

**Titre:** Influence des propriétés élastiques sur la déformation et rupture de gouttes dans une matrice en écoulement élongationnel et en cisaillement  
Title: [Influence des propriétés élastiques sur la déformation et rupture de gouttes dans une matrice en écoulement élongationnel et en cisaillement](#)

**Auteur:** Frej Mighri  
Author: [Frej Mighri](#)

**Date:** 1998

**Type:** Mémoire ou thèse / Dissertation or Thesis

**Référence:** Mighri, F. (1998). Influence des propriétés élastiques sur la déformation et rupture de gouttes dans une matrice en écoulement élongationnel et en cisaillement  
Citation: [Ph.D. thesis, École Polytechnique de Montréal]. PolyPublie.  
<https://publications.polymtl.ca/8844/>

## Document en libre accès dans PolyPublie

Open Access document in PolyPublie

**URL de PolyPublie:** <https://publications.polymtl.ca/8844/>  
PolyPublie URL: <https://publications.polymtl.ca/8844/>

**Directeurs de recherche:** Pierre Carreau, & Abdellah Ajji  
Advisors: [Pierre Carreau](#), [Abdellah Ajji](#)

**Programme:** Unspecified  
Program: [Unspecified](#)

UNIVERSITÉ DE MONTRÉAL

INFLUENCE DES PROPRIÉTÉS ÉLASTIQUES SUR LA DÉFORMATION ET  
RUPTURE DE GOUTTES DANS UNE MATRICE EN ÉCOULEMENT  
ÉLONGATIONNEL ET EN CISAILLEMENT

FREJ MIGHRI

DÉPARTEMENT DE GÉNIE CHIMIQUE  
ÉCOLE POLYTECHNIQUE DE MONTRÉAL

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

JUIN 1998



National Library  
of Canada

Acquisitions and  
Bibliographic Services  
395 Wellington Street  
Ottawa ON K1A 0N4  
Canada

Bibliothèque nationale  
du Canada

Acquisitions et  
services bibliographiques  
395, rue Wellington  
Ottawa ON K1A 0N4  
Canada

*Your file Votre référence*

*Our file Notre référence*

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.

0-612-37379-7

Canada

UNIVERSITÉ DE MONTRÉAL

ÉCOLE POLYTECHNIQUE DE MONTRÉAL

Cette thèse intitulée:

INFLUENCE DES PROPRIÉTÉS ÉLASTIQUES SUR LA DÉFORMATION  
ET RUPTURE DE GOUTTES DANS UNE MATRICE EN ÉCOULEMENT  
ÉLONGATIONNEL ET EN CISAILLEMENT

Présentée par: MIGHRI Frej

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

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

M. PERRIER Michel, Ph.D., président

M. CARREAU Pierre J., Ph.D., membre et directeur de recherche

M. AJJI Abdellah, Ph.D., membre et codirecteur de recherche

M. GRMELA Miroslav, Ph.D., membre

M. PICOT Jules, Ph.D., membre

À mon adorable femme Olfa pour sa patience et ses encouragements;

À Lisa, notre futur bébé, qui verra le jour environ quatre semaines après la date de soutenance de cette thèse. C'est merveilleux d'avoir à la fois son Ph.D. et une belle petite princesse !!;

À ma mère;

À mon père;

À toute ma famille.

## REMERCIEMENTS

Je tiens tout d'abord à remercier mon directeur de recherche, Monsieur Pierre Carreau, de m'avoir bien accueilli au sein de son groupe de recherche. Ce fut un grand honneur pour moi d'être diplômé sous sa direction. Sa compétence, sa gentillesse et sa disponibilité font de lui un professeur modèle. Je garderai de lui de très beaux souvenirs et qu'il soit assuré de mon plus grand respect.

Je remercie aussi mon codirecteur de recherche, Monsieur Abdellah Ajji, de l'Institut des Matériaux Industriels (IMI) à Boucherville, qui m'a bien aidé dans une grande partie de mes travaux effectués dans les laboratoires de L'IMI. Je tiens également à remercier tous les chercheurs et techniciens du groupe "Polymères multiphasés" de L'IMI, avec qui j'ai travaillé pendant environ deux ans. Leur compétence dans le domaine des mélanges de polymères m'a bien servi durant la réalisation de mes travaux de recherche.

Je remercie Monsieur André Fortin, professeur au département de mathématiques appliquées, pour son aide dans la partie simulation numérique. Mon initiation aux techniques des éléments finis a été assurée par Monsieur Alain Bélieau, chercheur au département de mathématiques appliquées. Je tiens à le remercier pour son aide et sa patience. Je l'assure de ne plus oublier les techniques de maillage avec le logiciel "Mars" !!.

Je tiens enfin à remercier tout le personnel du CRASP (Centre de Recherche Appliquée Sur les Polymères) pour l'ambiance de travail qu'ils ont su créer et dans laquelle j'ai évolué pendant toute la durée de mon doctorat. Un merci spécial à notre gentille secrétaire Diane Héroux pour son aide en tout ce qui concerne les modalités administratives.

## RÉSUMÉ

La présente thèse présente une contribution originale pour mettre en évidence, par des techniques expérimentales et simulations numériques, l'effet de l'élasticité sur la déformation et la rupture de gouttelettes. Le comportement d'une goutte élastique dans deux écoulements bien caractérisés et maîtrisés, soit l'écoulement élongationnel et l'écoulement en cisaillement, a été analysé. Les travaux ont porté sur des systèmes de fluides modèles appelés fluides de Boger. Ces fluides sont très élastiques, mais possèdent une viscosité presque constante.

Dans un premier temps, les fluides modèles ont été judicieusement préparés au laboratoire afin d'avoir des combinaisons de fluides ayant différents rapports d'élasticité tout en gardant les autres propriétés constantes, tels que le rapport de viscosité et la tension interfaciale. Une partie du travail a porté sur la caractérisation rhéologique de ces fluides. Les mesures rhéologiques ont été effectuées à l'aide d'un rhéogoniomètre Weissenberg, pour obtenir la viscosité en régime permanent ainsi que les contraintes normales, et d'un rhéomètre VOR de Bohlin, pour mesurer la viscosité dynamique ainsi que les modules de stockage et de perte. Ces mesures rhéologiques nous ont permis de calculer certains paramètres rhéologiques qui donnent le niveau d'élasticité des fluides modèles utilisés (temps de relaxation, temps de retard, etc.). Les mesures de la tension interfaciale des différents systèmes ont été effectuées à l'aide d'une technique dynamique, nommée méthode de la goutte tournante. Malgré la mise en œuvre très longue et délicate de cette

technique, les mesures de la tension interfaciale concordaient bien avec les données de la littérature pour ces types de fluides modèles.

Par la suite, deux montages expérimentaux ont été conçus et fabriqués pour générer les deux types d'écoulements (l'écoulement élongationnel et le cisaillement), et permettre de visualiser le comportement des gouttes dans la matrice. L'écoulement élongationnel a été généré à l'aide d'un montage expérimental, de type convergent-divergent, fabriqué en acrylique (Plexiglas) et monté sur un rhéomètre capillaire de marque Instron. L'écoulement le long de l'axe central du conduit est largement élongationnel. Quant à l'écoulement en cisaillement, il a été généré entre deux plaques parallèles en acrylique, fabriquées spécialement pour être montées sur le rhéogoniomètre Weissenberg. Un système de visionnement a été mis en place pour les deux systèmes pour permettre de suivre avec précision le comportement d'une goutte au cours de sa déformation ou de sa rupture le long de l'axe central du conduit convergent (dans le cas de l'écoulement élongationnel), ou entre les deux plaques transparentes (dans le cas du cisaillement).

