Gamma} T_{ip}^* \hat{u}_p d\Gamma - \int_{\Gamma} u_{ip}^* \hat{T}_p d\Gamma \right) \quad (3.86)$$

On remarque que l'expression (3.86) n'a pas d'intégrale de domaine, le terme source b est substitué à l'intégrale équivalente de la frontière. La prochaine étape est d'écrire cette relation sous forme discrétisée :

$$c_i u_i + \sum_{j=1}^{Nbnoe} \int_{\Gamma} T_{ij}^* u_j d\Gamma - \sum_{j=1}^{Nbnoe} \int_{\Gamma} u_j^* T_j d\Gamma = \sum_{p=1}^{pp} \alpha_p \left(c_i \hat{u}_{ij} + \sum_{j=1}^{Nbnoe} \int_{\Gamma} T_{ip}^* \hat{u}_{pj} d\Gamma - \sum_{j=1}^{Nbnoe} \int_{\Gamma} u_{ip}^* \hat{T}_{pj} d\Gamma \right) \quad (3.87)$$

Après avoir introduit les fonctions d'interpolation et en faisant l'intégration sur chaque élément, l'expression (3.87) peut s'écrire en termes de valeurs nodales :

$$c_i u_i + \sum_{j=1}^{Nbnoe} H_{ij} u_j - \sum_{j=1}^{Nbnoe} G_{ij} T_j = \sum_{p=1}^{pp} \alpha_p \left(c_i \hat{u}_{ij} + \sum_{j=1}^{Nbnoe} H_{ip} \hat{u}_{pj} - \sum_{j=1}^{Nbnoe} G_{ip} \hat{T}_{pj} \right) \quad (3.88)$$

Remarque: l'indice k présente la direction x ou y aux points DRM "p". La forme matricielle associée s'écrit :

$$[H] \bar{u} - [G] \bar{T} = \sum_{p=1}^{pp} \alpha_p \left([H] \hat{u} - [G] \hat{T} \right) \quad (3.89)$$

L'équation (3.89) est la base de la méthode DRM des éléments frontières.

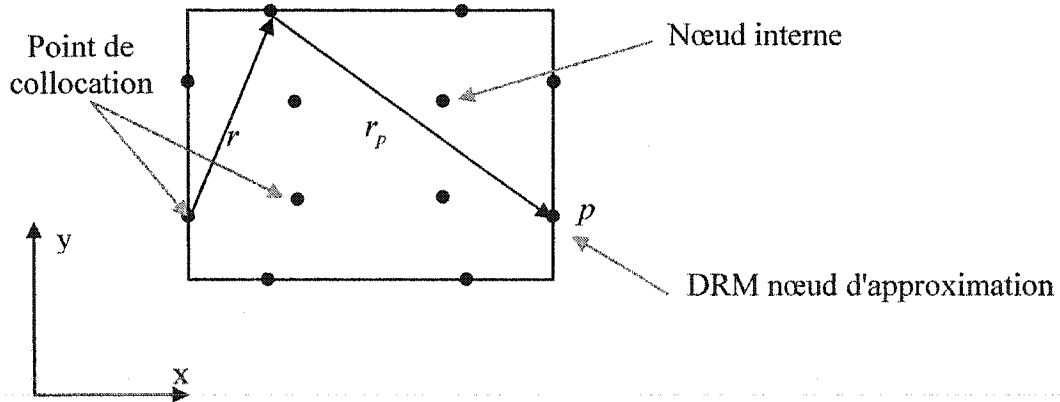


Figure 3-15: Différents types de nœuds dans l'approximation DRM (cas d'un sous domaine)

Sur la Figure 3-15, les différents types de nœuds dans l'approximation DRM sont représentés.

3.12.3.2 Le vecteur $\vec{\alpha}$

On a vu dans l'équation (3.79) que,

$$b_i \cong \sum_{p=1}^{pp} \alpha_p^i f_p \quad (3.90)$$

Cette expression peut être écrite sous la forme matricielle,

$$\vec{b} = [F] \vec{\alpha} \quad (3.91)$$

Où la p^{eme} colonne de $[F]$ correspond au vecteur f_p dont les valeurs sont associées à chaque point de colocation ($Nbnoe + Npi$) de la méthode DRM.

Le vecteur b est connu en fonction des coordonnées. De l'équation (3.91), le vecteur $\vec{\alpha}$ s'écrit:

$$\vec{\alpha} = [F]^{-1} \vec{b} \quad (3.92)$$

3.12.3.3 La solution aux points internes

A chaque point interne, on peut calculer à partir de l'équation (3.88) les valeurs associées à ces nœuds. On a $c_i = 1$ et l'équation (3.88) devient :

$$u_i = - \sum_{j=1}^{Nbnoe} H_{ij} u_j + \sum_{j=1}^{Nbnoe} G_{ij} T_j + \sum_{p=1}^{pp} \alpha_p^i \left(\hat{u}_{ij} + \sum_{j=1}^{Nbnoe} H_{ip} \hat{u}_{pj} - \sum_{j=1}^{Nbnoe} G_{ip} \hat{T}_{pj} \right) \quad (3.93)$$

3.12.3.4 Différentes expressions de f

Les solutions particulières $\hat{u}$ et $\hat{T}$ et la fonction d'approximation f correspondante ne sont pas limitées par la formulation, sauf que la matrice F de l'équation (3.85) doit être non-singulière. Dans le but de calculer ces fonctions d'approximation, il faut proposer les fonction d'expression pour f et puis calculer $\hat{u}$ et $\hat{T}$.

La fonction de distance r utilisée dans la définition de la solution fondamentale a été proposée par Brebbia et Nardini (1982). C'est la méthode la plus simple et la plus exacte. On peut considérer plusieurs cas :

$$\begin{aligned} 1. & f = r_p \\ 2. & f = 1 + r_p \\ 3. & f = 1 + r_p + r_p^2 \end{aligned} \quad (3.94)$$

La forme générale s'écrit :

$$f = c_1 + c_2 r_p + c_3 r_p^2 + \dots + c_{m+1} r_p^m = \sum_{i=0}^m c_{i+1} r_p^i \quad (3.95)$$

Rappelons que r est défini par :

$$r_p = \sqrt{(x_p - x_j)^2 + (y_p - y_j)^2 + (z_p - z_j)^2} \quad (3.96)$$

3.12.3.5 Les solutions particulières des champs d'écoulement auxiliaire

La transformation de chaque intégrale du domaine à droite de l'équation (3.84) doit être effectuée en définissant les nouveaux termes non-homogènes du champ de Stokes $\hat{u}_{pj}$ et $\hat{p}^p$ pour chaque point d'interpolation.

$$\mu \frac{\partial \hat{u}_{jp}}{\partial x_j^2} - \frac{\partial \hat{p}^p}{\partial x_i} = f_p \delta_{pj} \quad (3.97)$$

$$\frac{\partial \hat{u}_{jp}}{\partial x_i} = 0 \quad (3.98)$$

Pour trouver la solution particulière du système des équations de Stokes non-homogène (3.97) et (3.98), nous utilisons l'approche de Happel et Brenner (1983). Cette approche est la variation de Galerkin vecteur technique, dérivée originalement pour des équations de Navier d'élastodynamique. On peut l'utiliser en posant que le coefficient de Poisson est égal à 0.5 pour résoudre les problèmes de Stokes. Initialement, le tenseur $\hat{u}_p$ est défini en terme de potentiel ψ :

$$\hat{u}_{jp} = \frac{\partial^2 \psi}{\partial x_i^2} \delta_{jp} - \frac{\partial^2 \psi}{\partial x_j \partial x_p} \quad (3.99)$$

Si on différencie l'équation (3.99) et si on la substitue dans l'équation (3.97), on peut écrire :

$$\mu \left(\frac{\partial^4 \psi}{\partial x_i^4} \delta_{jp} - \frac{\partial^4 \psi}{\partial x_j \partial x_k \partial x_l^2} \right) - \frac{\partial P}{\partial x_j} = f_p \delta_{jm} \quad (3.100)$$

La solution particulière pour cette équation peut être trouvée si nous assumons que l'équation biharmonique suivante est satisfaite,

$$\mu \frac{\partial^4 \psi}{\partial x_l^4} = f_p \quad (3.101)$$

et que,

$$\mu \frac{\partial^4 \psi}{\partial x_j \partial x_k \partial x_l^2} + \frac{\partial \hat{P}^p}{\partial x_j} = 0 \quad (3.102)$$

L'équation précédente peut être intégrée pour obtenir le champ de pression,

$$\hat{P}^p = -\mu \frac{\partial^3 \psi}{\partial x_l^2 \partial x_k} \quad (3.103)$$

Si nous définissons la fonction d'approximation f_p :

$$f_p = c_1 + c_2 r \quad (3.104)$$

Où c_n ($n=1,2$) sont les constantes et peuvent prendre les valeurs: 0 ou 1. Ces coefficients sont introduits afin d'avoir une fonction générale tout en gardant la possibilité de diminuer l'ordre de cette fonction. En posant donc, que ces coefficients d'indice décroissant ont les valeurs de 0, nous diminuerons facilement l'ordre de cette fonction sans modifier la forme générale de celle-ci.

$$\psi = \frac{1}{\mu} \left(\frac{c_1 r^4}{64} + \frac{c_2 r^5}{225} \right) \quad (3.105)$$

A partir de cette équation, il est facile d'obtenir les pressions et les vitesses aux points de collocation,

$$\hat{P}^p = -r_{,k} \left(\frac{c_1 r}{2} + \frac{c_2 r^2}{3} \right) \quad (3.106)$$

Donc, la solution particulière de la vitesse $\hat{u}$ est donnée par :

$$\hat{u}_{jk}^p = \frac{1}{\mu} \left(\frac{3c_1 r^2}{16} + \frac{4c_2 r^3}{45} \right) \delta_{jk} - \frac{1}{\mu} r_{,j} r_{,k} \left(\frac{c_1 r^2}{8} + \frac{c_2 r^3}{15} \right) \quad (3.107)$$

Le tenseur de contraintes peut être décomposé en contraintes de cisaillement et en composantes hydrostatiques,

$$\hat{\sigma}_{ij}^p = \hat{\tau}_{ij}^p - \hat{P}^p \delta_{ij} \quad (3.108)$$

$$\hat{\sigma}_{ij}^p = \left(r_{,i} \delta_{jk} + r_{,j} \delta_{ik} + r_{,k} \delta_{ij} \right) \left(\frac{c_1 r}{4} + \frac{c_2 r^2}{5} \right) - r_{,i} r_{,j} r_{,k} \left(\frac{c_2 r^2}{15} \right) \quad (3.109)$$

A partir de la relation $\hat{T}_{jk} = \hat{\sigma}_{ij}^k n_j$, nous pouvons obtenir la solution particulière du vecteur contrainte :

$$\hat{T}_{jk}^p = \left(r_{,i} n_i \delta_{jk} + r_{,j} n_k \delta_{ik} + r_{,k} n_j \delta_{ij} \right) \left(\frac{c_1 r}{4} + \frac{c_2 r^2}{5} \right) - r_{,i} r_{,j} r_{,k} n_i \left(\frac{c_2 r^2}{15} \right) \quad (3.110)$$

Où n_j représente la normale externe de la frontière. Les matrices $[\hat{u}]$, $[\hat{T}]$ et $[F]^{-1}$ sont obtenues à partir des équations (3.98), (3.110) et (3.104) (une forme plus complète de ces équations est donnée dans l'Annexe 4). On peut remarquer qu'elles sont fonction de la distance entre les nœuds de collocation et les nœuds de location et les nœuds de location et les nœuds d'approximation (nœuds DRM). Les termes non-linéaires peuvent

être considérés séparément de l'écoulement de Stokes classique. Les solutions particulières ne peuvent pas être trouvées comme des fonctions continues, donc les séries de solutions particulières sont utilisées. Les séries des solutions sont spécifiées aux points de locations et aux points de collocations via les fonctions d'approximation f . Les termes non-linéaires peuvent être remplacés par les solutions particulières et manipulés par les méthodes des réciprocity afin d'obtenir une formulation de la frontière. En choisissant les fonctions radiales pour f et en utilisant les potentiels auxiliaires, les solutions peuvent être obtenus aux points de collocation. Cela peut être substitué dans l'équation classique de la méthode des éléments frontières et puis évalué numériquement et résolu d'une façon conventionnelle.

3.12.3.6 Application de la méthode de Newton Raphson aux équations éléments frontière

Nous pouvons remarquer que les équations (3.88) et (3.89) donnent un système non-linéaire. Réécrivons l'équation (3.89) de la façon suivante:

$$H\bar{u} - G\bar{T} = (H\hat{u} - G\hat{T})F^{-1}\bar{b}(\bar{u}) \quad (3.111)$$

Si on simplifie cette écriture, on obtient :

$$H\bar{u} - G\bar{T} + S\bar{b}(\bar{u}) = 0 \quad (3.112)$$

avec,

$$S = (H\hat{u} - G\hat{T})F^{-1} \quad (3.113)$$

L'équation (3.112) est appliquée sur chaque sous domaine en incluant les conditions de compatibilité et de continuité entre les éléments adjacents. Etant donné que b représente

les termes liés aux non-linéarités, pour les problèmes non-newtoniens nous pouvons écrire :

$$b_i = \frac{\partial}{\partial x_j} \left((\eta(\dot{\gamma}) - \mu) \left(\frac{\partial u_i}{\partial x_j} + \frac{\partial u_j}{\partial x_i} \right) \right) \quad (3.114)$$

Où les dérivées des vitesses sont approximées à partir des vitesses, à l'aide de la matrice inverse de la fonction d'approximation et de la dérivée de cette fonction.

$$\frac{\partial u_i}{\partial x_j} = \frac{\partial F}{\partial x_j} F^{-1} u_i \quad (3.115)$$

De cette façon, il est toujours possible de calculer les gradients de vitesse à partir des valeurs des vitesses. Pour la solution numérique de l'équation (3.112) nous pouvons écrire:

$$f(u, T) = 0 \quad (3.116)$$

$$f(u, T) = H\bar{u} - G\bar{T} + S\bar{b}(\bar{u}) \quad (3.117)$$

En développant cette équation, il vient :

$$f(\bar{u}^0, \bar{T}^0) + H\delta\bar{u} - G\delta\bar{T} + S D \delta\bar{u} = 0 \quad (3.118)$$

Où D est la matrice des dérivées de chaque composante b_i par rapport à la vitesse u_j :

$$D = \frac{\partial b_i}{\partial u_j} \quad (3.119)$$

Les valeurs de $\bar{u}^0$ et $\bar{T}^0$ sont respectivement les valeurs initiales de la vitesse et de la contrainte, $\delta\bar{u}$ et $\delta\bar{T}$ étant leur correction. L'équation (3.118) peut alors s'écrire :

$$(H + SD)\delta\bar{u} - G\delta\bar{T} = -f(\bar{u}^0, \bar{T}^0) \quad (3.120)$$

Aux nœuds où les conditions limites sont imposées, les corrections de vitesse et de contrainte sont nulles. Après avoir imposé les conditions limites et avoir échangé les colonnes entre les matrices (voir la section 3.8), nous obtenons:

$$A\delta x = c \quad (3.121)$$

où la matrice A est formée par des colonnes des matrices H+SD et G, δx étant le vecteur des corrections inconnues de $\delta\bar{u}$ et $\delta\bar{T}$. c représente le produit des colonnes de ces matrices avec les valeurs des conditions limites auxquelles s'ajoute le vecteur de la fonction $f(\bar{u}^0, \bar{T}^0)$ évalué à l'instant initial.

Finalement, pour chaque itération, les vitesses et les contraintes sont obtenues par les équations:

$$\bar{u}^i = \bar{u}^{i-1} + \delta\bar{u}^{i-1} \quad (3.122)$$

$$\bar{T}^i = \bar{T}^{i-1} + \delta\bar{T}^{i-1} \quad (3.123)$$

3.12.3.7 Algorithme de MDRM

Sous une forme compacte, la technique de MDRM peut être schématisée avec un algorithme donné sur la Figure 3-16.