Nos travaux ont permis de tirer des conclusions importantes quant au rôle joué par l'élasticité sur le comportement de gouttes dans une matrice en écoulement. La contribution de l'élasticité sur la déformation et la rupture des gouttes a été mesurée en comparant les résultats obtenus pour des systèmes de fluides élastiques avec ceux obtenus pour des systèmes newtoniens possédant la même tension interfaciale et le même rapport de viscosité. Dans le cas de l'écoulement élongationnel, on a démontré que l'élasticité de

la goutte ainsi que celle de la matrice avaient un effet inverse sur la déformation de la goutte. L'élasticité de la matrice aidait la goutte à se déformer davantage, alors que l'élasticité de la goutte résistait à sa déformation et la rendait de plus en plus rigide. Nos travaux ont aussi montré que, pour un rapport d'élasticité goutte/matrice inférieur à 0.2, l'élasticité de la matrice avait plus de contrôle sur la déformation de la goutte, alors que l'effet de l'élasticité de la goutte était nettement dominant pour des rapports d'élasticité supérieurs à 0.2. Une relation empirique reliant la déformation de la matrice avec celle de la goutte a été développée. Cette relation, qui représentait une contribution originale de ce travail, a permis de quantifier la contribution de l'élasticité des deux phases (matrice/goutte) dans la déformation de la goutte.

Quant aux résultats obtenus en cisaillement, on a abouti quasiment aux mêmes conclusions quant à l'effet de l'élasticité sur la déformation des gouttes. Le montage expérimental conçu a permis d'aller jusqu'à la rupture de la goutte, et d'étudier ainsi l'effet de l'élasticité sur les mécanismes de rupture. Une relation empirique entre le nombre capillaire critique (rapport entre les forces visqueuses et les forces interfaciales au moment du bris) et le rapport d'élasticité goutte/matrice a été développée. On a pu démontrer que le nombre capillaire critique augmente avec l'augmentation du rapport d'élasticité, et atteint une valeur maximale d'environ 1.75 pour des rapports d'élasticité supérieurs à 4. Cette valeur représente la contribution maximale de l'élasticité dans le nombre capillaire critique. On a également observé que le temps nécessaire pour briser la goutte sous cisaillement critique augmente avec l'augmentation du rapport d'élasticité.

Pour des faibles rapports d'élasticité goutte/matrice, il n'y a pas de déviation remarquable du comportement des systèmes élastiques par rapport à celui des systèmes newtoniens, possédant le même rapport de viscosité et la même tension interfaciale.

La phase finale de ce travail consistait à adapter une méthode de simulation en deux dimensions qui utilise la technique des éléments finis pour simuler la déformation de gouttes élastiques dans une matrice élastique en écoulement élongationnel à travers un conduit convergent. Le modèle d'Oldroyd-B a été utilisé dans le code de calcul pour décrire le comportement viscoélastique de la goutte et celui de la matrice. Malgré la limitation de ce code aux cas d'écoulements bidimensionnels, les résultats de simulation semblent être acceptables comparativement aux résultats expérimentaux qui ont été obtenus pour un écoulement convergent axisymétrique. Les résultats de simulation prédisent d'une manière quasi-quantitative les effets de l'élasticité sur la déformation de la goutte.

## ABSTRACT

This thesis presents original techniques for studying the influence of elasticity on the micro-rheology of binary incompatible polymer blends. The approach that has been adopted in this work focused on the deformation and breakup mechanisms of isolated polymer drops under two well-characterized flow fields, shear and elongation. It is worth noting that those flow fields are encountered in all blending operations. In the experimental study, the contribution of elasticity on drop deformation was investigated by using a variety of constant viscosity elastic fluids. Those fluids, so-called Boger fluids, exhibit an elastic response, e.g., normal stresses in shear flow, but have approximately a constant viscosity.

Firstly, a series of constant viscosity elastic (Boger) fluid combinations of different elasticities were prepared and their rheological properties were measured. The steady-state rheological properties were measured using a R-18 Weissenberg rheogoniometer, and the dynamic properties were obtained using a Bohlin VOR rheometer. The interfacial tension between the drop and matrix phases was determined using the spinning drop technique. All results obtained were in good agreement with previous results presented in the literature for Boger fluids. The rheological characterization showed that the different elastic fluid combinations prepared for this study had approximately the same viscosity ratio and interfacial tension. Only the elasticity ratio between the drop and the matrix fluids varied from one combination to another. Such properties made it easier to assess the effect of elasticity on drop behavior under shear or elongation.

Secondly, two experimental setups were designed to generate the two flow fields (shear and elongation). The elongational flow setup consisted of a transparent channel of Plexiglas, with a converging and diverging cross-sectional channel, mounted at the bottom of the barrel of an Instron capillary rheometer. The shearing flow device was made of two parallel Plexiglas disks, mounted on a R-18 Weissenberg rheogoniometer.

For the elongational flow study, two series of tests were carried out in order to investigate the effect of both drop and matrix elasticities on drop deformability. The results revealed several interesting features about the role played by both the drop and matrix elasticities on the drop deformability. The drop deformation decreases with increasing elasticity, while the matrix elasticity have an opposite effect. The drop deformation increases with increasing matrix elasticity, but the drop elasticity seems to have much more control on the drop deformability. For elasticity ratio,  $k' < 0.2$ , the matrix elasticity has more effect on the drop deformation than the drop elasticity. However, for  $k' > 0.2$ , the drop deformation is more affected by drop elasticity. A simple empirical relation between the drop and the matrix elongations, as a function of drop and matrix elasticities, was established. This relation is valid under a narrow range of viscosity ratio ( $0.5 \leq k \leq 1.10$ ) and an approximately constant interfacial tension of about  $22 \text{ mN/m}$ .

For shearing flow, the results showed remarkable differences in the mechanisms of drop deformation in the elastic systems compared to that in the Newtonian system of approximately the same viscosity ratio and interfacial tension. As in the case of the elongational flow, both the drop and the matrix elasticities affect the steady-state drop

deformation. The matrix elasticity helps to deform the drop, whereas the drop elasticity resists drop deformation. An empirical relation between the steady-state drop deformation and the capillary number was established. This relation quantifies the contribution of both the drop and matrix elasticities on the drop deformation. For high matrix elasticity ( $k' < 0.37$ ), the deformation of elastic drops in an elastic matrix under shear is higher than that of Newtonian drops in a Newtonian matrix with the same viscosity ratio and interfacial tension. However, for  $k' > 0.37$ , the elastic drops deform less than a Newtonian drop in a Newtonian matrix. The critical shear rate and the breakup time were found to increase with increasing elasticity ratio. For  $k' \leq 4$ , the critical capillary number increases rapidly with increasing  $k'$ , while for  $k' > 4$ , it attains a maximum of about 1.75, which corresponds to the maximal contribution of elasticity on drop breakup.

The aim of the final part of this work was to simulate the elastic effects on drop deformation in elongational flow through a confined converging channel. A two-dimensional time-dependent numerical method using finite element computations was used. The rheological behavior of the constant viscosity elastic fluids was described by the Oldroyd-B constitutive equation. The predicted drop deformation, obtained for different drop/matrix combinations, was compared with the experimental results obtained for the elongational flow. Although the numerical method was limited to two-dimensional flows, good agreement between the simulated results and the experiments was shown. The simulation essentially predicts the same elasticity effects on drop deformation as those observed experimentally.

## TABLE DES MATIÈRES

<b>DÉDICACE .....</b>	<b>iv</b>
<b>REMERCIEMENTS .....</b>	<b>v</b>
<b>RÉSUMÉ .....</b>	<b>vi</b>
<b>ABSTRACT .....</b>	<b>x</b>
<b>LISTE DES TABLEAUX .....</b>	<b>xvi</b>
<b>LISTE DES FIGURES .....</b>	<b>xvii</b>
<b>INTRODUCTION ET OBJECTIFS .....</b>	<b>1</b>
<b>CHAPITRE I: REVUE DE LA LITTÉRATURE SUR LA MICRO-RHÉOLOGIE DES MÉLANGES BINAIRES DE POLYMIÈRES IMMISCIBLES</b>	
1.1) Morphologie des mélanges de polymères immiscibles .....	5
1.2) Mécanismes de déformation et de rupture des gouttes de la phase dispersée dans le cas des systèmes de fluides newtoniens .....	6
1.3) Effet de l'élasticité sur les mécanismes de déformation et de rupture des gouttes de la phase dispersée .....	14
1.4) Résumé et commentaires .....	20
<b>CHAPITRE II: MATÉRIAUX UTILISÉS, TECHNIQUES EXPÉRIMENTALES ET DISCUSSION DES RÉSULTATS OBTENUS</b>	
2.1) Fluides modèles utilisés et mesures rhéologiques .....	23
2.1.1) Caractéristiques générales d'un fluide de Boger .....	23
2.1.2) Systèmes de fluides de Boger utilisés dans le présent travail ...	25
2.1.3) Techniques expérimentales utilisées pour mesurer la tension interfaciale .....	28

2.2) Présentation des montages expérimentaux et procédures d'essais .....	34
2.2.1) Écoulement élongationnel .....	34
2.2.2) Écoulement en cisaillement .....	37
2.3) Présentation et discussion des résultats obtenus pour les deux types d'écoulements .....	38

**CHAPITRE III: INFLUENCE OF ELASTIC PROPERTIES ON DROP  
DEFORMATION IN ELONGATIONAL FLOW**

3.1) Introduction .....	46
3.2) Experimental studies on drop deformation in elongational flow .....	47
3.3) Experiment .....	48
3.3.1) Experimental setup and procedure .....	48
3.3.2) Model fluids and their rheological characterization .....	51
3.4) Experimental results and discussion .....	57
3.5) Conclusion .....	79

**CHAPITRE IV: INFLUENCE OF ELASTIC PROPERTIES ON DROP  
DEFORMATION AND BREAKUP IN SHEAR FLOW**

4.1) Introduction .....	86
4.2) Experimental .....	90
4.2.1) Experimental setup and procedure .....	90
4.2.2) Model fluids and their rheological properties .....	91
4.3) Experimental results and discussion .....	93
4.4) Conclusion .....	111

**CHAPITRE V: SIMULATION OF ELASTIC EFFECTS ON DROP  
DEFORMATION IN ELONGATIONAL FLOW:  
COMPARISON WITH EXPERIMENTAL DATA**

5.1) Introduction .....	116
5.2) Constant viscosity elastic (Boger) fluids used for comparison with numerical simulations .....	118
5.3) Theoretical formulation of the problem .....	127
5.3.1) Governing equations .....	127
5.3.2) The non-miscibility equation .....	128
5.3.3) The equilibrium equation at the interface .....	129
5.3.4) The variational formulation of the governing equations, using the pseudo-concentration function, $F$ .....	129
5.3.5) Discretization .....	130
5.4) Results and discussion .....	131
5.5) Conclusion .....	144
<b>CHAPITRE VI: CONCLUSIONS ET RECOMMANDATIONS .....</b>	<b>147</b>
<b>LISTE DES RÉFÉRENCES .....</b>	<b>154</b>

## LISTE DES TABLEAUX

<b>Tableau 1.1:</b>	Sommaire des principaux travaux sur la déformation et la rupture d'une goutte newtonienne dans une matrice newtonienne .....	10
<b>Tableau 2.1:</b>	Désignation et composition des fluides de Boger utilisés dans le présent travail .....	27
<b>Tableau 2.2:</b>	Systèmes de fluides de Boger utilisés, leurs temps de relaxation de Maxwell, rapports de viscosité et d'élasticité des différentes combinaisons, ainsi que les tensions interfaciales .....	28
<b>Table 3.1:</b>	Designation and composition of the elastic fluids used .....	52
<b>Table 3.2:</b>	Fluid systems and corresponding relaxation times, viscosity ratio, elasticity ratio, and interfacial tension .....	56
<b>Table 4.1:</b>	Fluid systems and corresponding relaxation times, viscosity ratio, elasticity ratio, and interfacial tension .....	92
<b>Table 5.1:</b>	Designation and composition of the elastic fluids used .....	122
<b>Table 5.2:</b>	Fluid systems and corresponding Oldroyd-B relaxation times .....	122

## LISTE DES FIGURES

<b>Figure 1.1:</b> <b>Figure 1.2:</b> <b>Figure 1.3:</b> <b>Figure 1.4:</b> <b>Figure 1.5:</b> <b>Figure 1.6:</b> <b>Figure 1.7:</b> <b>Figure 2.1:</b> <b>Figure 2.2:</b> <b>Figure 2.3:</b> <b>Figure 2.4:</b> <b>Figures 2.5:</b>	Schéma d'une goutte déformée en cisaillement ..... Différents modes de déformations (Rumscheidt et Mason, 1961) ..... Variation du nombre capillaire critique en fonction du rapport de viscosité (Grace, 1982) ..... Courbes de déformation et de rupture d'une goutte viscoélastique (solution de polyacrylamide) dans un milieu newtonien (huile de silicone) ..... Comparaison entre la déformation des gouttes newtoniennes et viscoélastiques (Milliken et al., 1991) ..... Déformation d'une goutte viscoélastique (solution de polyisobutylène) à travers un convergent (Han et Funatsu, 1978) ..... Validation expérimentale de la théorie de Chin et Han (Chin et Han, 1979) ..... Comportement rhéologique d'un fluide de Boger à T= 25°C (solution formée de 0.244% de polyisobutylène à haute masse moléculaire, dissout dans du polybutène newtonien) (Mighri et al., 1997) ..... Courbes de la viscosité dynamique, $\eta'$ , et des modules de stockage et de perte, respectivement $G'$ et $G''$ : (fluides des gouttes) ..... Courbes de la viscosité dynamique, $\eta'$ , et des modules de stockage et de perte, respectivement $G'$ et $G''$ : (fluides de la matrice) ..... Schéma du montage expérimental utilisé pour générer l'écoulement élongationnel ..... Schéma du montage expérimental utilisé pour générer l'écoulement en cisaillement ....	7 11 13 17 18 21 21 24 31 33 41 42
---	---	---

<b>Figures 2.6:</b>	Comparaison entre la déformation élongationnelle et celle en cisaillement, présentées en fonction de $t\varepsilon$ et $t\dot{\gamma}$ , respectivement les déformations élongationnelles et en cisaillement de la matrice: (Combinaisons: $M_N/D_N$ et $M_1/D_2$ ).....	43
<b>Figure 3.1:</b>	Sketch of the experimental setup .....	50
<b>Figure 3.2:</b>	Viscosity and primary normal stress difference of the elastic fluids (at $25^\circ C$ ): a) Matrix fluids ..... b) Drop fluids .....	53 53
<b>Figure 3.3:</b>	Dynamic properties for the drop fluid, $D_1$ , and relation between $N_1$ and $G'$ (at $25^\circ C$ ).....	55
<b>Figure 3.4:</b>	Velocity and elongational strain rate along the cone axis for the matrix flow rate of $28 \text{ mm}^3/\text{s}$ : a) Dimensionless centerline velocity ..... b) Centerline elongational strain rate .....	60 61
<b>Figure 3.5:</b>	Typical pictures of two elastic drops at different positions along the cone axis: a) Drop of $0.8 \text{ mm}$ in initial diameter ..... b) Drop of $1.2 \text{ mm}$ in initial diameter .....	62 63
<b>Figure 3.6:</b>	Drop elongation, $\ell_d$ , as a function of the matrix elongation , $\ell_m$ : effect of the drop elasticity .....	67
<b>Figure 3.7:</b>	Comparison of the drop elongation for the matrix/drop combination $M_1/D_3$ with the results of Delaby et al. (1994)..	68
<b>Figure 3.8:</b>	Drop elongation, $\ell_d$ , as a function of matrix elongation, $\ell_m$ : effect of the matrix elasticity: a) Drops $D_1$ , $D_2$ and $D_3$ in matrix $M_2$ ..... b) Drops $D_1$ , $D_3$ and $D_4$ in matrix $M_3$ .....	70 71
<b>Figure 3.9:</b>	Drop deformation: a) Effects of the elasticity ratio ..... b) Effects of the viscosity ratio .....	72 73
<b>Figure 3.10:</b>	Variation of the deformation parameter, $P$ , for the different fluid systems as a function of the matrix characteristic elastic time, $\lambda_m$ .....	75