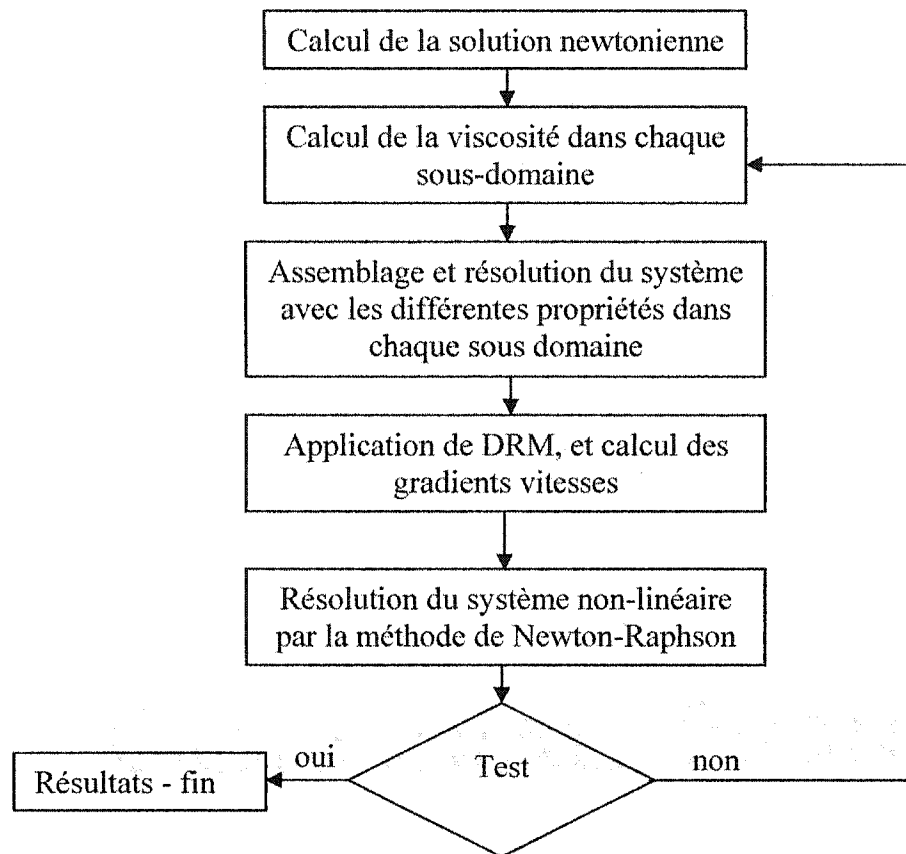


Figure 3-16: Algorithme de la résolution des problèmes non-newtoniens par MDRM

A partir de la solution newtonienne aux points internes situés dans les sous domaines correspondants, nous calculons la viscosité moyenne dans ces domaines. Grâce aux viscosités calculées dans tous les domaines, nous assemblons le système et le résolvons. Ensuite nous appliquons la méthode DRM à chaque sous domaine et calculons le gradients des vitesses à partir des vitesses et des fonctions d'approximations. Finalement, le système d'équation non-linéaire obtenu est résolu par la méthode de Newton Raphson.

3.13 Conclusion partielle

Dans ce chapitre nous avons présenté la Méthode des Eléments Frontières (BEM) développée pour les équations de Stokes. La première partie de ce chapitre est basée sur l'hypothèse que le fluide est newtonien incompressible. Pour cela la formulation BEM classique est suffisante. Pour faire une caractérisation qualitative de la dispersion des charges ou de la phase secondaire dans la matrice du polymère dans des sections de mélange en extrusion, cette formulation est satisfaisante. Afin de s'approcher de la géométrie réelle en 3D, nous avons présenté la méthode BEM en 3D.

Si nous considérons les polymères fondus comme des fluides non-newtoniens, des termes sources ou plus exactement des termes dus à la viscosité non-newtonienne sont présents. Cette viscosité est fonction du taux de cisaillement qui n'est pas constant. Le taux de cisaillement varie en fonction de la position dans la géométrie ce qui provoque une non-linéarité du problème. En prenant en compte la viscosité non-linéaire, nous devons prendre en compte l'intégrale sur le domaine dans l'équation de la méthode des éléments frontières. Pour profiter des avantages de la méthode BEM, il est intéressant de transformer cette intégrale sur le domaine en une intégrale sur la frontière. Différentes méthodes sont présentées. La méthode de la réciprocité duale (DRM) en multi domaine 2D est particulièrement élaborée. En prenant en compte les termes sources, nous pourrions faire une caractérisation quantitative de la dispersion de la phase secondaire dans la matrice du polymère.

CHAPITRE IV

4 Résultats de la simulation numérique

4.1 Préambule

Dans le cadre de cette thèse, deux types de simulation par la méthode des éléments frontières sont menés. En 3D, nous avons développé un logiciel pour résoudre les problèmes d'écoulements de fluides newtoniens incompressibles. Ces simulations nous permettent de faire des études qualitatives des performances de différents dispositifs d'extrusion (vis simple, différentes têtes de mélanges etc.). Pour faire une étude quantitative, afin d'obtenir une optimisation finale de la géométrie du dispositif utilisé, une analyse du problème complètement non-newtonienne est nécessaire. Pour résoudre ces problèmes d'écoulement fortement non-linéaires dû à la viscosité, les simulations en 2D sont réalisées. La considération de l'écoulement non-newtonien permet d'avoir des informations précises sur le type d'écoulement ou les grandeurs des contraintes engendrées par l'écoulement.

Avant d'appliquer les solutions de la méthode des éléments frontières à l'extrusion, ces solutions doivent être validées avec les solutions analytiques connues.

4.2 Résultats de la simulation 3D par la méthode des éléments frontières

Une fois que les solutions externes sont obtenues, à partir de celles-ci le calcul aux points internes est effectué. Comme cela a été expliqué dans le *Chapitre III*, la méthode des éléments frontières permet de calculer les vitesses, les gradients de vitesse, les contraintes et toutes autres inconnues aux points internes. Le nombre des points internes peut être différent et ils peuvent être distribués de plusieurs façons; aléatoires ou régulières. D'habitude, ces points internes sont distribués dans des zones où il y a un

intérêt de calculer ces inconnues. Afin de valider notre calcul, nous avons comparé les solutions obtenues par la méthode des éléments frontières et celles obtenues analytiquement pour des écoulements de Poiseuille et de Couette. Pour cela, nous avons comparé les valeurs des vitesses. Les résultats obtenus sont en bon accord avec les solutions analytiques. Dans ce travail, nous avons choisi de présenter l'écoulement annulaire entre deux cylindres afin de valider ce logiciel dans le cas d'écoulements newtoniens en 3D.

Une vitesse de rotation Ω est appliquée sur le cylindre interne et une différence de pression ($P_o - P_l$) sur les sections droites (Figure 4-1).

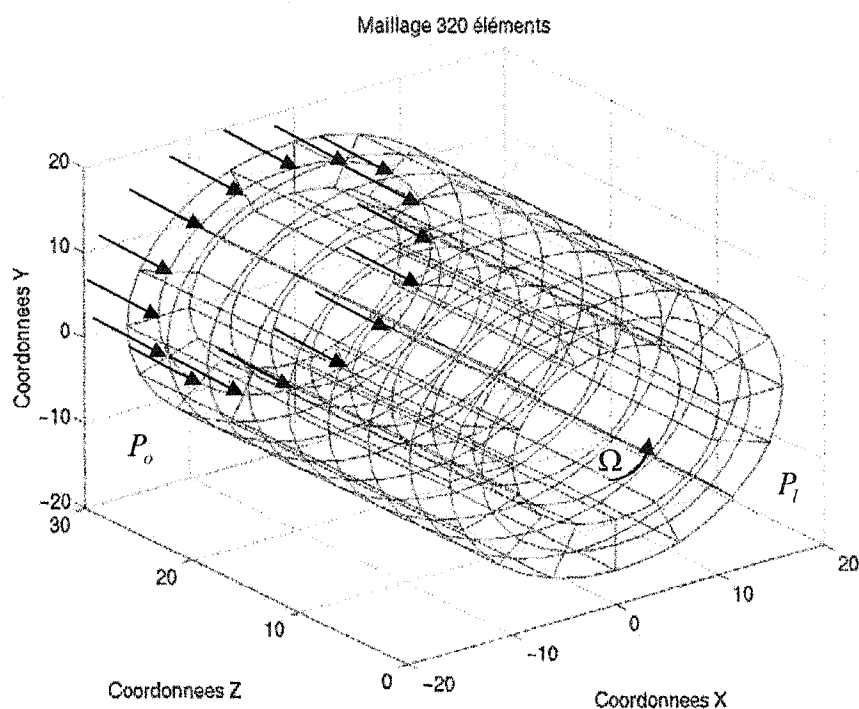


Figure 4-1: Maillage avec les conditions limites appliquées

Le problème possède une composante de vitesse suivant l'axe z et une composante de vitesse angulaire (composante x-y). La solution analytique de la vitesse aux points

internes est la superposition de la vitesse due à la différence de pression et de la vitesse due à la rotation du cylindre. La solution analytique de la vitesse due à la différence de la pression est donnée par (Bird, Stewart et al., 1960):

$$V_z(r) = \frac{(P_o - P_l)R_2^2}{4\mu L} \left[1 - \left(\frac{r}{R_2} \right)^2 + \left(\frac{1 - (R_1/R_2)^2}{\ln(R_2/R_1)} \right) \ln \frac{r}{R_2} \right] \quad (4.1)$$

Où, P_o est la pression à l'entrée, P_l est la pression à la sortie de la géométrie, R_1 est le rayon du cylindre interne, R_2 est le rayon du cylindre externes, μ est la viscosité newtonienne. La solution analytique de la composante radiale de la vitesse est donnée par (Agassant, 1996):

$$V_\theta(r) = \frac{\Omega R_1^2}{R_2^2 - R_1^2} \left(\frac{R_2^2 - r^2}{r} \right) \quad (4.2)$$

Pour la comparaison des résultats numériques avec les résultats analytiques, le rayon du cylindre interne $R_1 = 10 \text{ mm}$ et le rayon du cylindre externe $R_2 = 16 \text{ mm}$. La différence de pression est donnée par $P_o - P_l = 10 \text{ kPa}$. La vitesse du cylindre interne $\Omega = 10 \text{ rad/s}$. La viscosité newtonienne est donnée par $\mu = 2 \text{ kPa}$.

Sur la Figure 4-2 la confrontation des résultats numériques et analytiques de la vitesse axiale est présentée. Pour faire cette confrontation nous avons fait un calcul pour 9 points internes qui sont situés entre les deux cylindres et à demi longueur des cylindres suivant l'axe Z. On peut constater qu'il y a une bonne corrélation entre ces deux calculs.

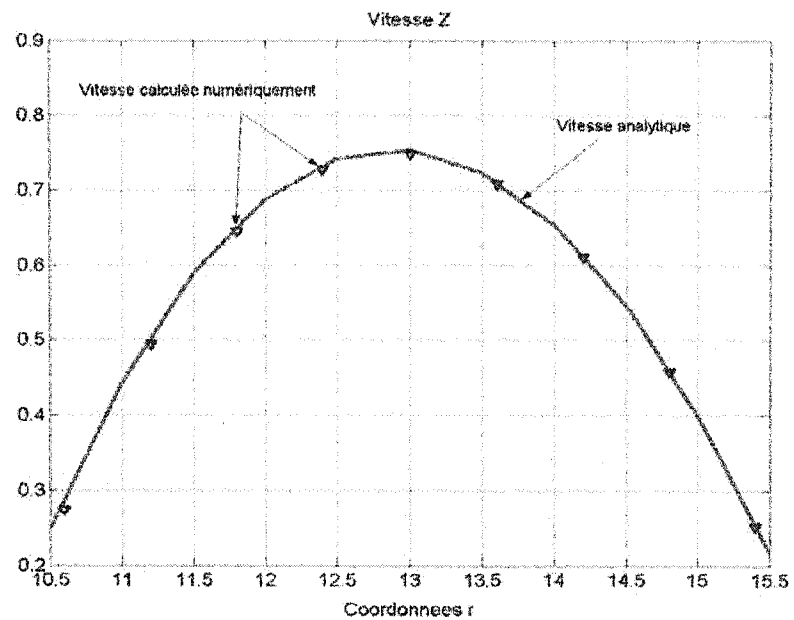


Figure 4-2: Résultats analytique et numériques de la vitesse V_z [mm/s] suivant la position radiale

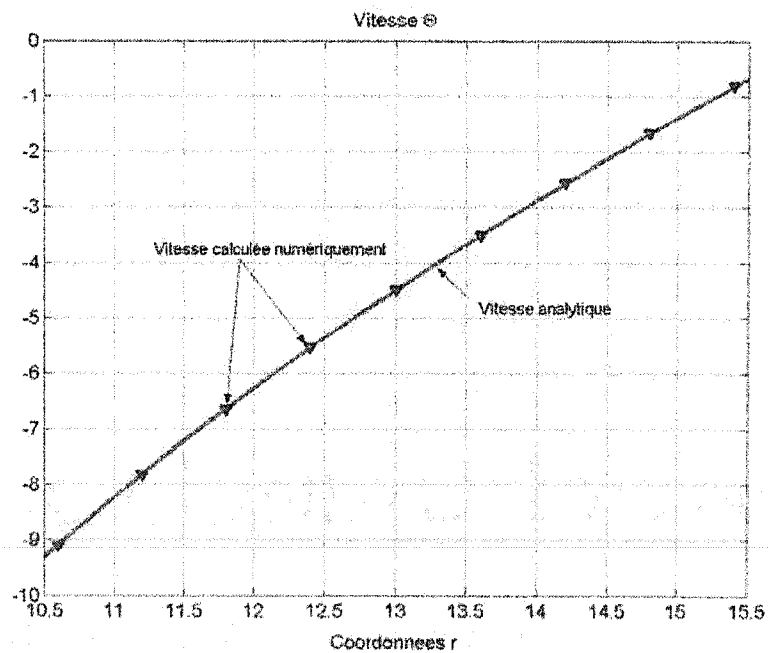


Figure 4-3: Résultats analytiques et numériques de la vitesse V_θ [mm/s] suivant la position radiale

La confrontation des résultats analytiques et numériques de la vitesse radiale V_0 est donnée sur la Figure 4-3. Les points internes sont situés comme dans le cas précédent. Si on trace cette vitesse sur un graphique en isovaleurs en situant tous les points internes sur un plan (z-y) nous obtenons les résultats donnés sur le graphique de la Figure 4-4. De même, l'erreur est tracée aussi sur un graphique en isovaleurs sur la Figure 4-5, où l'erreur est calculée d'après la relation:

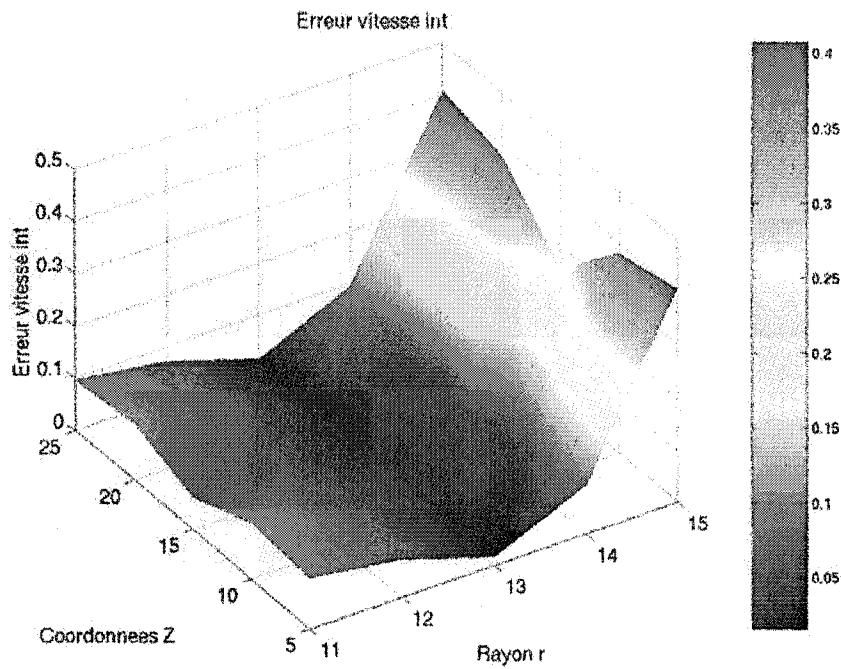


Figure 4-4: Vitesse V_0 [mm/s] tracée pour les points internes situés sur le plan z-y

$$ErrV[\%] = \left| \frac{V_{analytique} - V_{numérique}}{V_{analytique}} \right| \cdot 100 \quad (4.3)$$

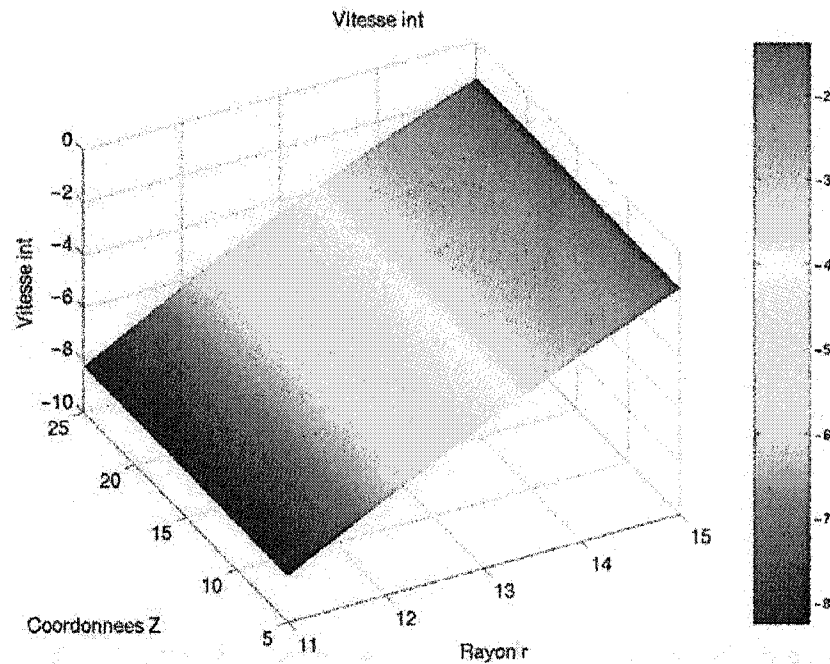


Figure 4-5: Graphique isovaleurs de l'erreur de vitesse en [%] dans le plan z-y

On peut remarquer que les confrontations donnent des résultats excellents. Une bonne précision du calcul du champ des vitesses nous permet de tracer le suivi des particules qui correspondent aux points internes. Le suivi des particules donne une représentation visuelle de l'écoulement et peut être un outil efficace pour présenter la distribution des particules lors du procédé du mélange. Lors du tracé des particules, en utilisant un pas de temps fini Δt , les particules vont avoir tendance à sortir de la tangente de leur parcours en quittant leur ligne de courant. Pour corriger cette erreur, la méthode de Crank-Nicolson est utilisée :

$$x_i^{t+1} = \frac{1}{2}(u_i^{t+1} + u_i^t)\Delta t + x_i^t \quad (4.5)$$

Où, x_i^{t+1} est la nouvelle position de la particule, x_i^t est la position précédente, u_i^{t+1} et u_i^t sont respectivement les vitesses implicite et explicite.