<b>Figure 3.11:</b>	Variation of the parameters $a$ et $b$ as a function of the drop characteristic elastic time, $\lambda_d$ .....	77
<b>Figure 3.12:</b>	Variation of the elastic contribution ( $P_N - P_E$ ) as a function of the elasticity ratio .....	78
<b>Figure 4.1:</b>	Typical pictures of two drops under deformation: a) Newtonian drop/matrix combination: $D_N$ sheared in $M_N$ .....	94
	b) Elastic drop/matrix combination: $D_2$ sheared in $M_3$ ....	95
<b>Figure 4.2:</b>	Drop deformation, $\ell_d$ , as a function of the capillary number, $Ca$ : effect of the drop elasticity .....	97
<b>Figure 4.3:</b>	Drop deformation, $\ell_d$ , as a function of the capillary number, $Ca$ : effect of the matrix elasticity .....	100
<b>Figure 4.4:</b>	Variation of the parameter $a$ and the elastic contribution ( $a_E - a_N$ ) with the elasticity ratio, $k'$ .....	101
<b>Figure 4.5:</b>	Typical pictures of two drops under unsteady-state deformation until breakup: a) Newtonian combination: $D_N$ sheared in $M_N$ .....	103
	b) Elastic combination: $D_2$ sheared in $M_3$ .....	104
<b>Figure 4.6:</b>	Critical drop deformation, $\ell_d^*$ , at the critical shear rate as a function of the dimensionless time, $t\dot{\gamma}_c$ .....	106
<b>Figure 4.7:</b>	Variation of the critical capillary number, $Ca_c$ , with the elasticity ratio .....	109
<b>Figure 4.8:</b>	Variation of the dimensionless breakup time, $t_b^*$ , with the elasticity ratio .....	110
<b>Figure 5.1:</b>	Drop fluid, $D_1$ : a) Steady-state and dynamic shear viscosity, $\eta$ and $\eta'$ respectively: Comparison with the Oldroyd-B model predictions .....	123

<b>Figure 5.2:</b>	b) First normal stress difference, $N_1$ , and storage modulus, $G'$ , together with the Oldroyd-B model predictions .....	124
<b>Figure 5.3:</b>	Matrix fluid, $M_1$ :	
	a) Steady-state and dynamic shear viscosity, $\eta$ and $\eta'$ respectively: Comparison with the Oldroyd-B model predictions .....	125
	b) First normal stress difference, $N_1$ , and storage modulus, $G'$ , together with the Oldroyd-B model predictions.....	126
<b>Figure 5.4:</b>	Convergent flow channel and typical mesh used for numerical simulation .....	132
<b>Figure 5.5:</b>	Typical evolution of a simulated drop shape at six different positions along the flow axis: (matrix/drop combination: $M_1/D_4$ ) .....	135
<b>Figure 5.6:</b>	The velocity field inside and outside the drop (matrix/drop combination: $M_1/D_4$ ) .....	135
<b>Figure 5.7:</b>	Effect of the matrix flow rate on drop deformation for the matrix/drop combinations $M_N/D_N$ and $M_1/D_2$ .....	138
<b>Figure 5.8:</b>	Numerical prediction of drop elongation, $\ell_d$ , as a function of the matrix elongation, $\ell_m$ , for the Newtonian system $M_N/D_N$ (comparison with experimental results). .....	139
	Numerical prediction of drop elongation, $\ell_d$ , as a function of the matrix elongation, $\ell_m$ ,	
	a) Elastic system $M_1/D_2$ . ....	141
	b) Elastic system $M_1/D_4$ . ....	142
<b>Figure 5.9:</b>	Numerical prediction of drop elongation, $\ell_d$ , as a function of the matrix elongation, $\ell_m$ : effect of the matrix and drop elasticities .....	143

## INTRODUCTION ET OBJECTIFS GÉNÉRAUX

Durant les dernières années, les chercheurs ont porté une attention particulière sur l'étude des mélanges de polymères. En effet, cette technique constitue une voie privilégiée pour le développement de nouveaux matériaux ayant des performances bien spécifiques tout en étant plus économiques (en temps et en argent) que le développement de nouvelles résines, qui souvent nécessite des dizaines d'années de recherche avant d'être fabriquées. D'une manière générale, les propriétés des mélanges de polymères dépendent, d'une part des propriétés intrinsèques des composantes de base (leur viscosité, leur concentration, leur histoire thermique, etc.), et d'autre part de la morphologie obtenue après le malaxage (taille, forme et arrangement spatial des différentes phases du mélange). La qualité de l'interface entre les différentes composantes du mélange est aussi d'une grande importance, surtout dans le but d'améliorer les propriétés mécaniques, les propriétés barrières et la stabilité. On doit donc tenir compte, non seulement des propriétés des ingrédients de base, mais aussi de la morphologie et de son évolution dans les équipements de mélange et de mise en oeuvre. La maîtrise et le bon contrôle de la morphologie lors des étapes de transformation est donc la clef pour l'obtention d'un produit plus performant qui répond aux exigences en matière de comportement aux chocs, perméabilité, etc. Les deux exemples qui suivent témoignent bien de l'importance de la morphologie sur les propriétés finales du matériau. Dans le cas des propriétés mécaniques, on sait que le comportement aux chocs des thermoplastiques contenant une phase élastomère dépend fortement de la

taille et de la répartition des particules dispersées. Par exemple, lors du renforcement du polyamide par des particules d'élastomères, la distance entre les particules, directement reliée à la taille et la concentration de ces dernières, est le facteur déterminant pour améliorer le comportement au choc du polyamide (Yoshida et al., 1990). La forme de la phase dispersée est tout aussi de grande importance sur les propriétés barrières de certains polymères. On comprendra aisément qu'une dispersion sous forme de lamelles de matériau imperméable (tel que le polyamide) dans une matrice qui ne l'est pas (en polyoléfine), diminue considérablement la perméabilité à l'oxygène et à plusieurs solvants (Subramanian, 1985).

Des études théoriques et expérimentales ont démontré que la viscosité des composantes du mélange, leur concentration, leur histoire thermique ainsi que la tension interfaciale entre ces composantes jouent un rôle important sur le contrôle de la morphologie (taille et forme) de la phase dispersée (Utracki, 1989). Cependant, la majorité de ces études ont été effectuées sur des systèmes de fluides newtoniens et ont négligé l'effet de l'élasticité, caractéristique importante de la majorité des polymères. On sait aussi qu'aux conditions de mélange, les polymères sont des liquides viscoélastiques. Les particules de la phase dispersée sont donc soumises, non seulement aux forces visqueuses et interfaciales, mais aussi aux forces élastiques de la phase majeure (matrice) ainsi que celles des particules dispersées elles-mêmes. L'évolution de la morphologie (taille et forme des particules) est donc affectée par l'élasticité des composantes.

À notre connaissance et d'après la revue de la littérature sur le sujet, il n'y a pas eu vraiment de travaux qui ont réussi à mesurer la contribution de l'élasticité sur la morphologie des systèmes de fluides viscoélastiques. Nous mentionnons par ailleurs, que ceux qui ont étudié le comportement des mélanges de fluides viscoélastiques ont souvent utilisé des matériaux, non seulement à élasticité élevée, mais aussi qui possèdent un comportement rhéofluidifiant. La différence des comportements par rapport à ceux des systèmes de fluides newtoniens représente un résultat complexe qu'on ne peut pas lier directement à l'élasticité ou à la viscosité des différentes phases du mélange. La quantification de la contribution de l'élasticité sur la taille et la forme des particules de la phase dispersée demeure donc inconnue.

L'objectif principal de ce travail est d'identifier et de quantifier la contribution de l'élasticité dans la déformation de gouttes et son influence sur les conditions critiques de rupture de ces gouttes. L'approche adoptée consistera à visualiser le comportement d'une goutte élastique isolée, suspendue dans une matrice élastique dans le cas de deux écoulements bien caractérisés, soient l'écoulement élongationnel et le cisaillement. En effet, les écoulements dans les mélangeurs internes ou les extrudeuses sont une combinaison de cisaillement et d'élongation. Il s'agira donc, en premier temps, de développer une technique expérimentale de visualisation adéquate pour les deux types d'écoulement. Pour l'écoulement élongationnel, on s'intéressera à développer une relation empirique entre la déformation de la goutte et celle de la matrice, qui mettra en évidence la contribution de l'élasticité des deux composantes (goutte/matrice) sur la déformation de la

goutte. Pour l'écoulement en cisaillement, on s'intéressera, dans un premier temps, à quantifier la contribution de l'élasticité sur la déformation en régime permanent de la goutte pour des niveaux de cisaillement inférieurs au cisaillement critique (cisaillement nécessaire pour briser la goutte). Une relation empirique entre la déformation de la goutte et le nombre capillaire sera donc établie. Le montage conçu pour les essais en cisaillement nous permettra d'atteindre des niveaux de cisaillement capables de briser la goutte. On s'intéressera donc, dans un deuxième temps, à trouver une relation entre l'élasticité et les paramètres micro-rhéologiques critiques représentatifs du bris de la goutte, qui sont le nombre capillaire critique,  $Ca_c$ , et le temps de bris,  $t_b$ , nécessaire pour briser la goutte sous cisaillement critique.

Le dernier objectif visé par le présent travail consiste à simuler la déformation de gouttes dans un écoulement élongationnel. Les données expérimentales obtenues serviront à valider les résultats de simulations numériques.

Dans cette thèse, on présentera tout d'abord une revue de la littérature ainsi qu'une évaluation critique des travaux effectués sur les mécanismes de déformation et de rupture de gouttes. Dans le deuxième chapitre, on présentera les fluides modèles utilisés dans cette étude, ainsi que les différentes techniques expérimentales développées. Les trois articles publiés ou soumis pour publication formeront le corps de ce travail. Ces articles seront présentés aux chapitres III, IV et V. Ils seront suivis de conclusions et de recommandations pour des travaux futurs.

## CHAPITRE I

### REVUE DE LA LITTÉRATURE SUR LA MICRO-RHÉOLOGIE DES MÉLANGES BINAIRES DE POLYMÈRES IMMISCIBLES

#### 1.1 Morphologie des mélanges de polymères immiscibles

L'opération de mélange de deux polymères immiscibles à l'état fondu peut aboutir à différentes configurations (morphologies) possibles des deux phases qu'on peut classer en trois types principaux (Van Oene, 1972; Plochoki, 1983): (i) Un premier type de morphologie, appelé morphologie à phases dispersées, dans lequel la phase mineure se présente sous forme de petites gouttes ou de fibrilles. (ii) Un second type, appelé morphologie à phases stratifiées, où la phase mineure se présente sous forme de lamelles plus ou moins fines. (iii) Un dernier type, appelé morphologie co-continue, où les deux phases sont simultanément continues et prennent une configuration de type éponge.

La diversité des propriétés d'un mélange de polymères immiscibles, telles que les propriétés mécaniques, propriétés thermiques, perméabilité, etc., dépendent, d'une part du choix des polymères de départ, et d'autre part du type de morphologie générée durant l'opération de malaxage (Utracki, 1989; Luciani, 1993). Le développement de ces morphologies dépend, de sa part, du type de mélangeur utilisé, des caractéristiques des constituants de base, de leur pourcentage dans le mélange et des conditions de mise en œuvre.

Dans ce chapitre, on présente une revue bibliographique sur les mécanismes fondamentaux susceptibles d'intervenir lors de l'élaboration des morphologies. On présente plus

particulièrement les facteurs principaux qui influencent la déformation et la désintégration des gouttes de la phase dispersée dans le cas où celles-ci se présentent dans le mélange en faible pourcentage (cas du premier type de morphologie présenté auparavant).

## **1.2 Mécanismes de déformation et de rupture des gouttes de la phase dispersée dans le cas des systèmes de fluides newtoniens**

Quand un mélange de deux polymères est soumis à un écoulement, les gouttes de la phase dispersée (phase mineure) se déforment sous l'effet des contraintes générées dans le système. La déformation d'une goutte isolée est déterminée par la compétition entre les forces visqueuses et les forces de surface. À des faibles vitesses d'écoulement, les forces de surface dominent et gardent la goutte sous sa forme sphérique, alors qu'à des niveaux d'écoulement plus élevés, les forces visqueuses à l'intérieur et à l'extérieur de la goutte deviennent importantes et forcent la goutte à se déformer telle que présentée à la figure 1.1 pour le cas d'un écoulement en cisaillement. La loi de Laplace donne une relation entre la tension interfaciale,  $\alpha$ , la différence de pression de part et d'autre de l'interface,  $\Delta P_I$ , ainsi que la géométrie de la goutte. Cette relation est de la forme:

$$\Delta P_I = 2\alpha \left( \frac{1}{L} + \frac{1}{B} \right) \quad (1.1)$$

où  $L$  et  $B$  sont les axes principaux de la goutte déformée.

Taylor (1932, 1934) fut le premier à avoir étudié, théoriquement et expérimentalement, la déformation et la rupture d'une goutte de fluide newtonien dans une matrice newtonienne sous cisaillement simple en régime permanent ou en écoulement élongationnel. Il montre

qu'en cisaillement simple, la déformation et la rupture de la goutte dépendent des deux paramètres adimensionnels suivants:

i) Le rapport de viscosité entre la goutte et la matrice:

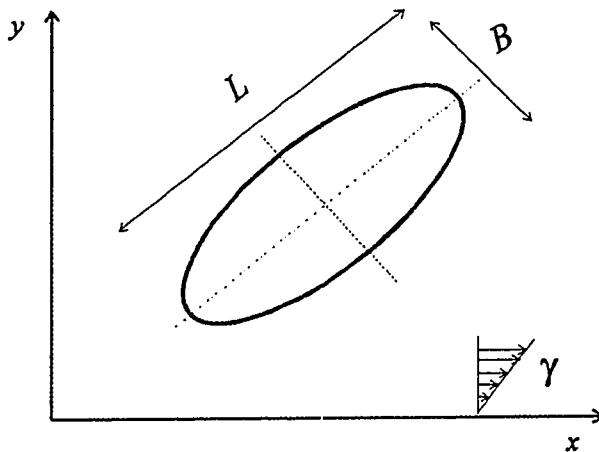
$$k = \frac{\eta_d}{\eta_m} \quad (1.2)$$

où  $\eta_d$  et  $\eta_m$  sont respectivement les viscosités de la goutte et de la matrice.

ii) Le nombre capillaire,  $Ca$ , qui représente le rapport entre les forces visqueuses et interfaciales:

$$Ca = \frac{\eta_m \dot{\gamma} a}{\alpha} \quad (1.3)$$

où  $\dot{\gamma}$  représente le taux de cisaillement et  $a$  le rayon initial de la goutte non déformée.