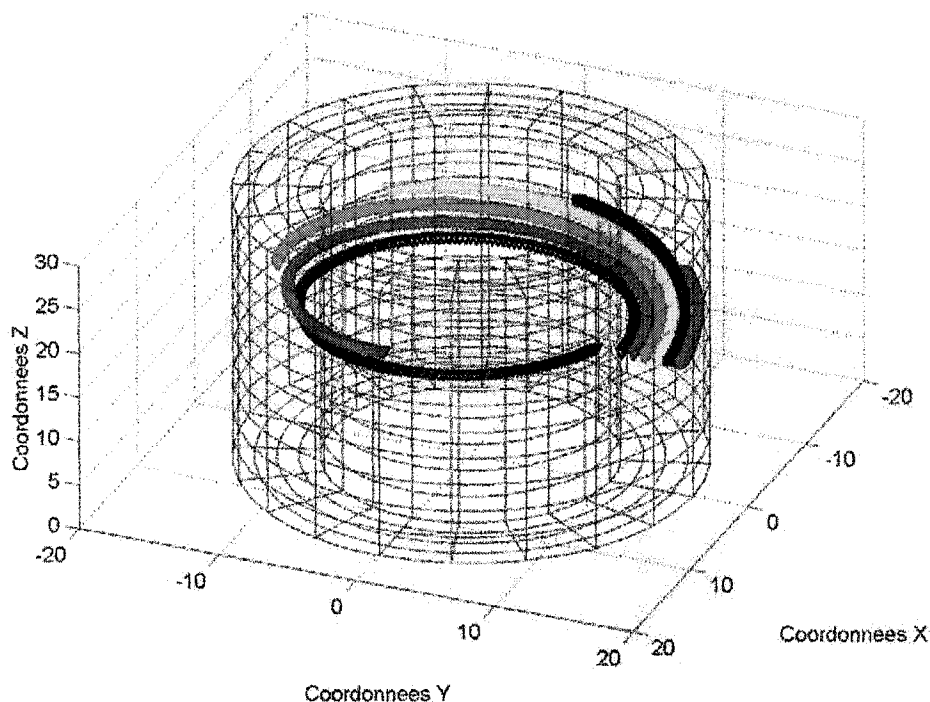


Figure 4-6: Suivi des particules lors de l'écoulement de la figure 1

Sur la Figure 4-6, le suivi des particules est présenté en utilisant 6 points internes. Un pas de temps $\Delta t = 0.05s$ est utilisé en faisant 200 incréments pour tracer le parcours des particules. Un nombre restreint de points internes est utilisé afin d'obtenir une représentation claire de ce suivi des particules.

4.3 Simulation numérique pour une vis simple

Une fois que nous avons validé la solution obtenue par la méthode des éléments frontières, nous pouvons l'appliquer au cas de l'extrusion monovis. Premièrement,

l'extrusion avec une vis simple sera modélisée. Une géométrie de la vis est représentée sur la Figure 4-7.

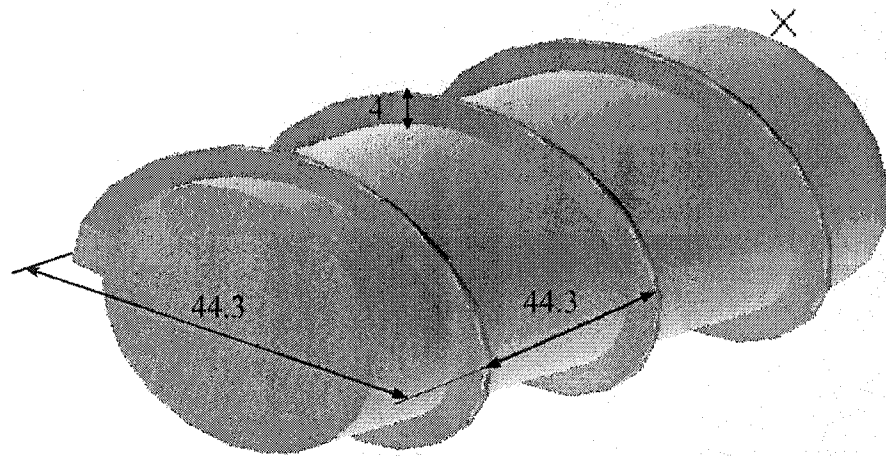


Figure 4-7: Géométrie d'une partie de la vis

La géométrie de la vis est représentée en se limitant à deux filets de la vis. Les dimensions de la vis sont identiques à celles utilisées dans notre étude expérimentale. Le diamètre de la vis est de 45mm, la profondeur du canal est de 5mm et la largeur du canal est de 44,5mm. Le maillage de cette géométrie réalisé à l'aide du logiciel Ideas® est représenté sur la Figure 4-8. En effet, ces sont les surfaces du fluide qui sont en contact avec la vis ou avec le fourreau et deux surfaces imaginaires du fluide à l'extrémité de la géométrie qui sont maillées. La vis est supposée être immobile, la vitesse est imposée sur le fourreau; une différence de pression est imposée aux extrémités du canal.

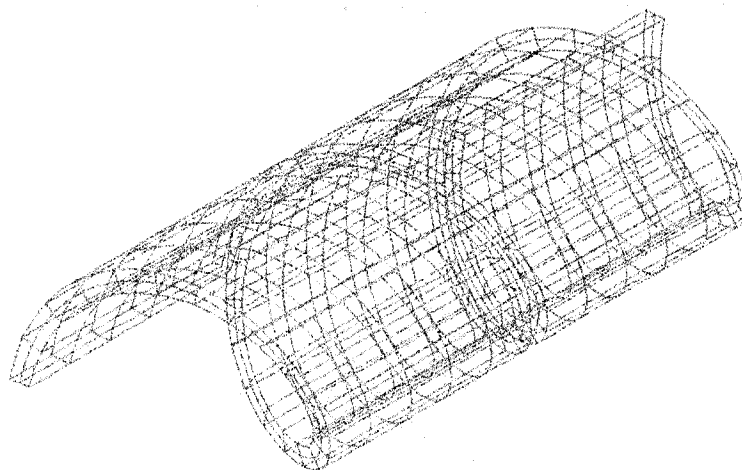


Figure 4-8: Maillage de deux filets de la vis

Pour ce maillage nous avons utilisé 552 éléments quadratiques avec 1658 nœuds. Les points internes sont placés arbitrairement à l'intérieur de la grille (du maillage). Pour représenter la distribution de la pression sur la Figure 4-9, 140 points internes sont placés sur la surface moyenne le long du canal. La vitesse de rotation de 10rpm est imposée sur la surface extérieure, les autres surfaces sont supposées être immobiles en supposant une perte de charge entre les deux extrémités égale à 0.

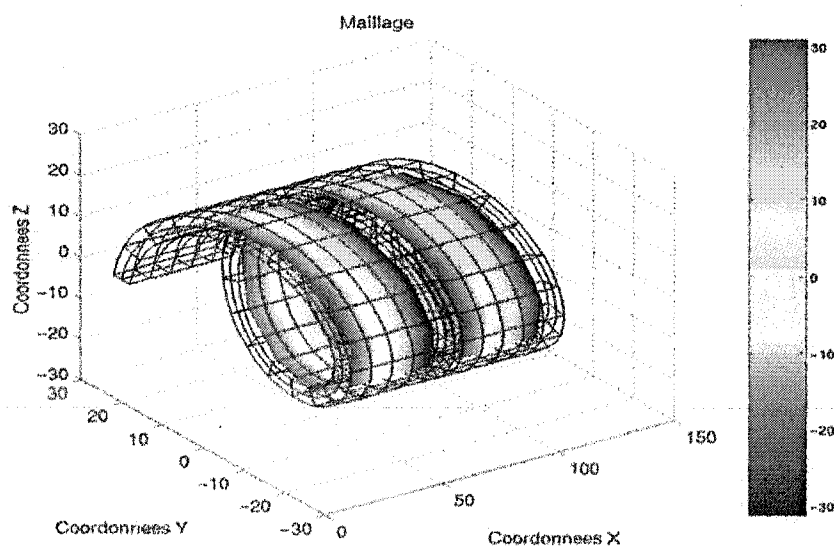


Figure 4-9: Distribution de la pression le long du canal

De cette façon, il est possible de voir l'effet de la vitesse sur la pression le long du canal. Suivant la largeur du canal, nous retrouvons bien un profil linéaire de la pression, correspondant à la littérature.

La représentation de profils de vitesse est très délicate afin d'avoir une bonne visibilité de celle-ci. La représentation vectorielle est très encombrante sans faire des zooms ou s'intéresser qu'à une petite partie de la géométrie. Pour cette raison, la meilleure solution est de représenter le suivi de quelques particules le long du canal.

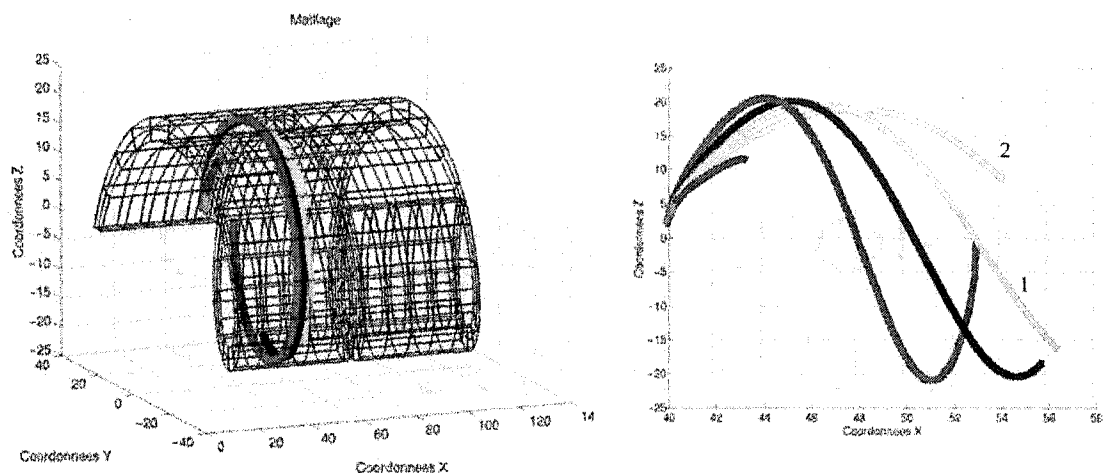


Figure 4-10: Le suivi des particules

Le suivi de six particules dans le canal d'une vis est présenté sur la Figure 4-10. Au départ six points internes sont placés à l'entrée de la géométrie, sur la même largeur mais à différentes hauteurs. La particule qui est la plus proche du fourreau (particule bleue) sera entraînée par la vitesse du fourreau et va parcourir la plus longue distance. Par contre, la particule plus proche de la vis (particule rouge) aura un parcours moins long dû à la vitesse du fourreau mais elle sera entraînée par la différence de pression. La particule verte (1) aura un parcours le plus à droite par rapport aux autres particules dû à la superposition de la vitesse du fourreau et de la différence de pression entre les filets. Ce profil de vitesse correspond bien au profil de la vitesse en 2D obtenu par un calcul

analytique ou numérique (par exemple la méthode des éléments frontières) sur la Figure 4-11.

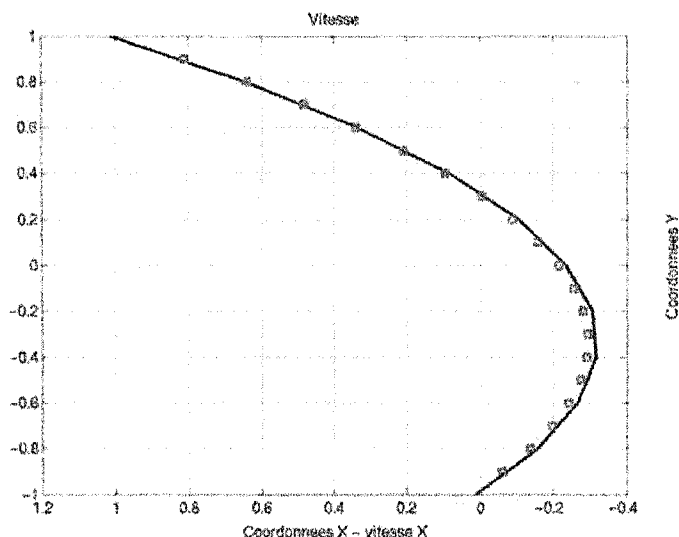


Figure 4-11: Profil de vitesse transversale dans un canal de la zone de pompage

Le suivi des particules permet aussi de voir la distribution des particules dans le cas de mélange des polymères avec différents types de charges ou autres additifs.

D'après le graphique de la Figure 4-10, nous constatons que toutes les particules ne passent pas le même temps dans la zone de pompage. On va donc utiliser la notion de distribution de temps de séjour afin de calculer le temps passé par chaque particule observée dans une partie de la zone de pompage. Pour calculer le temps de séjour des particules, nous avons introduit deux plans perpendiculaires à l'axe longitudinal du canal. Le premier est placé à l'entrée du canal et le second à une distance donnée du premier plan. Une vingtaine de points internes (particules) sont placés sur le même plan initial. Après avoir tracé le suivi des particules, nous sommes capables de calculer le temps de passage entre ces deux plans. Après avoir calculé les temps de séjour moyen et le temps de séjour de chaque particule, la fonction de distribution de temps de séjour est

représentée sur le graphique de la Figure 4-12. Les résultats obtenus correspondent bien aux résultats de la littérature (Chapitre I, Figure 24) en montrant bien qu'une extrudeuse monovis est un mauvais outil de mélange.

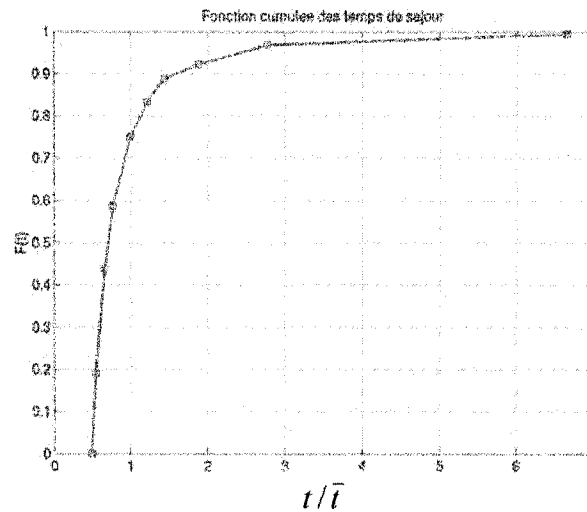


Figure 4-12: Fonction cumulée de temps de séjour

4.3.1 Performances dispersives d'une vis

Dans cette étude numérique, les performances dispersives d'une vis sont étudiées en calculant le nombre d'écoulement qui nous permettra de caractériser le type d'écoulement (expliqué dans la section 1.4.1). La distribution de nombre d'écoulement est représentée sur la Figure 4-13.

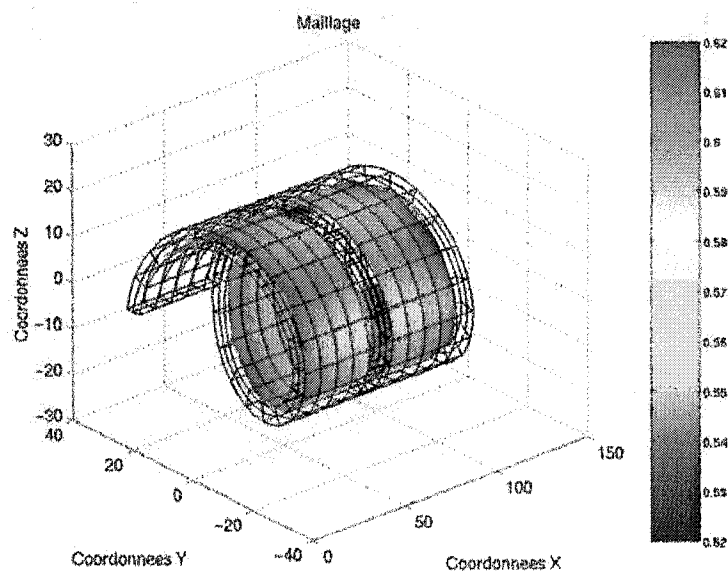


Figure 4-13: Distribution du "flow number" le long du canal

Une vis d'extrusion généralement n'est pas un bon mélangeur. D'après les isovaleurs de la Figure 4-13, le nombre d'écoulement est proche de 0.5 (0.53-0.55) quasiment sur toute la géométrie. Cela montre bien la présence d'un écoulement de cisaillement pur.

4.4 Modélisation d'une tête de mélange par BEM

Comme nous avons déjà mentionné dans le *Chapitre I*, la tête de mélange "Spiral Maddock" est utilisée pour la modélisation par la méthode des éléments frontières. Les dimensions de la tête de mélange sont données sur la Figure 4-14.

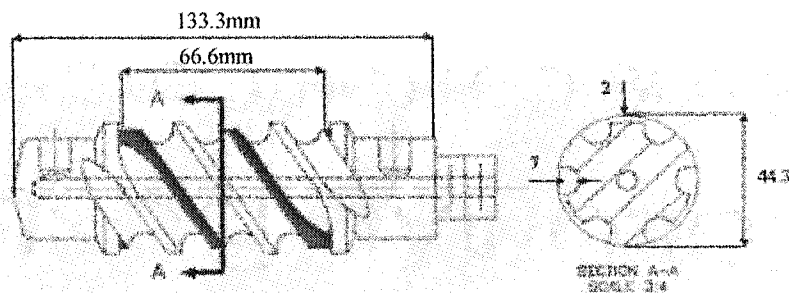


Figure 4-14: Tête de mélange "Spiral Maddock" avec sa coupe transversale

La géométrie de la tête de mélange à modéliser est un peu modifiée par rapport à la géométrie réelle de la tête de mélange afin de pouvoir la dessiner et faire un maillage à l'aide du logiciel de simulation (I-DEAS®). Cette géométrie modifiée prend la forme de la Figure 4-15a.

Les trois paires de canaux de la tête de mélange étant identiques, nous allons nous contenter de modéliser une seule paire de canaux. Les paires de canaux sont aussi isolées l'une de l'autre ne permettant pas à la matière de passer d'une paire de canaux à l'autre. La matière entre dans le premier canal, ensuite elle est forcée de passer à travers le passage étroit entre deux canaux afin de sortir par le second canal (Figure 4-15b).

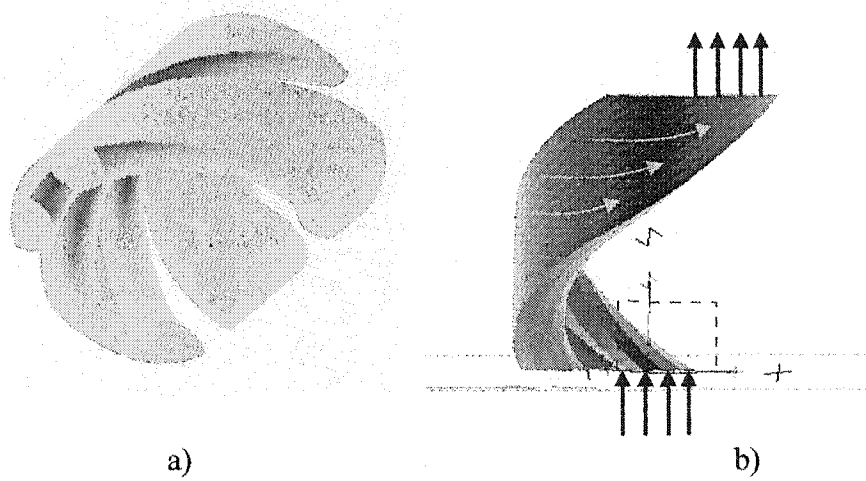


Figure 4-15: Géométrie modélisée de la tête de mélange; a) géométrie complète, b) une paire de canaux

Les conditions aux limites sont similaires à celles appliquées à l'extrusion avec une vis simple. Une vitesse de rotation est appliquée au fourreau, une vitesse moyenne correspondant à un débit constant est imposée à l'entrée et à la sortie de la tête de mélange (Figure 4-16). Le reste de la géométrie est supposé être immobile ($v=0$).

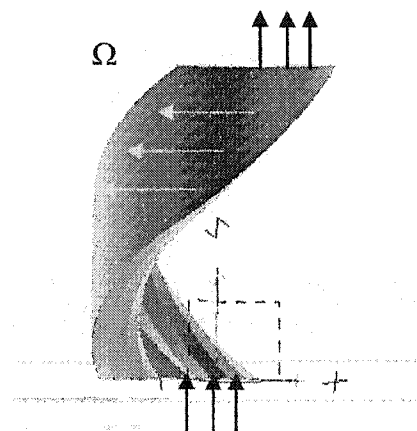
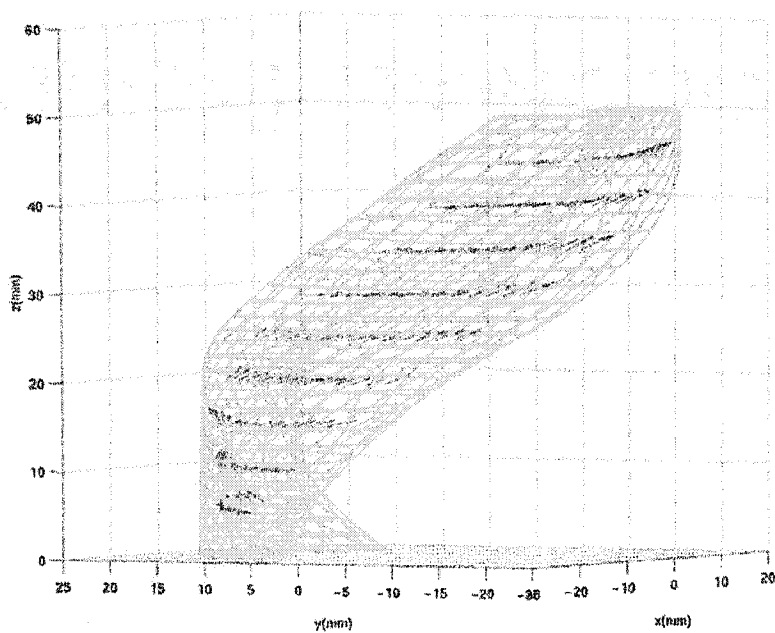


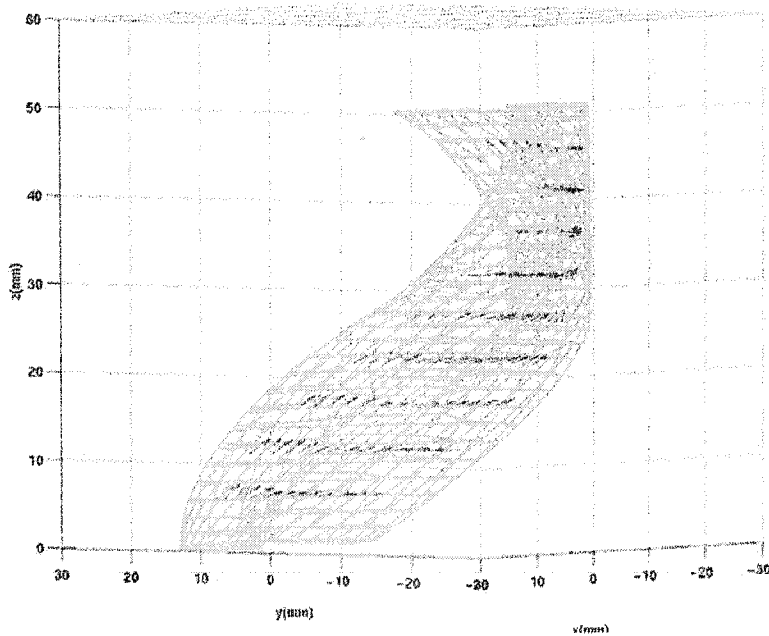
Figure 4-16: Conditions limites imposées

Pour modéliser la tête de mélange, nous avons utilisé un maillage de 791 éléments quadratiques avec 2430 nœuds. Comme la géométrie a une forme spirale, et que le passage entre deux canaux est très étroit, ce nombre d'éléments élevé est nécessaire afin d'obtenir une solution satisfaisante. Un maillage raffiné est surtout nécessaire dans les géométries ayant un entrefer très faible entre deux surfaces de maillage à cause de la sensibilité de calcul aux points internes très proches des frontières. Les points internes sont placés sur une surface médiane du passage entre canaux en traversant la géométrie complète de la tête de mélange. Nous avons fait ce choix, car nous nous intéressons surtout à l'effet de passage entre deux canaux sur la dispersion. Ce calcul est réalisé sur une station IBM RS6000, avec un temps CPU de 125min.

Afin de montrer le champ d'écoulement nous avons tracé les vecteurs vitesse aux points internes. Plusieurs figures sont montrées pour mieux voir et comprendre la représentation de ces vecteurs [Figure 4-17a) et b), Figure 4-18a) et b)].

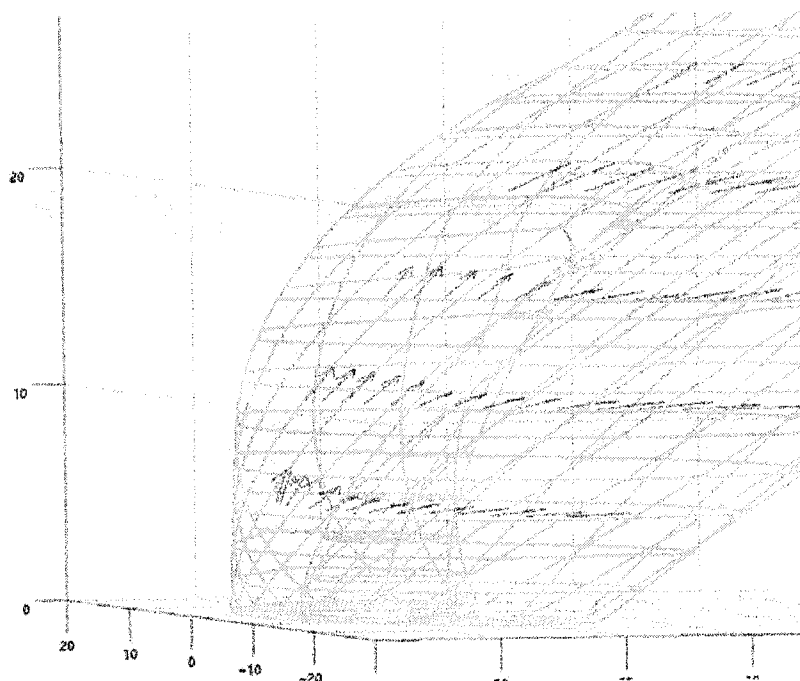


a)

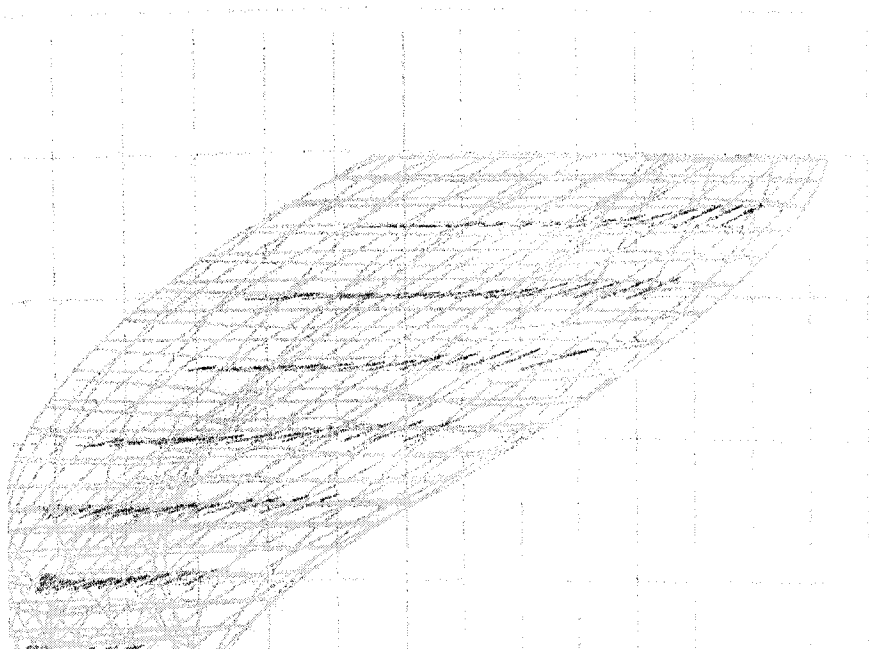


b)

Figure 4-17: Vecteurs vitesses dans la tête de mélange



a)



b)

Figure 4-18: Agrandissement de la géométrie en représentant les vecteurs vitesses

Sur les figures précédentes (Figure 4-17 et Figure 4-18) les champs de vitesse montrent bien l'écoulement représenté sur la Figure 4-15b. La vitesse de rotation du fourreau aidée par la différence de pression va entraîner la matière pour passer du premier canal au second. A l'entrée et à la sortie de la tête de mélange, la vitesse suivant l'axe Z va être dominante, par rapport au reste de la géométrie où la vitesse radiale sera plus importante.

Le but de cette thèse étant le calcul de la dispersion, plusieurs vitesses de rotation sont imposées, afin de voir l'impact de la vitesse sur le nombre d'écoulement. La dispersion est calculée en utilisant le nombre d'écoulement comme dans le cas d'une vis simple. La dispersion est calculée aux points internes et représentée sur les graphiques en isovaleurs. Pour la première série de simulations, nous travaillons avec un débit constant de 210g/min et les vitesses de rotation de 15rpm, 20rpm et 25rpm (Figures 19, 20 et 21). La deuxième série de simulations est réalisée avec un débit de 400g/min et les vitesses de rotations de 15rpm, 20rpm et 25rpm (Figures 22, 23 et 24). Les débits utilisés dans cette simulation correspondent aux débits de l'étude expérimentale (Chapitre II).

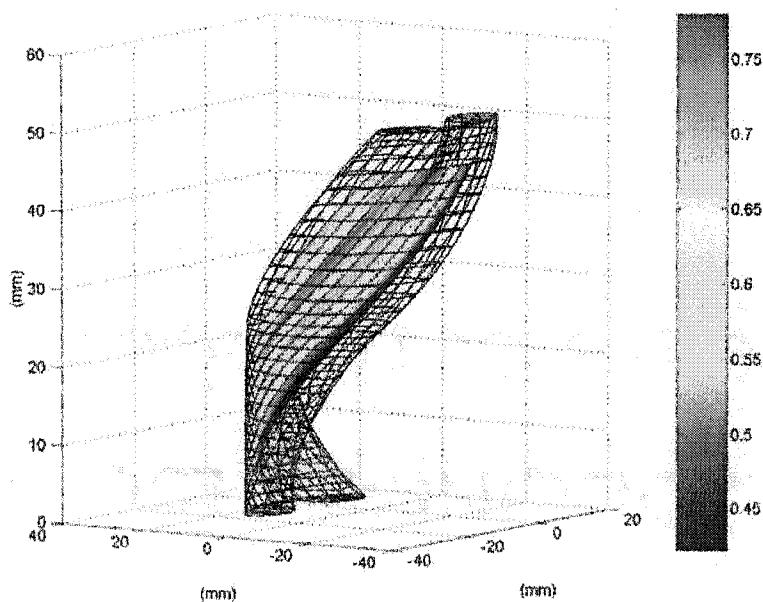


Figure 4-19: Distribution du nombre d'écoulement (avec un débit de 210g/min et une vitesse de rotation de 15rpm)

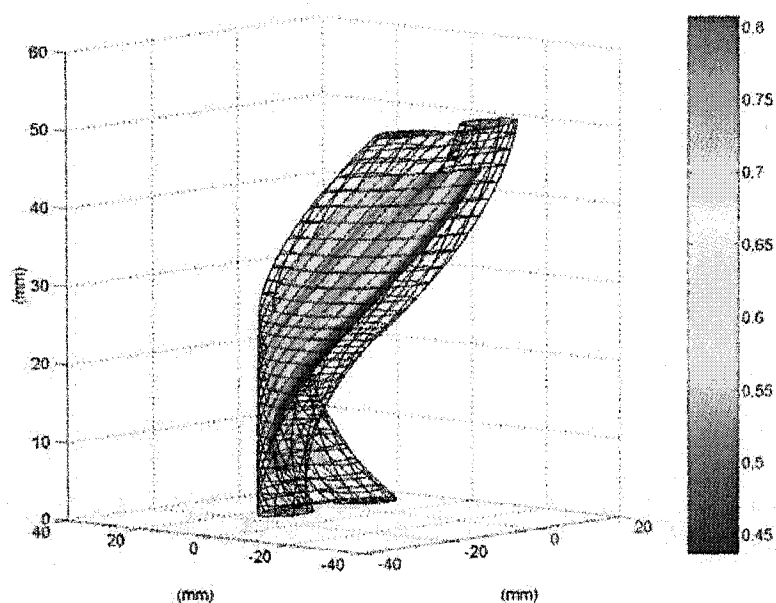


Figure 4-20: Distribution du nombre d'écoulement (avec un débit de 210g/min et une vitesse de rotation de 20rpm)

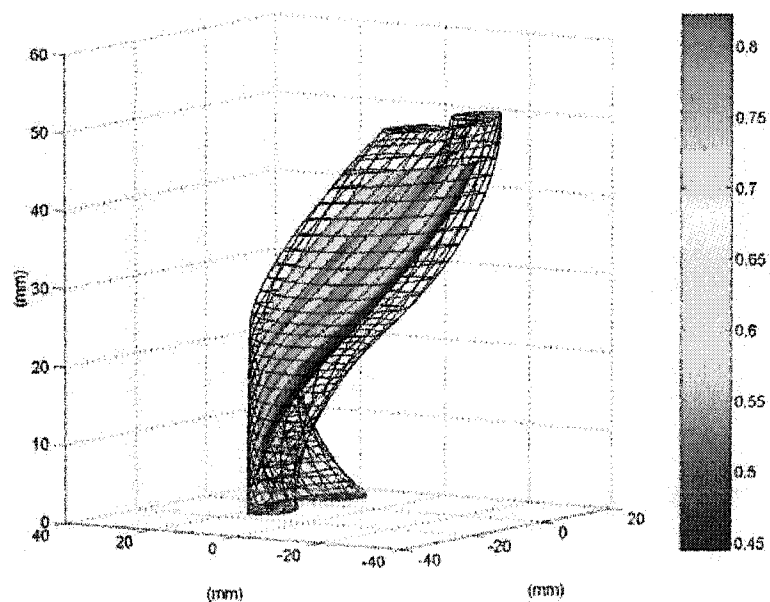


Figure 4-21: Distribution du nombre d'écoulement (avec un débit de 210g/min et une vitesse de rotation de 25rpm)