**Figure 1.1:** Schéma d'une goutte déformée en cisaillement

Dans le cas où l'effet de la tension interfaciale prédomine celui des forces visqueuses (cas des faibles déformations), Taylor donne une relation entre la déformation en cisaillement,

$D$ , de la goutte et les paramètres rhéologiques. Cette relation est de la forme

$$D = \left( \frac{L - B}{L + B} \right) = Ca \left( \frac{19k + 16}{16k + 16} \right) \quad (1.4)$$

Il déduit ensuite un critère de rupture de la goutte qui parvient dès que les forces visqueuses dépassent les forces interfaciales. Ce critère est donné par l'expression suivante:

$$Ca \left( \frac{19k + 16}{16k + 16} \right) \geq 0.5 \quad (1.5)$$

On remarque donc (d'après Taylor) que la rupture en cisaillement de la goutte en deux gouttelettes soeurs de plus petites tailles se produit quand la déformation,  $D$ , est de l'ordre de 0.5. Les études effectuées par Grace (1982) sont parmi les études les plus poussées au niveau de la description du comportement en cisaillement ou en élongation d'une goutte newtonienne dans une matrice newtonienne. Il montre expérimentalement que les modes de déformation et de rupture, ainsi que le temps de bris (temps nécessaire à la rupture), dépendent non seulement du rapport de viscosité, mais aussi de la différence entre le niveau de cisaillement appliqué et le cisaillement critique (cisaillement minimum pour fragmenter la goutte). Grace (1982) a aussi étudié l'élongation nécessaire à la rupture sous cisaillement critique ainsi que le temps nécessaire à la rupture. Les résultats obtenus sous un cisaillement critique montrent que la particule s'allonge de manière importante avant la division. Si le niveau de cisaillement appliqué excède le cisaillement critique, l'élongation à la rupture augmente et la fragmentation donne naissance à un plus grand nombre de gouttelettes soeurs.

Le tableau 1.1 regroupe plusieurs travaux expérimentaux et théoriques effectués sur la déformation de gouttes dans le cas des fluides newtoniens. Parmi les études expérimentales présentées, il y a celle de Bartock et Mason (1959) qui met en évidence un phénomène de circulation interne dans le cas des grosses gouttes qui se déforment en sphéroïdes lors d'un cisaillement simple. Le même phénomène a été observé en écoulement élongationnel par Rumscheidt et Mason (1961). Leurs travaux sur une large gamme de rapport de viscosité et de tension interfaciale leur ont permis d'observer quatre modes de déformation en cisaillement simple, et deux modes de déformation en écoulement élongationnel. La figure 1.2 montre une représentation simplifiée de ces différents modes de déformation. Les résultats de Rumscheidt et Mason ne concordent avec la théorie de Taylor que pour des faibles rapports de viscosité.

Il est important de noter que la majorité des travaux expérimentaux confirment que les théories proposées, y compris celle de Taylor (1932, 1934) ne sont valides que dans le cas des faibles déformations. En effet, ces théories sont basées sur l'hypothèse de faible déformation. Pour une forme quelconque,  $r$ , mesurée durant la déformation par rapport au système d'axes placé au centre de la goutte tel que montré à la figure 1.1, la perturbation par rapport à la forme sphérique initiale est mesurée par un paramètre très faible,  $\zeta$ , selon la relation suivante (Rallison, 1981; Lee et Park, 1994):

$$r = a(1 + \zeta f) \quad (1.6)$$

où  $a$  représente le rayon initial de la goutte non déformée, et  $f$  la déviation du rayon de la goutte déformée par rapport à son rayon initial.

**Tableau 1.1:** Sommaire des principaux travaux sur la déformation et la rupture d'une goutte newtonienne dans une matrice newtonienne.

Type d'écoulement	rapport de viscosité ( $k$ )	nombre capillaire ( $Ca$ )	Types des travaux et auteurs
<b>Travaux expérimentaux</b>			
Cisaillement simple	Arbitraire	Arbitraire	Bartok et Mason (1959) Rumscheidt et Mason (1961) Grace (1971)
<b>Travaux théoriques</b>			
	Arbitraire	$Ca \ll 1$	Biesel et Acrivos (1973)
	$k \rightarrow 0$	Arbitraire	Cox (1969)
	$k \rightarrow 0$	$Ca \rightarrow \infty$	Hinch et Acrivos (1979)
	$k \rightarrow 1$	Arbitraire	Rallison (1981)
<b>Travaux expérimentaux</b>			
Élongationnel 2D	Arbitraire	Arbitraire	Rumscheidt et Mason (1961) Grace (1971) Choi et Schowalter (1975)
<b>Travaux théoriques</b>			
	Arbitraire	$Ca \ll 1$	Biesel et Acrivos (1973)
	$k \rightarrow 0$	$Ca \rightarrow \infty$	Hinch et Acrivos (1980)
	$k = 1$	Arbitraire	Rallison (1981)
<b>Travaux théoriques</b>			
Élongationnel Axisymétrique	Arbitraire	$Ca \ll 1$	Biesel et Acrivos (1973)
	$k \leq 30$	Arbitraire	Van Der Reijden et Sara (198)
	$k \rightarrow 0$	$Ca \rightarrow \infty$	Acrivos et Lo (1978)
	$k \geq 0.3$	Arbitraire	Rallison (1981)
	$k \rightarrow 0$	Arbitraire	Youngren et Acrivos (1976)

	Mode de déformation	Rapport de viscosité, $k$ et tension interfaciale, $\alpha^*$
Cisaillement simple		$k < 0.14$ et $\alpha < 10$
		$0.14 < k < 0.65$ $10 < \alpha < 20$
		$0.7 < k < 2.2$ $\alpha < 20$
		$k > 3.8$ $\alpha > 4$
Écoulement élongationnel		$k < 0.2$ $\alpha < 38$
		$k > 60$ $\alpha > 4.8$

\* [=] mN/m.

Figure 1.2: Différents modes de déformations (Rumscheidt et Mason, 1961).

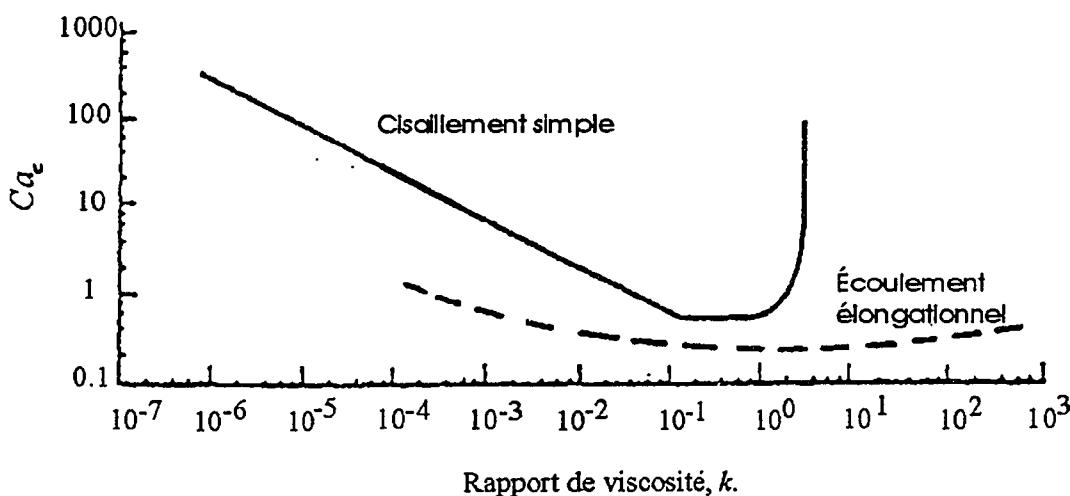
La plupart des auteurs ont débuté leurs analyses par la résolution des équations de Navier-Stokes à l'intérieur et à l'extérieur de la goutte. En utilisant les conditions d'interface appropriées: (i) continuité de la vitesse (pas de glissement à l'interface), (ii) continuité des contraintes, et (iii) immiscibilité des phases, ils ont utilisé la technique d'expansion en fonction du paramètre de perturbation,  $\zeta$ , pour ainsi trouver le champs de vitesse à l'interface en fonction de  $\zeta$ . La vitesse radiale de déformation à l'interface donne la forme instantanée de la goutte. Le degré de précision des résultats reste cependant fonction de l'ordre de l'expansion en  $\zeta$ , des hypothèses de départ (forces d'inerties négligées, incompressibilité, etc.) et des cas particuliers traités ( $Ca \ll 1$ ,  $Ca \gg 1$ ,  $k \ll 1$ ,  $k \gg 1$ , etc.).