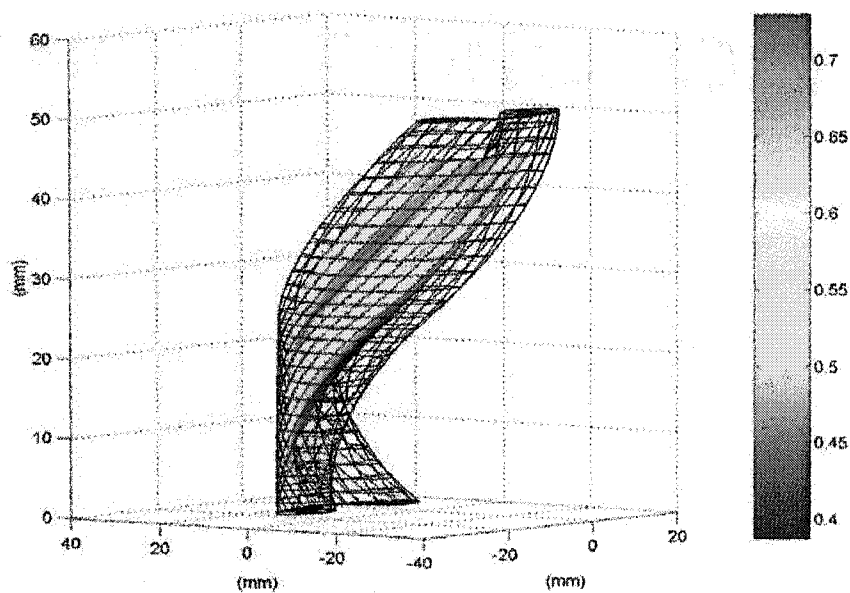


Figure 4-22: Distribution du nombre d'écoulement (avec un débit de 400g/min et une vitesse de rotation de 15rpm)

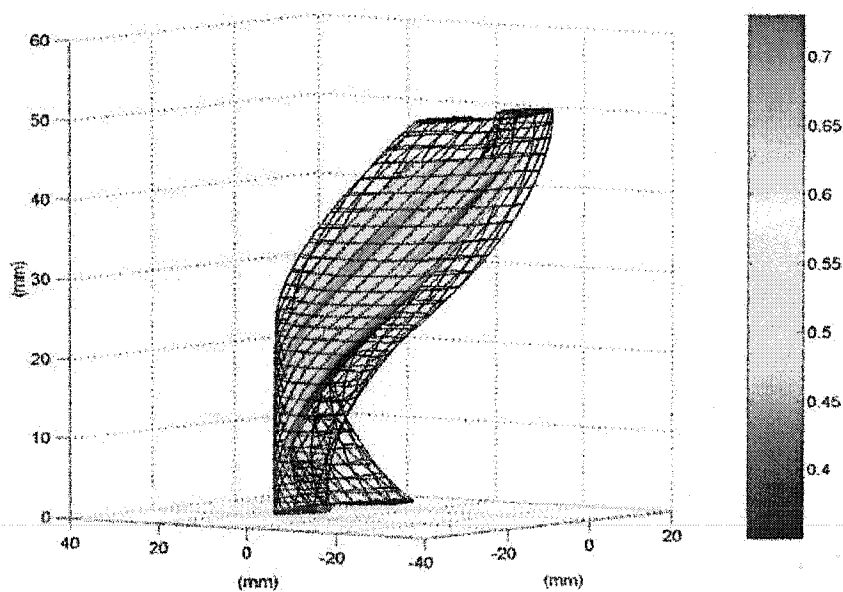


Figure 4-23: Distribution du nombre d'écoulement (avec un débit de 400g/min et une vitesse de rotation de 20rpm)

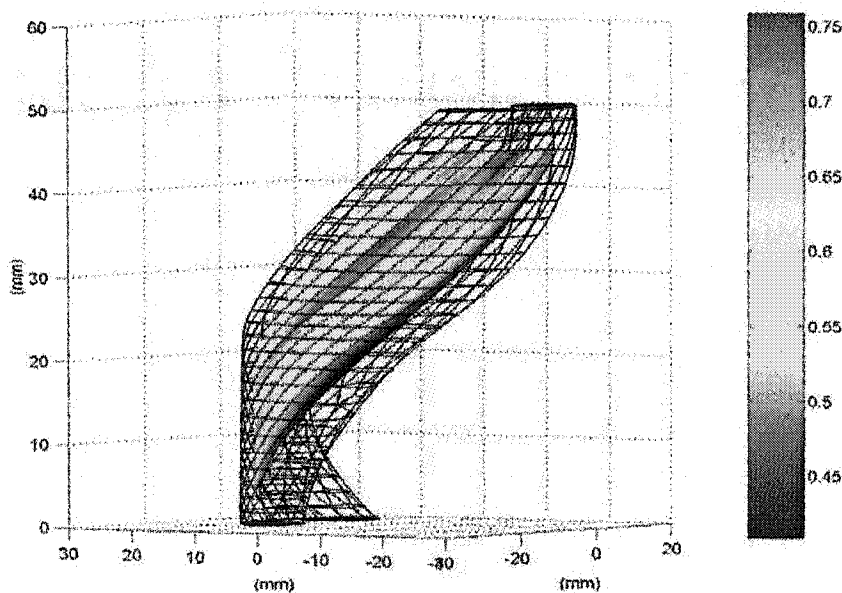


Figure 4-24: Distribution du nombre d'écoulement (avec un débit de 400g/min et une vitesse de rotation de 25rpm)

D'après les simulations réalisées, nous pouvons observer que les valeurs du nombre d'écoulement sont le plus élevées aux points internes qui se trouvent à l'entrée du passage entre deux canaux. Ces résultats montrent qu'un écoulement élongationnel est bien présent dans cette partie de la géométrie (Figure 8 du *Chapitre I*) et que les déformations élongationnelles sont plus importantes dans cette zone que dans le reste de la géométrie. Nous pouvons remarquer que l'augmentation de la vitesse de rotation augmente le nombre d'écoulement. Dans la seconde série de simulation ayant un débit massique de 400g/min, l'effet de la différence de pression générée est plus important. Par rapport à la première série le nombre d'écoulement moyen est plus important (0.65 versus 0.61) mais à l'entrée du passage entre deux canaux, le nombre d'écoulement est un petit peu plus faible.

4.5 Résultats préliminaires du calcul Non-Newtonien en 2D

Comme nous l'avons déjà dit, à cause de la complexité rencontrée dans le calcul non-newtonien, le développement du logiciel est réalisé en 2D pour les fluides non-newtoniens. Etant donné qu'à présent la méthode des éléments frontières est peu adaptée aux problèmes fortement non-linéaires (ce qui est le cas des écoulements des polymères fondus), la subdivision du domaine est nécessaire. Pour cela nous avons utilisé la méthode "Multi Domain Dual Reciprocity Method" (MDRM). L'application de la méthode DRM sans subdivision du domaine s'est avérée insuffisante. Peu importe combien de points de collocation sont utilisés pour l'approximation des termes non-linéaires, pour les écoulements des polymères fondus obéissant à une loi de puissance cette méthode n'est pas applicable pour les indices de pseudo plasticité inférieures à 0.8 (Davis, 1995). Nous présentons dans ce paragraphe les premiers résultats sur l'application de MDRM aux écoulements non-newtoniens.

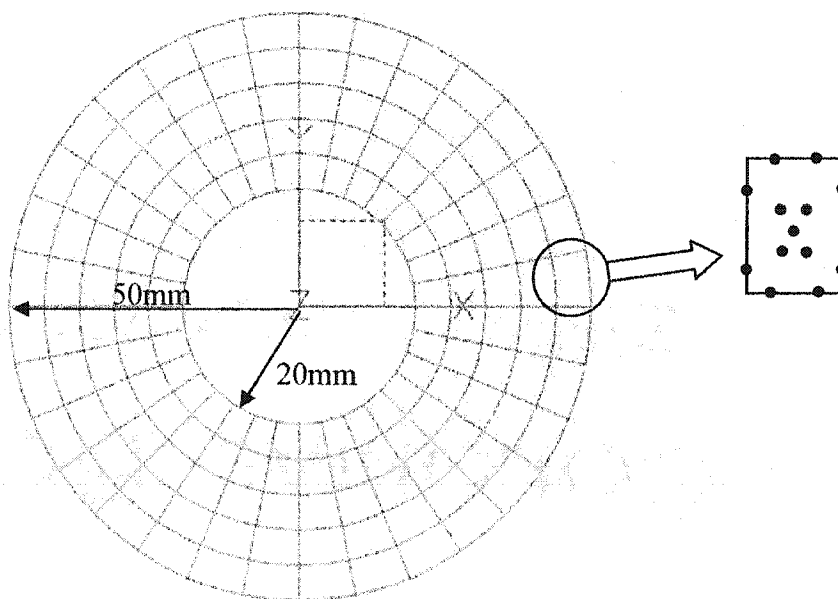


Figure 4-25: Maillage de l'écoulement de Couette

Pour valider ces calculs, nous avons pris l'écoulement de Couette comme la solution de références. Le polymère est supposé avoir un comportement non-linéaire obéissant à la loi de puissance. Le maillage de la géométrie est représenté sur la Figure 4-25. Les quadrangles du maillage de la Figure 4-25 représentent 160 sous-domaines avec 4 éléments 1D discontinus et 8 nœuds par sous domaine.

Pour un écoulement de Couette ayant un comportement pseudoplastique la solution analytique de la vitesse s'écrit (Agassant, 1996):

$$v(r) = \frac{R_1^{2/n} \Omega}{R_2^{2/n} - R_1^{2/n}} \left(\frac{R_1^{2/n} - r^{2/n}}{r^{(2-n)/n}} \right) \quad (4.6)$$

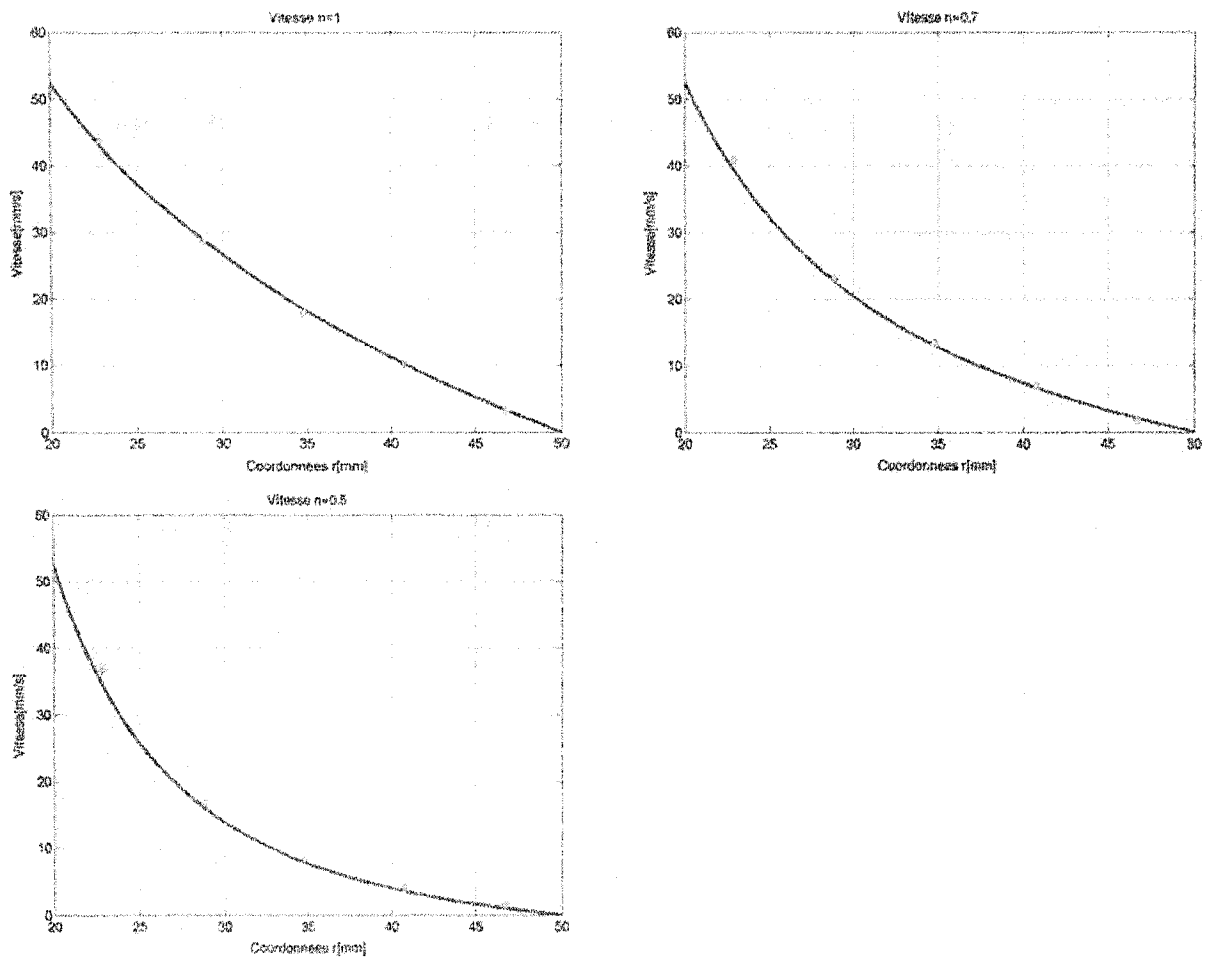


Figure 4-26: Comparaison des vitesses obtenues par le calcul numérique et par la solution analytique

Les comparaisons des solutions analytiques et numériques sont représentés sur les Figures 26 et 27.

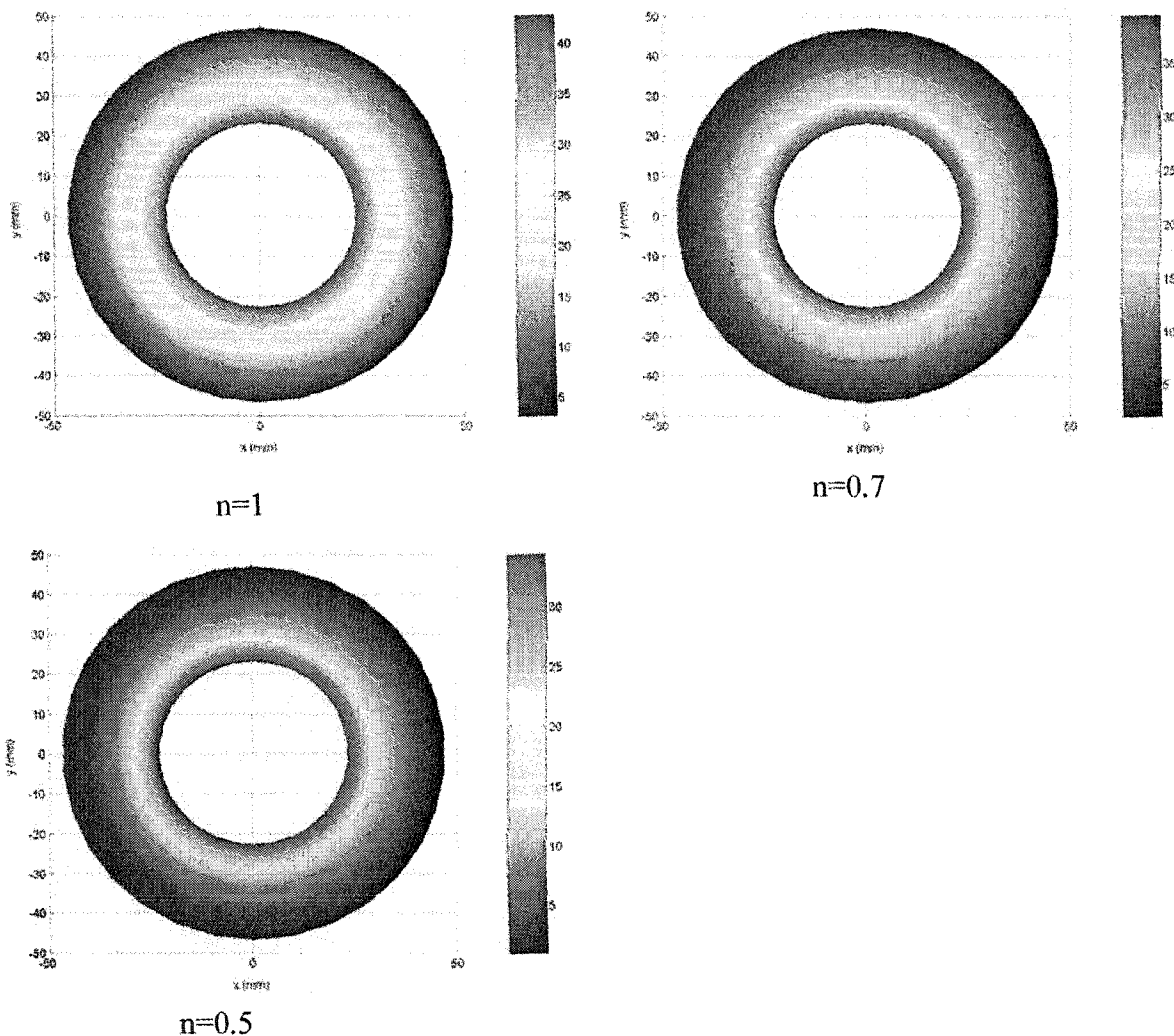


Figure 4-27: Graphiques des isovaleurs des vitesses en fonction de différents indice de pseudoplasticité

Dans le cas de calcul pour un écoulement newtonien, nous trouvons une légère différence de la solution numérique par rapport à la solution analytique causé par le type d'élément et le nombre relativement faible d'éléments. En utilisant des éléments

quadratiques ou plus d'éléments linéaires la précision de la solution numérique sera améliorée. Les erreurs calculées sont: pour $n=1 \Rightarrow Err \approx 1,2\%$, pour $n=0,7 \Rightarrow Err \approx 2,1\%$ et pour $n=0.5 \Rightarrow Err = 4.5\%$.

A partir de la solution newtonienne ($n=1$) aux points internes nous calculons la viscosité moyenne pour chaque domaine. Ensuite, nous rassemblons et résolvons le système avec les différentes propriétés pour chaque sous domaine. La méthode DRM est ensuite appliquée en calculant les gradients de vitesse à l'aide des fonctions d'approximations et les vitesses aux points de collocations. En obtenant un système d'équations non-linéaire nous appliquons la méthode de Newton-Raphson pour résoudre ce système. Un calcul itératif est nécessaire et dans ce cas où on utilise le critère $|u_i - u_{i-1}| \leq 10^{-4}$. Il faut avoir 15 itérations pour converger. Le temps de calcul est d'ordre 600 min sur une station SUN 1408Mo de RAM 400MHz. La convergence de la simulation est mise en question pour des cas où nous avons l'indice de pseudoplasticité inférieur à 0.5. Le problème est rencontré dans le calcul des gradients de vitesses dans des zones où le champ de cisaillements est très élevé ce qui nous empêche de calculer les termes sources correctement.

Le nombre de points d'approximation joue un rôle très important dans la méthode DRM et l'approximation des gradients de vitesses. En augmentant le nombre de points d'approximation la solution sera améliorée. Dans ce cas, les points d'approximations ajoutés sont en fait les points internes à l'intérieur de chaque domaine. Ils peuvent être facilement ajoutés sans modifier le schéma de calcul. Le maillage d'un domaine est montré sur la Figure 4-28 avec 12 points internes. Nous avons testé plusieurs combinaisons en variant le nombre et la disposition des points internes. Certes, le nombre élevé de points internes améliore la solution mais cela alourdit le calcul en créant de très gros systèmes matriciels: $[(2*(npa) \times 2*(npa))*(nbsd)] \times [(2*(npa) \times 2*(npa))*(nbsd)]$ (avec npa - le nombre de points d'approximation par sous domaine et $nbsd$ - le nombre de sous domaines).

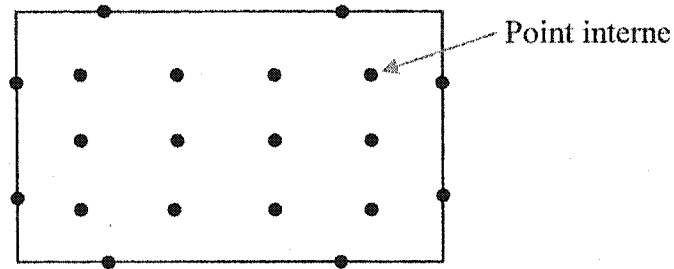


Figure 4-28: Maillage d'un sous-domaine avec les points internes

L'assemblage des matrices locale de $[H]$, $[G]$, $[\hat{u}]$ et $[\hat{T}]$, le calcul des fonctions d'approximations f , des dérivées de ces fonctions et leur assemblage dans les matrices sont des opérations très rapides. Mais par contre, c'est la résolution du système qui prend un temps important dans cette simulation. Ces matrices étant fonction de la distance r ne sont calculées et assemblées qu'une fois et puis stockées pour être utilisées par la suite.

Nous avons observé que en prenant une fonction d'approximation d'ordre 5 ($f = 1 + r + r^2 + r^3 + r^4 + r^5$) nous obtenons des bons résultats. Une augmentation de l'ordre de cette fonction (ordre supérieur à 5) n'implique pas l'amélioration de la précision.

4.5.1 Simulation non-newtonienne 2D pour la tête de mélange

Pour appliquer la méthode MDRM nous avons pris le cas de la tête de mélange en prenant sa coupe transversale (Figure 4-14). La géométrie modélisée représente deux canaux avec le passage entre eux. Le maillage de cette géométrie est montré sur la Figure 4-29.

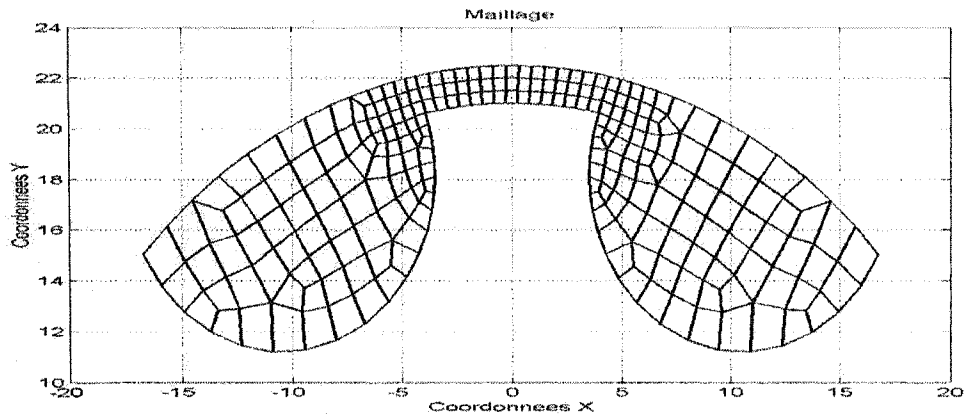


Figure 4-29: Maillage de la coupe transversale de la tête de mélange par MDRM

Pour cette simulation nous avons utilisé 229 sous-domaines avec 94 éléments externes et 916 éléments sur l'ensemble de domaine. Les conditions aux limites sont simplifiées en imposant une vitesse de rotation sur le fourreau (10rpm). Sur le reste de la géométrie nous avons imposé une vitesse nulle (Figure 4-30). Le maillage est raffiné dans la zone de passage entre deux canaux car dans cette zone nous avons la présence de taux de cisaillement très élevés. Pour mieux prendre en compte la forme de la géométrie, nous avons réalisé la simulation newtonienne en utilisant la technique multi-domaines. Cette simulation newtonienne sert ensuite à initialiser le calcul MDRM. Les propriétés du matériau utilisées sont celles d'un polymère dont la consistance est égale à $3.5 \times 10^4 \text{ N s}^n / \text{m}^2$ et l'indice de pseudoplasticité égal à 0.5.

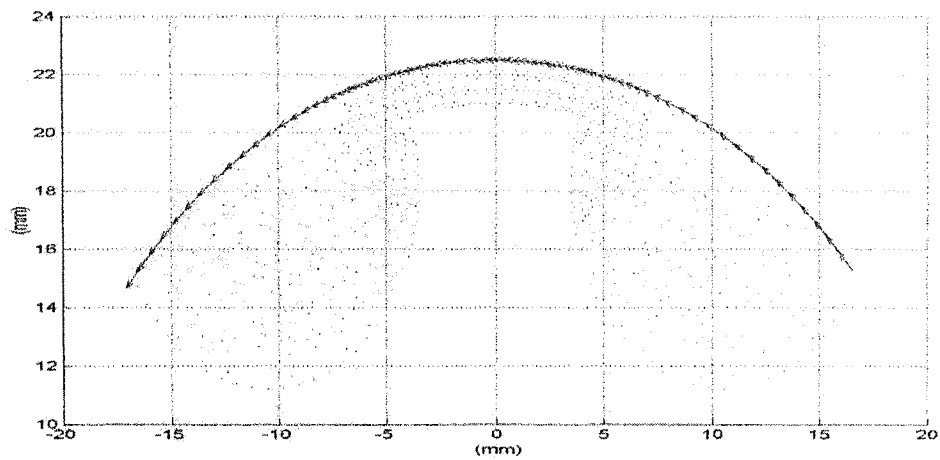


Figure 4-30: Conditions aux limites imposées

La solution des vitesses aux points internes est représentée sur les Figures 31, 32 et 33. Sur la Figure 4-31 les vecteurs vitesses sont représentés indiquant les directions et les intensités de ces vecteurs.

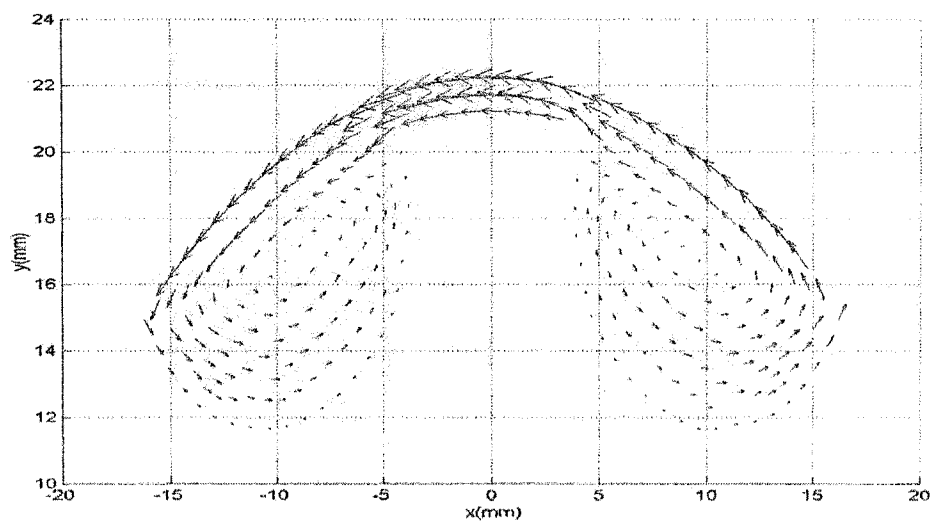


Figure 4-31: Vecteurs vitesses aux points internes (non-newtonien $n=0.5$)

Sur ces trois graphiques nous pouvons observer la circulation de la matière dans les deux canaux avec des vitesses très faibles au milieu de chaque canal. C'est surtout prononcé dans le cas non-newtonien.

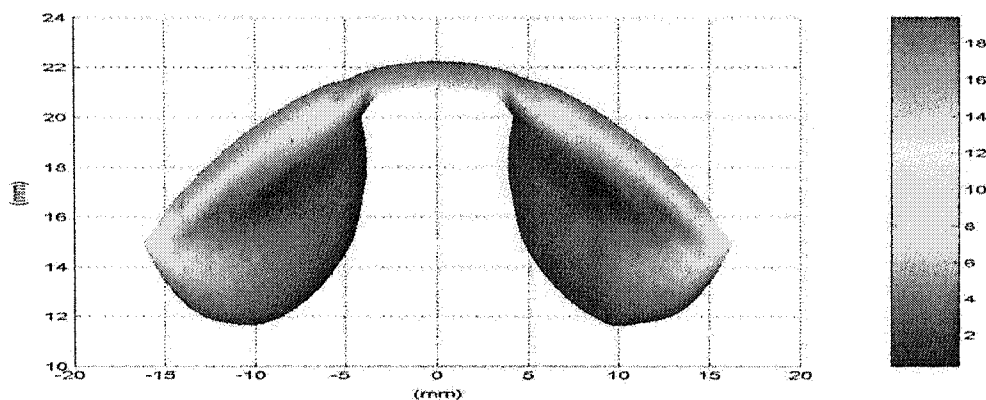


Figure 4-32: Isovaleurs de l'intensité des vitesses (newtonien $n=1$) [mm/s]

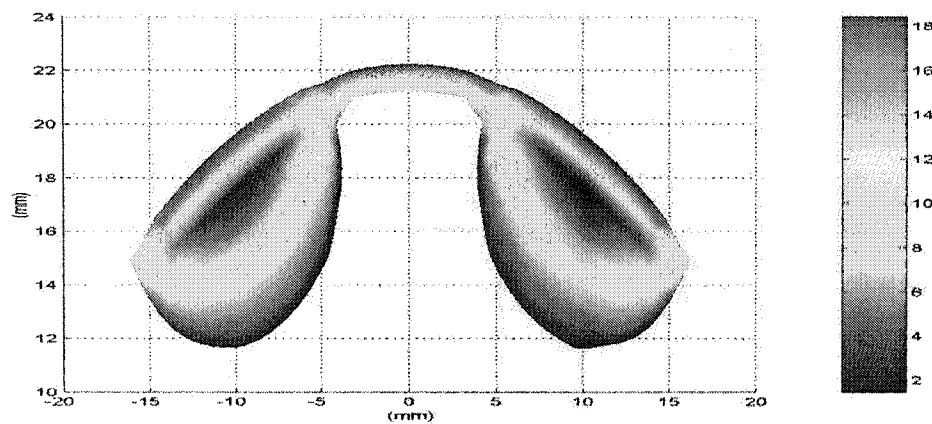


Figure 4-33: Isovaleurs de l'intensité des vitesses (non-newtonien $n=0.5$) [mm/s]

Le calcul des gradients de vitesses nous permet de déduire d'autres paramètres comme la viscosité et le nombre d'écoulement. La distribution des solutions pour le nombre

d'écoulement, ce qui permet de déterminer le type d'écoulement dans ces points est, représentée sur les figures 34 et 35.

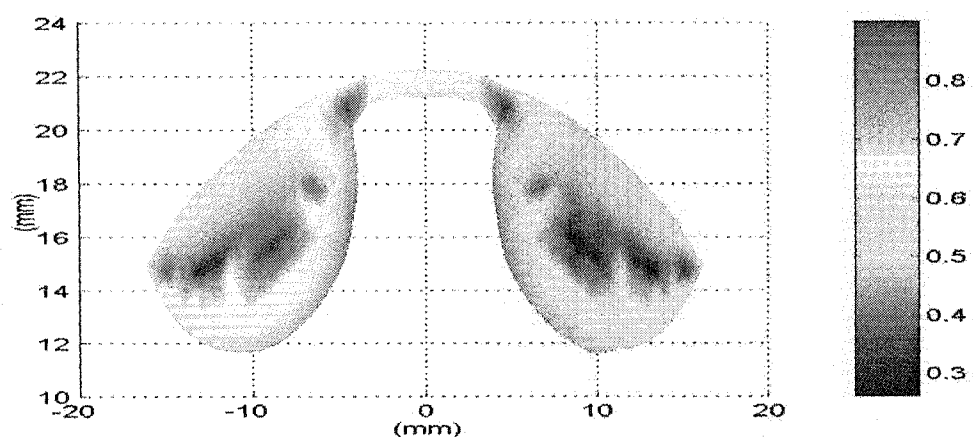


Figure 4-34: Distribution du nombre d'écoulement (newtonien)

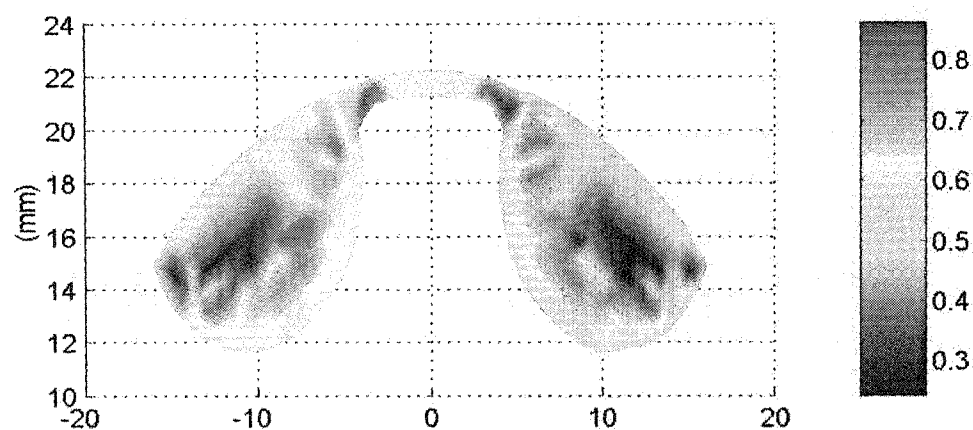


Figure 4-35: Distribution du nombre d'écoulement (non-newtonien)

Nous pouvons observer que le nombre d'écoulement est plus élevé dans les zones de l'entrée et de la sortie. Egalement, on peut observer un nombre d'écoulement très élevé dans d'autres zones comme la zone de recirculation de la matière (zone entre la frontière immobile et les milieux des canaux). Le nombre d'écoulement pour un cas newtonien donne une distribution du nombre d'écoulement qui ressemble au non-newtonien mais avec des valeurs différentes. Quelques irrégularités sont observées dans les simulations précédentes. Cela peut être causé par le maillage grossier au niveau des canaux.