À titre d'exemples, Cox (1969) a développé une théorie pour prédire la déformation,  $D$ , en cisaillement d'une particule visqueuse dans une matrice visqueuse en cisaillement. Dans son développement, il n'a traité que le cas où les rapports de viscosité sont élevés ( $k \gg 1$ ). La prédiction de la déformation de la goutte, par la théorie de Cox, est donnée par la relation suivante:

$$D = Ca \left( \frac{19k + 16}{16k + 16} \right) \left[ 1 + \left( \frac{19k}{20} Ca \right)^2 \right]^{-1/2} \quad (1.7)$$

En résumé, on peut conclure que la majorité des études expérimentales ont fait apparaître des limites dans le rapport de viscosité au dessus et en dessous desquelles la rupture de la goutte est très difficile. Tous les résultats semblent être en accord avec ceux de Grace (1982), qui montre à la figure 1.3 que la limite supérieure est de l'ordre de 3.5,

alors que la limite inférieure varie de  $10^{-6}$  à  $10^{-2}$ . D'après la figure 1.3, on peut tirer les remarques suivantes: (i) La rupture est plus facile pour des valeurs de  $k$  situées entre 0.1 et 1. (ii) La variation logarithmique du nombre capillaire critique par rapport à  $k$  est presque linéaire pour des rapports  $k$  inférieurs à 1. (iii) Contrairement au cisaillement simple en régime permanent, la rupture d'une goutte newtonienne dans un écoulement élongationnel semble être plus aisée. Il n'y a pas de restrictions quant au niveau du rapport de viscosité. Au vu de ces résultats, il apparaît que les conditions de déformation et de rupture sont très dépendantes de la géométrie de l'appareil de mélange utilisé et que l'écoulement élongationnel est beaucoup plus performant pour déformer et briser une goutte que le cisaillement simple.



**Figure 1.3:** Variation du nombre capillaire critique en fonction du rapport de viscosité (Grace, 1982).

### 1.3 Effet de l'élasticité sur les mécanismes de déformation et de rupture de la phase dispersée

#### 1.3.1 Cas où une seule composante du mélange est viscoélastique

Contrairement aux systèmes newtoniens, il y a peu de théories qui tiennent compte du caractère élastique de la phase dispersée et de la matrice. Quelques études expérimentales ont été effectuées pour connaître le comportement de gouttes viscoélastiques se déformant dans un milieu newtonien et vice-versa (Gauthier et al., 1971; Flumerfelt, 1972; Elmendorp et Maalke, 1985; De Buijn, 1989; Milliken et Leal, 1991; Varanasi et al., 1994). Gauthier et al. (1971) ont trouvé que le nombre capillaire critique en cisaillement,  $Ca_c$ , est plus élevé dans le cas d'une goutte élastique se déformant dans une matrice newtonienne, que dans le cas d'une goutte newtonienne dans une matrice newtonienne. Vu le nombre insuffisant de résultats expérimentaux sur la rupture de la goutte, ils n'ont pas tiré des conclusions quant à la contribution de l'élasticité sur  $Ca_c$ . Han et Chuang (1985) ont étudié théoriquement le comportement d'une goutte newtonienne dans une matrice viscoélastique en écoulement élongationnel. Ils concluent que la déformation de la goutte est principalement contrôlée par la viscosité de la matrice. L'élasticité de la matrice ou la viscosité de la goutte n'ont qu'une faible contribution dans la déformation de la goutte. Cependant, il est intéressant de signaler que le modèle développé n'est valide que dans le cas des faibles déformations. Varanasi et al. (1994) ont observé que durant le cisaillement continu, une goutte viscoélastique qui se déforme dans une matrice newtonienne atteint des allongements très élevés et ne se fragmente qu'après arrêt de l'écoulement. L'élasticité de la goutte a un effet de stabilisation pour un rapport de

viscosité,  $k$ , inférieur à 0.5 et un effet de déstabilisation pour  $k$  supérieur à 0.5. Les résultats de Varanasi et al. (1994) ont été contredites par De Bruinjn (1989) qui a trouvé une légère augmentation de  $Ca_c$  dans le cas des gouttes viscoélastiques. Flumerfelt (1972) a été le premier à avoir réussi à formuler une relation entre  $Ca_c$  et l'élasticité de la goutte, dont le comportement rhéologique a été décrit par le modèle rhéologique de Bird-Carreau (1968). Pour un écoulement en cisaillement simple, la relation obtenue est de la forme:

$$Ca_c = f_1(k)(\lambda_1 \dot{\gamma}) + f_2(k) \quad (1.10)$$

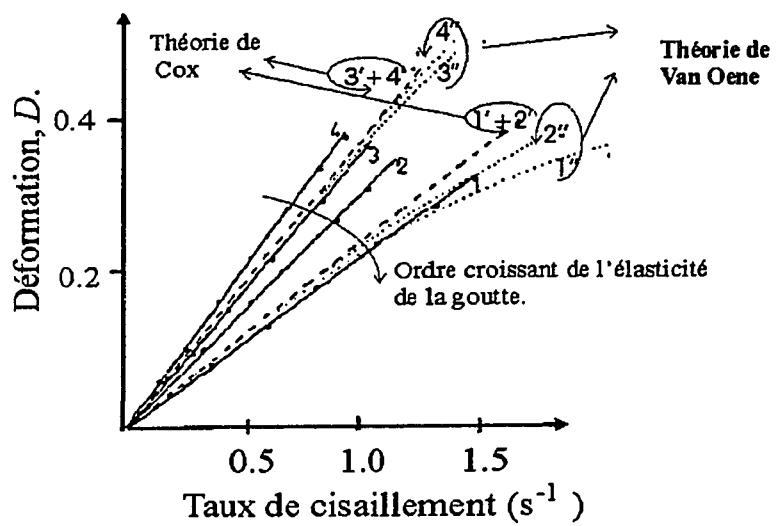
où  $f_1(k)$  et  $f_2(k)$  sont deux paramètres expérimentaux qui dépendent du rapport de viscosité,  $\lambda_1$  est le temps de relaxation du modèle de Bird-Carreau ( $s$ ), et  $\dot{\gamma}$  le taux de cisaillement ( $s^{-1}$ ).