4.6 Conclusion partielle

Dans ce chapitre le logiciel BEM_POLY est utilisé pour tester ses performances dans le cas des écoulements newtoniens et non-newtoniens. Les résultats obtenus pour des géométries ayant des solutions analytiques nous ont permis de valider le logiciel. Dans le cas des écoulements newtoniens, la méthode des éléments frontières s'est montrée très performante, surtout dans le cas de la simulation de suivi des particules. La distribution libre des points internes dans le cas des écoulements newtoniens n'a permis d'afficher des résultats qu'aux points "intéressants" du calcul. Nous avons fait des simulations dans des géométries rencontrées en extrusion. Nous avons pu observer la cohérence des résultats numériques avec les résultats expérimentaux. Nous avons pu nous apercevoir de l'effet faible de la vis simple et très bénéfique de la tête de mélange sur la dispersion. L'entrée et la sortie du passage entre deux canaux se sont montrées comme des zones susceptibles d'avoir des forts écoulements élongationels favorisant une meilleure dispersion. Une étude paramétrique sur la vitesse de rotation dans les simulations pour la tête de mélange a été menée afin d'observer l'influence de ce paramètre sur la dispersion. En augmentant la vitesse de rotation une amélioration de la dispersion est également obtenue.

Pour résoudre les problèmes non-newtoniens, la méthode MDRM est utilisée. Le principe de la MDRM reste le même que pour l'application de la BEM traditionnelle

sauf que dans ce cas, la géométrie est subdivisée en plusieurs sous domaines ayant des propriétés différentes. Cette subdivision permet d'obtenir des propriétés qui sont variables à une petite échelle et d'appliquer la méthode DRM. Après l'avoir validée, la méthode est appliquée dans le cas d'une tête de mélange en ne prenant que la section transversale. La distribution du nombre d'écoulement est cohérente avec celle obtenue dans les cas newtoniens en 2D et 3D.

De manière globale, pour obtenir des bonnes solutions, il est nécessaire de diminuer la taille des domaines en fonction des zones où le champ de cisaillement est élevé. Le nombre des points internes s'est avéré être un paramètre qui influence les approximations par la DRM.

Dans les premiers résultats liés aux simulations non-newtoniennes, nous avons rencontré des problèmes liés à un indice de pseudoplasticité inférieur à 0.5, à cause des calculs de gradients des vitesses dans les zones ayant de forts champs de cisaillements. Les approximations de ces gradients à partir des vitesses et des fonctions d'approximations f ne satisfont pas les conditions de conservation de la masse et de continuité des gradients de vitesse entre les domaines. Pour résoudre ce problème, l'utilisation des fonctions d'interpolations d'Hermite serait une solution (Florez and Power, 2002).

Les simulations ont été menées en 2D dans un premier temps, ce qui limite la caractérisation des éléments de mélange pour la dispersion. Une extension au cas 3D constitue une voie de développement.

Conclusion générale

En extrusion monovis qui est un des procédés les plus utilisés dans l'industrie de mise en forme des matières plastiques, il est très intéressant d'obtenir aussi un mélange efficace. En faisant des modifications sur les équipements dans l'extrudeuse, cet objectif est réalisable. Pour obtenir donc un mélange efficace, différentes méthodes sont possibles, notamment les méthodes expérimentales et les méthodes numériques. Les deux méthodes sont utilisées dans cette étude en portant plus d'attention sur la modélisation numérique par la méthode des éléments frontières (BEM).

Dépendant du type de matrice et de la phase secondaire, différentes techniques de mesure de la dispersion peuvent être utilisées. Dans notre étude expérimentale, nous avons utilisé trois différentes méthodes:

- mesure visuelle des pics dans des bandes de PVC,
- mesure de la dispersion des charges de CaCO_3 dans les films gonflés de PP par la microscopie optique,
- mesure de la dispersion dans des échantillons polis de PP chargés de CaCO_3 par la microscopie optique à réflexion.

Ces méthodes sont donc caractérisées par la préparation des échantillons et la technique d'observation. La vitesse de rotation, la configuration de la vis et la pression (dans le cas de la dispersion de CaCO_3 dans PP) sont les paramètres les plus influents pour la dispersion. Nous avons aussi pu montrer qu'il n'existe pas une méthode générale de mesure de la dispersion et qu'elle dépend de plusieurs facteurs, tel que le type de matrice, le type de la phase secondaire et suivant le taux volumique de la phase secondaire ou des charges dans la matrice.

Un logiciel en 3D POLY_BEM a été développé et validé par la comparaison avec des solutions analytiques. Il a alors été utilisé pour caractériser l'écoulement d'un polymère

fondue dans une extrudeuse monovis avec et sans tête de mélange. La répartition sous forme isovaleurs du nombre d'écoulement a permis de confirmer le fait que l'extrudeuse monovis sans tête de mélange était un mauvais mélangeur. En revanche, dans nos simulations avec la tête de mélange, les zones d'entrée et de sortie du passage entre deux canaux se sont avérées très efficaces pour créer un écoulement élongationnel favorisant la dispersion.

Afin d'adapter la méthode des éléments frontières aux écoulements non-newtoniens, nous avons développé la méthode "Multidomain Dual Reciprocity Method" (MDRM) dans une première approche bidimensionnelle (2D). Dans ce cas, nous avons procédé à la subdivision du domaine en plusieurs sous domaines afin de minimiser la non-linéarité causée par le comportement visqueux du polymère.

Néanmoins, pour des écoulements fortement non-linéaires ($n < 0.5$), la méthode MDRM atteint ses limites à cause du calcul des gradients de vitesses dans les zones ayant de forts champs de cisaillements. Les approximations de ces gradients à partir des vitesses et des fonctions d'approximations f_i ne satisfont pas les conditions de conservation de masse et de continuité des gradients de vitesse entre les sous-domaines.

Perspectives

Etant donné les résultats du nombre d'écoulement obtenus pour la tête de mélange à l'entrée et à la sortie de passage entre deux canaux, il serait intéressant d'optimiser la géométrie autour de cette zone. Ce modèle numérique peut être appliqué dans d'autres géométries d'éléments de mélanges ou d'autres procédés d'extrusion (extrusion bivis, mélangeurs internes etc.)

Pour résoudre les problèmes rencontrés dans la méthode MDRM, l'utilisation des fonctions d'interpolations d'Hermite serait une solution afin de calculer plus précisément les gradients de vitesse.

Enfin dans les développements futurs, une extension du modèle 2D en 3D pour des problèmes non-newtonien devra être envisagée.

RÉFÉRENCES

- AGASSANT, J. F., AVENAS, P. et SERGENT, J.-Ph. 1996. *Mise en Forme des Matières Plastiques*. 3d ed. Paris: Technique et Documentation. 613p.
- ANDERSON, E. et al. 1999. *Lapack User's Guide*, Society for Industrial and Applied Mathematics.
- BAIRD, D. G. 1995. *Polymer Processing: principles and design*. Boston: Butterworth-Heinemann. 620p.
- BIGG, D. M. 1975. "On Mixing in Polymer Flow System." *Polymer Engineering and Science* **15**:9. 684.
- BIRD, B. R., STEWART, W. E. et al. 1960. *Transport Phenomena*. New York: John Wiley & Sons. 780p
- BIRD, R. B., ARMSTRONG, R.C., HASSAGER, O. 1987. *Dinamics of Polymeric Liquids, Volume 1, Fluid Mechanics*. New York: Wiley. 649p
- BIRD, R. B., WARNER, H.R., EVANS, D.C. 1971. "Kinetic Theory and Rheology of Dumbbell Suspension with Brownian Motion". *Adv. Poly. Sci.*, Springer Verlag. **8**. 1-90.
- BORIES, M. 1998. *Influence des conditions opératoires d'extrusion sur la dispersion de carbonate de calcium dans une matrice de polypropylène*. Mémoire de maîtrise: Montréal, Ecole Polytechnique de Montréal. 199p
- BREBBIA, C. A. 1978. *The Boundary Element Method for Engineers*. London: Newnes-Butterworths. 210p.
- BREBBIA, C. A. and DOMINGUEZ, J. 1992. *Boundary Elements; An Introductory Course*. Southampton: Computational Mechanics Publications. 292p.
- BUECHE, F. 1968. *J. Chem. Phys.* **48** (4781).
- CARREAU, P. J. et LAFLEUR, P.G. 1997. Cours 4.508: *Ingénierie des Polymères*. Montréal, Ecole Polytechnique de Montréal.

- CHENG, J. J. and MANAS-ZLOCZOWER, I. 1990. "Flow Field Characterization in a Banbury Mixer." *Int. Polym. Proc.* **5**:3. 178-183.
- CHENG, J.-J., MANAS-ZLOCZOWER I. 1989. "Hydrodynamic analysis of a Banbury mixer - 2-D flow simulations for the entire mixing chamber." *Polymer Engineering and Science* **29**:15. 1059-1065.
- DANCKWERTS, P. V. 1953. "Theory of Mixtures et Mixing." *Research* **6**: 355-361.
- DAVIS, B. A. 1995. *Investigation of Non-linear Flows in Polymer Mixing using the Boundary Element Method*. Thèse de doctorat. University of Wisconsin-Madison. 141p
- DE WAELE, A. 1923. *Oil Color Chem. Assoc. J.* **6**: 33-88.
- DHATT, G., TOUZOT, G. 1984. *Une présentation de la méthode des éléments finis*, Paris : Maloine ; Québec : Presses de l'Université Laval 543p
- EBELL, P. C. H., D. A. 1981. "Novel Optical Method for Estimating Dispersion of Carbon Black in Rubbers." *Rubber Chemistry and Technology* **54**:4. 698-717.
- ELEMANS, P. H. M., JANSSEN, J.H.M., MEIJER, H.E.H. 1990. "The Measurement of Interfacial Tension in Polymer/Polymer Systems: the Breaking Thread Method." *Journal of Rheology* **34**:8. 1311-1325.
- ESS, J. W. 1989. *Characterization of dispersive and distributive mixing in a co-rotating twin-screw compounding extruder*. Thèse de doctorat. Brunel University, United Kingdom. 189p.
- FARRANT, T., TAN, M. et al. 2001. "Cell boundary element method applied to laminar vortex shedding from circular cylinders." *Computers and Fluids* **30**:2. 211-236.
- FERRY, J. D. 1980. *Viscoelastic Properties of Polymers 3d Edition*. New York: Wiley. 641p.
- FLOREZ, W. F., POWER. H. 2002. "Multi-domain mass conservative dual reciprocity method for the solution of the non-Newtonian Stokes equations." *Applied Mathematical Modeling* **26**:3. 397-419.
- GRACE, H. P. 1982. Chem.Eng.Commun.

- GRAESLEY, W. W. 1967. *J. Chem. Phys.* **47** (1942).
- GRAMANN, P. J., OSSWALD T. A. 1992. "Simulating Polymer Mixing Processes Using the Boundary Element Method." *Int. Polym. Proc.* **7**:4. 303-313.
- HANSEN, F., IMPING, W., SPANKNEBEL, F. 1994. Single Screw Extruders. *Mixing and Compounding of Polymers*. Manas-Zloczower I. and Tadmor Z. Munich: Hanser Publishers. 649-678.
- HAPEL, J., BRENNER, H. 1983. *Low Reynolds Number Hydrodynamics*. 2nd ed Hague. 560p.
- HAUR-HORNG YANG, T. H. W., MANAS-ZLOCZOWER, I. 1994. Flow Field Analysis of a Branbury Mixer. *Mixing and Compounding of Polymers*. Manas-Zloczower. I. Tadmor, Z., Munich: Hanser Publishers. 190-223.
- HESS, W., M. 1991. "Characterization of dispersions." *Rubber Chem. Tech.* **64**: 386-449.
- HESS, W. M., CHIRICO, V. E. et al. 1980. "Quantitative Carbon Black Dispersion Analysis." *Elastomerics* **112**:1. 24-34.
- HUNEAULT H. 1992. *L'extrusion des profilés de PVC: rhéologie et conception des filières*. Thèse de doctorat. Montréal: Ecole Polytechnique de Montréal. 191p.
- JAWSON, M. A. 1963. *Integral equation methods in potential theory I*, London: Proc. Roy. Soc. 345p.
- KIM, M. H. and WHITE J. L. 1989. "Simulation of flow in modular tangential counter-rotating twin screw extruders: screw flight staggering and backward pumping elements". *ANTEC 89*. Publ by Soc of Plastics Engineers. 49-55.
- LIDOR, G. and TADMOR Z. 1976. "Theoretical Analysis of Residence Time Distribution Functions and Strain Distribution Functions in Plasticating Screw Extruders." *Polymer Engineering and Science* **16**:6. 450-462.
- LOZANO, T. LAFLEUR, P. G. et al. 2002. "A chemical model for the dispersion of fillers in a polymeric matrix." *Canadian Journal of Chemical Engineering* **80**:6. 1135-1142.

- LOZANO, T., LAFLEUR, G.P., GRMELA, M. 2003. "Effect of Filler Dispersion On Polypropylene Morphology." *Paper submitted to the Journal of Polymer Engineering and Science*.
- MEDALIA, A. 1986. "Electrical Conduction in Carbon Black Composites." *Rubber Chemistry and Technology* **59**:3. 432-454.
- NARDINI, D., BREBBIA, C.A. 1982. "A New Approche For Free Vibration Analysis Using Boundary Elements". *Boundary Element Method in Engineering*. Springer Verlag. Berlin. 313-336.
- OSSWALD, T. A. 1998. *Polymer Processing Fundamentals*. Munich: Hanser Publishers. 232p
- OSTWALD, W. 1925. *Kolloid* **36**. 99-117.
- OTTINO, J. M. and CHELLA, R. 1983. "Laminar mixing of polymeric liquids; a brief review and recent theoretical developments". *Polymer Engineering and Science* **23**:7. 357-379.
- PARTRIDGE, P. V., BREBBIA, C.A., WROBEL, L.C. 1992. *The Dual Reciprocity Boundary Element Method*. Southampton: Computational Mechanics Publications. 276p
- PERCHAT, E. 2000. *Rapport interne-Développement d'un solver 3D par éléments frontières pour les équations de l'élasticité linéaire*. Albi, CROMEP-Ecole des Mines d'Albi. 27p
- PINTO, G., TADMOR, Z. 1970. "Mixing and Residence Time Distribution in Melt Screw Extruders." *Polymer Engineering and Science* **10**:5. 279-288.
- POPOV, V. and POWER H. 1996. "Domain decomposition on the dual reciprocity approach." *Boundary Elements Communications* **7**:1. 1-5.
- PRESS, W. H., TEUKOLSKY, S.A., VETTERING, W.T., FLANNERY, B.P. 1992. *Numerical Recipes*, Cambridge: University Press. 650p.
- RAUWENDAAL, C. 1986. *Polymer extrusion*. 3 ed. Hanser Publishers. Munich. 568p

- RIOS, A. 1999. *Simulation of Mixing in Single Screw Extrusion Using the Boundary Integral Method*. Thèse de doctorat. Madison: University of Wisconsin-Madison. 119p
- SCHEID, F. 1986. *Analyse numérique, cours et problèmes*, Montréal: McGraw-Hill. 423p.
- SKERGET, L. and REK Z. 1995. "Boundary-domain integral method using a velocity-vorticity formulation." *Engineering Analysis with Boundary Elements* **15**:4. 359-370.
- SKERGET, L. and SAMEC N. 1999. "BEM for non-Newtonian fluid flow." *Engineering Analysis with Boundary Elements* **23**:5. 435-442.
- SPENCER, R. S., WILEY, R.N. 1951. "The Mixing of Very Viscous Liquids." *Journal of Colloid Science* **6**: 133-145.
- SUETSUGU, Y. J. 1990. "State of dispersion- Mechanical properties correlation in small particle filled polymer composites." *Int. Polym. Proc.* **5**:183. 184-190.
- TADMOR, Z. 1976. "Forces in Dispersive Mixing." *Ind. Eng. Chem. Fund.* **15**:4. 346.
- TADMOR, Z., GOGOS C.G. 1979. *Principles of Polymer Processing*. New York: J. Wiley & Sons. 736p.
- TELLES, J. C. 1987. "A Self Adaptive Coordinate Transformation for Efficient Numerical Evaluation of General Boundary Integrals". *Int. J. Num. Meth. Eng.* **24**: 959-973.
- TELLES, J. C. F. and OLIVEIRA R. F. 1994. "Third degree polynomial transformation for boundary element integrals: further improvements." *Engineering Analysis with Boundary Elements* **13**:2. 135-141.
- ZHENG, R., COLEMAN, C.G., PHAN-THIEN, N. 1991. "Boundary element approach nonhomogeneous potential problems". *Computational Mechanics* **7**: 279-281.

ANNEXES

ANNEXE 1

Loi de puissance

Tableau 1: Les valeurs de la consistance du liquide m et de l'indice de pseudoplasticité n pour une série des polymères commerciaux (Tadmor 1979)

Polymer	Temperature (K)	Shear rate range (s^{-1})	Power law model	
			m ($\frac{N \cdot s^n}{m^2}$)	n
High impact polystyrene (HIPS)	443	100-7000	7.58×10^4	0.20
LX-2400*	463	100-7000	4.57×10^4	0.21
	483	100-7000	3.61×10^4	0.19
Polystyrene (PS)	463	100-4500	4.47×10^4	0.22
Dylene™ S*	483	100-4000	2.38×10^4	0.25
	498	100-5000	1.56×10^4	0.28
Styrene acrylonitrile (SAN) Lustran™	463	100-9000	9.0×10^4	0.21
31-1000*	493	100-8000	3.22×10^4	0.27
	523	100-8000	1.11×10^4	0.35
Ethylene vinyl acetate (EVA)	473	100-5000	2.75×10^4	0.27
Vistaflex™ 905B*	493	100-4000	1.83×10^4	0.30
	513	100-3000	1.99×10^4	0.28
Acrylonitrile butadiene styrene (ABS)	443	100-5500	1.19×10^4	0.25
AM-1000*	463	100-6000	6.29×10^4	0.25
	483	100-7000	3.93×10^4	0.25
Polypropylene (PP)	453	100-4000	6.79×10^3	0.37
CD 460*	463	100-3500	4.89×10^3	0.41
	473	100-4000	4.35×10^3	0.41
Ethylene ethyl acrylate	443	100-6000	1.21×10^4	0.38
DPDA-6169*	463	100-4000	6.91×10^3	0.43
	483	100-6000	3.77×10^3	0.48
High density polyethylene (HDPE)	453	100-1000	6.19×10^3	0.56
Alathon™ 7040†	473	100-1000	4.68×10^3	0.59
	493	100-1000	3.73×10^3	0.61
Low density polyethylene (LDPE)	433	100-4000	9.36×10^3	0.41
Alathon™ 1540†	453	100-6500	5.21×10^3	0.46
	473	100-6000	4.31×10^3	0.47
Nylon	498	100-2500	2.62×10^3	0.63
Capron™ 8200*	503	100-2000	1.95×10^3	0.66
	508	100-2300	1.81×10^3	0.66
Polypropylene (PP)	483	100-3000	3.21×10^4	0.25
E 612*	513	50-3000	2.24×10^4	0.28
Polymethylmethacrylate (PMMA)	493	100-6000	8.83×10^4	0.19
Lucite™ 147†	513	100-6000	4.27×10^4	0.25
	533	100-7000	2.62×10^4	0.27
Polycarbonate (PC)	553	100-1000	8.39×10^3	0.64
Lexan™**	573	100-1000	4.31×10^3	0.67
	593	100-1000	1.08×10^3	0.80

* Monsanto Co.

* ARCO.

* Exxon Chemical Co., USA.

* Borg-Warner Corp.

Modèle de Carreau Yasuda

Tableau 2 : Les valeurs des coefficients du modèle du Carreau pour certains polymères commerciaux (Tadmor 1979)

	Carreau model			
	Shear rate range (s ⁻¹)	n	λ (s)	η ₀ ($\frac{\text{N} \cdot \text{s}}{\text{m}^2}$)
High impact polystyrene (HIPS) LX-2400 ^a	50-1000	0.26	6.77	2.1×10^5
	50-1000	0.22	5.31	1.48×10^5
	100-3000	0.16	2.57	1.05×10^5
Polystyrene (PS) Dylene TM S ^a	30-6000	0.24	0.27	1.4×10^5
	30-4000	0.27	0.32	9.2×10^5
	30-4000	0.30	0.35	6.6×10^5
Styrene acrylonitrile (SAN) Lustran TM 31-1000 ^a	100-8000	0.21	0.17	2.2×10^6
	80-8000	0.28	0.18	9.0×10^5
	100-5000	0.36	0.25	4.2×10^5
Ethylene vinyl acetate (EVA) Vistaflex TM 905B ^c	40-5000	0.28	1.62	3.6×10^4
	70-2000	0.31	1.42	2.15×10^4
	70-2000	0.31	0.72	1.35×10^4
Acrylonitrile buta- diene styrene (ABS) AM-1000 ^a	100-2000	0.29	0.82	7.95×10^4
	100-3000	0.26	0.73	4.4×10^4
	40-4000	0.25	0.57	2.6×10^4
Polypropylene (PP) CD 460 ^a	70-4000	0.38	0.49	4.21×10^5
	70-4000	0.41	0.51	3.2×10^5
	50-3000	0.41	0.40	2.5×10^5
Ethylene ethyl acrylate DPDA-6169 ^a	80-6000	0.42	0.40	5.4×10^5
	10-3000	0.58	1.08	3.5×10^5
	40-1000	0.50	0.51	2.3×10^5
High density poly- ethylene (HDPE) Alathon TM 7040 ^f	100-1200	0.54	0.07	2.1×10^5
	100-1200	0.50	0.08	1.52×10^5
	180-1400	0.58	0.05	1.17×10^5
Low density polyethylene (LDPE) Alathon TM 1540 ^f	80-1000	0.42	0.59	6.3×10^5
	100-7000	0.47	0.47	3.2×10^5
	100-1000	0.48	0.21	1.7×10^5
Nylon Capron TM 8200 ^a	100-2000	0.63	0.27	1.6×10^5
	100-2000	0.65	0.32	1.3×10^5
	100-2000	0.68	0.36	1.1×10^5
Polypropylene (PP) E 612 ^c	100-3500	0.24	1.05	3.5×10^4
	50-3500	0.27	0.81	1.98×10^4
Polymethylmetha- crylate (PMMA) Lucite TM 147 ^f	100-4000	0.19	0.09	1.3×10^6
	100-4000	0.25	0.07	6.0×10^5
	100-1000	0.36	0.11	2.9×10^5
Polycarbonate (PC) Lexan TM	0.01-3000	0.26	0.002	1.52×10^5
	0.01-2000	0.26	0.002	8×10^5
	0.01-2500	0.53	0.002	4.2×10^5

ANNEXE 2

Solutions fondamentales

Dans le chapitre 4 nous avons présenté les solutions fondamentales pour un fluide newtonien incompressible que nous avons déduit des solutions fondamentales des équations de l'élasto-staticité. Les solutions fondamentales en 2D dans le cas des équations de l'élasto-staticité s'écrivent :

$$\begin{aligned} u_{ij}^* &= \frac{1}{8\pi\mu(1-\nu)} \left[(3-4\nu) \ln \frac{1}{r} \delta_{ij} + r_{,j} r_{,i} \right] \\ T_{ij}^* &= -\frac{1}{4\pi(1-\nu)r^2} \left[\frac{\partial r}{\partial n} (1-2\nu) \delta_{ij} + 2r_{,j} r_{,i} \right] + (1-2\nu) (n_i r_{,j} - n_j r_{,i}) \end{aligned} \quad (1)$$

Pour les problèmes en 3D, nous écrivons,

$$\begin{aligned} u_{ij}^* &= \frac{1}{16\pi\mu(1-\nu)} \left[(3-4\nu) \delta_{ij} + r_{,j} r_{,i} \right] \\ T_{ij}^* &= -\frac{1}{8\pi(1-\nu)r^2} \left[\frac{\partial r}{\partial n} (1-2\nu) \delta_{ij} + 3r_{,j} r_{,i} \right] + (1-2\nu) (n_i r_{,j} - n_j r_{,i}) \end{aligned} \quad (2)$$

Pour un fluide newtonien incompressible, le nombre de Poisson $\nu = \frac{1}{2}$, réduisant ces équations à :

$$\begin{aligned} u_{ij}^* &= \frac{1}{4\pi\mu} \left[\ln \left(\frac{1}{r} \right) \delta_{ij} + r_{,j} r_{,i} \right] \\ T_{ij}^* &= -\frac{1}{\pi r} r_{,j} r_{,i} r_{,n} \end{aligned} \quad (3)$$

en 2D. Pour le cas en 3D, ces équations s'écrivent :

$$\begin{aligned} u_{ij}^* &= \frac{1}{8\pi\mu} [\delta_{ij} + r_j r_{,j}] \\ T_{ij}^* &= -\frac{3}{4\pi r^2} r_j r_{,j} \end{aligned} \quad (4)$$

ANNEXE 3

Les fonctions d'interpolation

Dans le cas de calcul 3D on effectue un maillage de triangulation ou de quadrangulation. Sur la Figure 1 un élément quadratique incomplet est présenté.

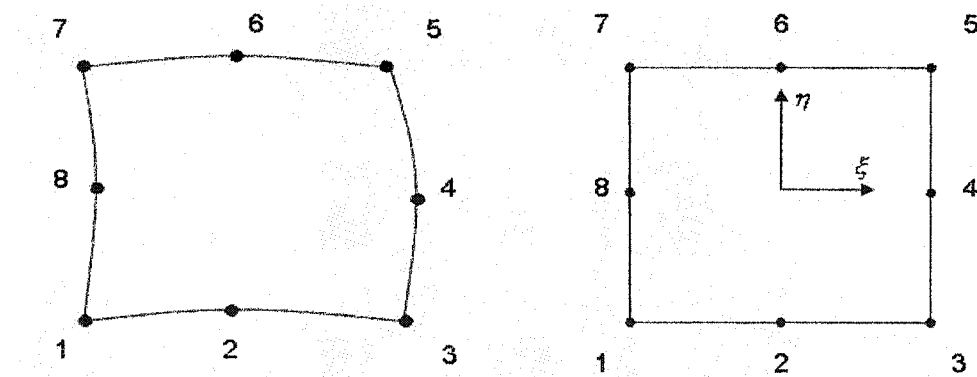


Figure1: Elément quadratique de la frontière du maillage volumique

Les fonctions d'interpolation $N_k(x)$ pour un élément quadratique incomplet s'écrivent

$$\begin{aligned} N_1 &= \frac{1}{4} [-(1-\xi)(1-\eta)(1+\xi+\eta)] & N_2 &= \frac{1}{2} [(1-\xi^2)(1-\eta)] \\ N_3 &= \frac{1}{4} [-(1+\xi)(1-\eta)(1-\xi+\eta)] & N_4 &= \frac{1}{2} [(1+\xi)(1-\eta^2)] \end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
N_5 &= \frac{1}{4}[-(1+\xi)(1+\eta)(1-\xi-\eta)] & N_6 &= \frac{1}{2}[(1-\xi)(1+\eta)] \\
N_7 &= \frac{1}{4}[-(1-\xi)(1+\eta)(1+\xi-\eta)] & N_8 &= \frac{1}{2}(1-\xi)(1-\eta^2)
\end{aligned} \tag{5}$$

ANNEXE 4

Intégration non singulière en 3D

Après avoir défini quel type d'élément sera utilisé, les intégrales de la frontière peuvent être calculés numériquement. Cette intégration pour les problèmes en 3D, peut être accomplie par le schéma de Gauss classique (Dhat, 1984) où l'intégrale d'une fonction $f(\xi_n, \eta_n)$ est approximée par

$$\int_{-1}^1 \int_{-1}^1 f(\xi, \eta) d\xi d\eta = \sum_{n=1}^{npg} \sum_{n=1}^{npg} f(\xi_n, \eta_n) w(\xi_n) w(\eta_n) J(\xi_n) J(\eta_n) \tag{6}$$

Où npg est le nombre de points de Gauss. L'intégrale de cette fonction f est déterminé par une sommation des valeurs de la fonction $f(\xi_n, \eta_n)$ aux points de Gauss (ξ_n et η_n), et pondérés par le poids de Gauss ($w(\xi_n)$ et $w(\eta_n)$) et le Jacobien ($J(\xi_n)$ et $J(\eta_n)$). Cette expression pour l'intégration de Gauss peut être utilisée pour calculer les coefficients des matrices H et G par l'intégration de la solution fondamentale.

$$h_{ij} = \sum_{n=1}^{npg} \sum_{n=1}^{npg} N(\xi_n, \eta_n) T_{ij}^*(\xi_n, \eta_n) w(\xi_n) w(\eta_n) J(\xi_n) J(\eta_n) \tag{7}$$

$$g_{ij} = \sum_{n=1}^{npg} \sum_{n=1}^{npg} N(\xi_n, \eta_n) u_{ij}^*(\xi_n, \eta_n) w(\xi_n) w(\eta_n) J(\xi_n) J(\eta_n) \tag{8}$$

ANNEXE 5

Les solutions particulières des champs d'écoulement auxiliaire

Dans le chapitre 4, la transformation de chaque intégral du domaine à droite de l'équation (4.83) doit être effectuée en définissant les nouveaux termes non-homogènes du champ de Stokes $\hat{u}_{pj}$ et $\hat{p}^p$ pour chaque points d'interpolation.

$$\mu \frac{\partial \hat{u}_{jp}}{\partial x_j^2} - \frac{\partial \hat{p}^p}{\partial x_i} = f_p \delta_{pj} \quad (9)$$

$$\frac{\partial \hat{u}_{ip}}{\partial x_i} = 0 \quad (10)$$

Pour trouver la solution particulière du système des équations de Stokes non-homogène (9) et (10), nous utilisons l'approche de Happel et Brenner (Hapel, 1983). Cette approche est la variation de Galerkin vecteur technique, dérivée originalement pour des équations de Navier d'élastodynamique. Cela peut utiliser en posant que le nombre de Poisson est égal à 0.5 pour résoudre les problèmes de Stokes. Initialement le tenseur $\hat{u}_p$ est défini en termes de potentiel ψ :

$$\hat{u}_{jp} = \frac{\partial^2 \psi}{\partial x_i^2} \delta_{jp} - \frac{\partial^2 \psi}{\partial x_j \partial x_p} \quad (11)$$

Si on différencie l'équation (11) et si on le substitue dans l'équation (9) on peut écrire :

$$\mu \left(\frac{\partial^4 \psi}{\partial x_i^4} \delta_{jp} - \frac{\partial^4 \psi}{\partial x_j \partial x_k \partial x_i^2} \right) - \frac{\partial P}{\partial x_j} = f_p \delta_{jm} \quad (12)$$

La solution particulière pour cette équation peut être trouvée si nous assumons que l'équation biharmonique suivante est satisfaite,

$$\mu \frac{\partial^4 \psi}{\partial x_i^4} = f_p \quad (13)$$

et que,

$$\mu \frac{\partial^4 \psi}{\partial x_j \partial x_k \partial x_l^2} + \frac{\partial \hat{P}^p}{\partial x_j} = 0 \quad (14)$$

L'équation précédente peut être intégrée pour obtenir le champ de pression,

$$\hat{P}^p = -\mu \frac{\partial^3 \psi}{\partial x_l^2 \partial x_k} \quad (15)$$

Si nous définissons la fonction d'approximation f_p ;

$$f_p = c_1 + c_2 r + c_3 r^2 + c_4 r^3 + c_5 r^4 \quad (16)$$

Où c_n ($n=1,2,..5$) sont les constantes et peuvent prendre les valeurs : 0 ou 1. Ces coefficients sont introduits afin d'avoir une fonction générale tout en gardant la possibilité de diminuer l'ordre de cette fonction. En posant donc que, ces coefficients d'indice décroissant ont les valeurs de 0 nous diminuerons facilement l'ordre de cette fonction sans modifier la forme générale de celle-ci.

$$\psi = \frac{1}{\mu} \left(\frac{c_1 r^4}{64} + \frac{c_2 r^5}{225} + \frac{c_3 r^6}{576} + \frac{c_4 r^7}{1225} + \frac{c_5 r^8}{2304} \right) \quad (17)$$

A partir de cette équation il est facile d'obtenir les pressions et les vitesses aux points de colocation,

$$\hat{P}^p = -r_{,k} \left(\frac{c_1 r}{2} + \frac{c_2 r^2}{3} + \frac{c_3 r^3}{4} + \frac{c_4 r^4}{5} + \frac{c_5 r^5}{6} \right) \quad (18)$$

Donc, la solution particulière de la vitesse $\hat{u}$ est donnée par :

$$\begin{aligned} \hat{u}_{jk}^p = & \frac{1}{\mu} \left(\frac{3c_1 r^2}{16} + \frac{4c_2 r^3}{45} + \frac{5c_3 r^4}{96} + \frac{c_4 r^5}{175} + \frac{c_5 r^6}{288} \right) \delta_{jk} \\ & - \frac{1}{\mu} r_{,j} r_{,k} \left(\frac{c_1 r^2}{8} + \frac{c_2 r^3}{15} + \frac{c_3 r^4}{24} + \frac{c_4 r^5}{35} + \frac{c_5 r^6}{48} \right) \end{aligned} \quad (19)$$

Le tenseur de contraintes peut être divisé en contraintes de cisaillement et des composantes hydrostatiques,

$$\hat{\sigma}_{ij}^p = \hat{\tau}_{ij}^p - \hat{P}^p \delta_{ij} \quad (20)$$

$$\begin{aligned} \hat{\sigma}_{ij}^p = & \left(r_{,i} \delta_{jk} + r_{,j} \delta_{ik} + r_{,k} \delta_{ij} \right) \left(\frac{c_1 r}{4} + \frac{c_2 r^2}{5} + \frac{c_3 r^3}{6} + \frac{c_4 r^4}{7} + \frac{c_5 r^5}{8} \right) \\ & - r_{,i} r_{,j} r_{,k} \left(\frac{c_2 r^2}{15} + \frac{c_3 r^3}{12} + \frac{3c_4 r^4}{35} + \frac{c_5 r^5}{12} \right) \end{aligned} \quad (21)$$

A partir de la relation $\hat{T}_{jk} = \hat{\sigma}_{ij}^k n_j$, nous pouvons obtenir la solution particulière de la traction,

$$\begin{aligned}
\hat{T}_{jk}^p = & \left(r_{,i} n_i \delta_{jk} + r_{,j} n_k \delta_{ik} + r_{,k} n_j \delta_{ij} \right) \left(\frac{c_1 r}{4} + \frac{c_2 r^2}{5} + \frac{c_3 r^3}{6} + \frac{c_4 r^4}{7} + \frac{c_5 r^5}{8} \right) \\
& - r_{,i} r_{,j} r_{,k} n_i \left(\frac{c_2 r^2}{15} + \frac{c_3 r^3}{12} + \frac{3c_4 r^4}{35} + \frac{c_5 r^5}{12} \right)
\end{aligned} \tag{22}$$

Où n_j représente la normale externe de la frontière. Les matrices $[\hat{u}]$, $[\hat{T}]$ et $[F]^{-1}$ sont obtenus à partir des équations (10), (22) et (16). On peut remarquer qu'elles sont les fonctions de la distance entre les nœuds de collocation et les nœuds de location et les nœuds de location et les nœuds d'approximation (nœuds DRM).