Elmendorp et Maalcke (1985) ont visualisé le comportement en cisaillement d'une goutte viscoélastique dans un milieu newtonien et vice-versa. Dans le premier cas, et ce pour plusieurs systèmes, ils ont observé de faibles déformations. Les gouttes viscoélastiques sont stables et ne se brisent pas. Dans le second cas, les contraintes normales générées par la matrice favorisent la déformation et le bris des gouttes newtoniennes. À la figure 1.4, on fait apparaître la comparaison de leurs résultats avec la théorie de Cox (1969) et celle de Van Oene (1972). Les courbes de déformation et de rupture sont numérotées par ordre décroissant d'élasticité. On voit bien que les gouttes les plus élastiques sont celles qui se déforment le moins et qu'elles sont plus stables. Le même travail a été effectué par Milliken et Leal (1991) en écoulement élongationnel. Ils ont observé que pour des

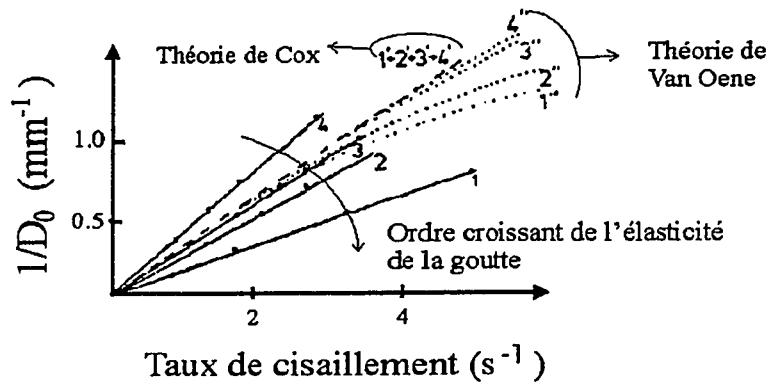
rapports de viscosité supérieurs à l'unité, la déformation d'une goutte viscoélastique dans une matrice newtonienne est identique à celle d'une goutte newtonienne dans une matrice newtonienne. Cependant, pour des rapports de viscosité inférieurs à l'unité, la goutte viscoélastique se déforme moins que la goutte newtonienne. La figure 1.5 montre deux séries de photos pour comparer la déformation dans une matrice newtonienne d'une goutte de fluide newtonien (à gauche) et celle d'un fluide viscoélastique (à droite). Les séries de photos ont été prises alors que les gouttes se déforment sous cisaillement élevé (supérieur au cisaillement critique). Les valeurs indiquées à côté de chaque photo représentent la déformation élongationnelle, soit le temps de déformation,  $t$ , multiplié par le taux élongationnel,  $\dot{\varepsilon}$ . Les deux dernières photos, correspondant au même temps de déformation dans les deux cas, montrent bien que la goutte élastique s'allonge moins que la goutte newtonienne. Les auteurs n'ont pas formulé de relation qui met en évidence l'influence de l'élasticité sur la déformation et le nombre capillaire critique.

### 1.3.2 Cas où les deux composantes du mélange sont viscoélastiques

Ce qui nous intéresse le plus dans notre étude est le cas le plus réaliste où les deux composantes du mélange ont un comportement viscoélastique, caractéristique importante de la majorité des polymères. Van Oene (1972) fut parmi les premiers chercheurs à avoir étudié les systèmes viscoélastiques. Il part du fait que le comportement en écoulement de ces systèmes peut être décrit en terme de fonctions qui tiennent compte à la fois des forces dissipatives (ou forces visqueuses), ainsi que des contraintes normales qui décrivent la distribution de la pression due à l'élasticité ou la déformabilité du fluide.

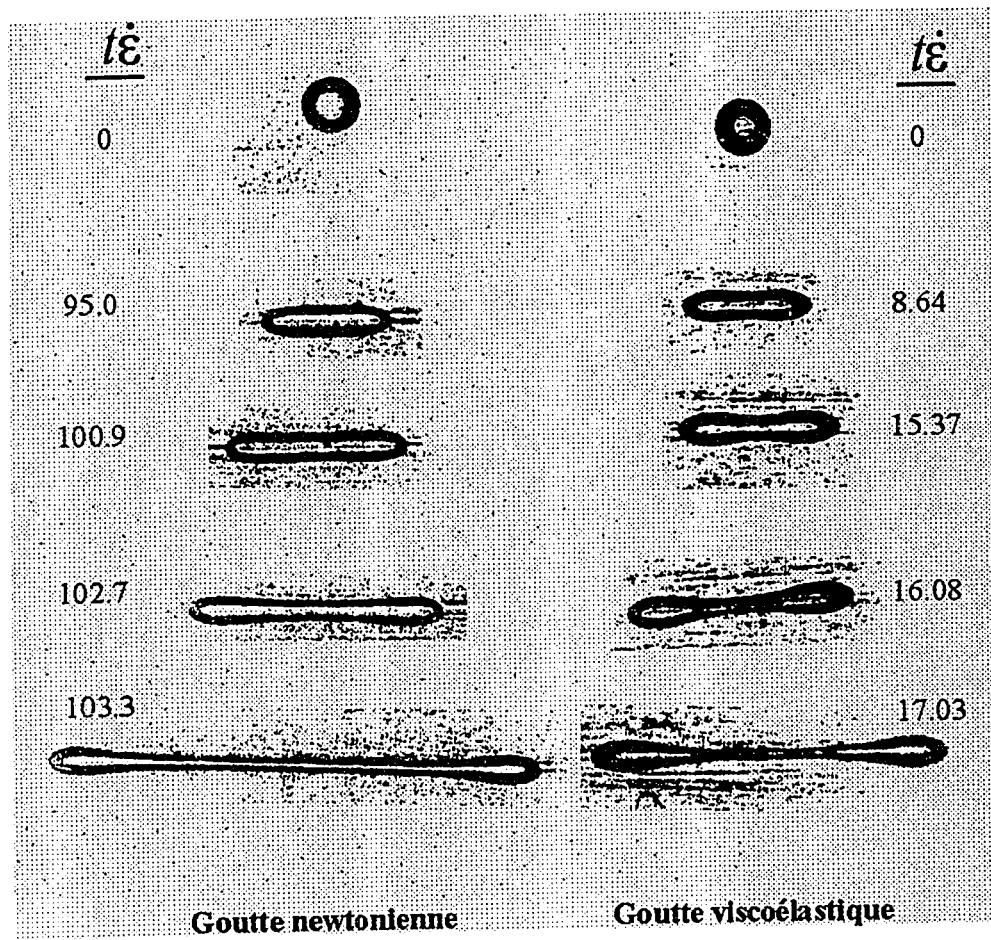


- a- Courbe de déformation versus le taux de cisaillement  
(la déformation,  $D$ , est calculée selon l'équation 1.4 )



- b- Courbe de rupture versus le taux de cisaillement critique  
( $D_0$  est le diamètre de la goutte non déformée)

**Figure 1.4:** Courbes de déformation et de rupture d'une goutte viscoélastique (solution de polyacrylamide) dans un milieu newtonien (huile de silicium) : ( — ) : courbes expérimentales, (1', 2', 3' et 4') : théorie de Cox (1969), (1'', 2'', 3'' et 4''): théorie de Van Oene (1972). (Elmendorp et al., 1985).



**Figure1.5:** Comparaison entre la déformation d'une goutte newtonienne et celle d'une goutte viscoélastique (Milliken et al., 1991).

Il modifie donc la valeur de la tension interfaciale par ajout d'un terme correctif qui représente la contribution du caractère élastique des matériaux sous cisaillement. Il exprime cette modification de la manière suivante:

$$\alpha = \alpha_0 + \frac{\alpha}{6} [N_{Ig} - N_{Im}] \quad (1.11)$$

où  $\alpha$  est la tension interfaciale sous cisaillement et  $\alpha_0$  la tension interfaciale au repos.

Le terme  $\frac{\alpha}{6} [N_{Ig} - N_{Im}]$  représente l'énergie libre élastique par unité de surface interfaciale. Cette nouvelle tension interfaciale est utilisée pour décrire le phénomène de déformation et de rupture à l'aide des théories de stabilité hydrodynamique telle que celle de Cox (1969). Parmi les autres travaux qui ont traité les systèmes viscoélastiques, nous pouvons citer ceux de Han et Funatsu (1978) qui ont étudié expérimentalement l'extension et la rupture d'une goutte viscoélastique dans une matrice viscoélastique en écoulement à travers un conduit transparent de type convergent-uniforme. La figure 1.6 montre des photos d'une goutte déformée dans les deux régions de l'écoulement. Les auteurs ont trouvé que les gouttes viscoélastiques sont plus stables que les gouttes newtoniennes et que la stabilité augmente avec leur niveau d'élasticité. Des contraintes de cisaillement plus élevées sont donc nécessaires pour réussir à fragmenter des gouttes plus élastiques. Par ailleurs, on signale que Han et Funatsu n'ont pas proposé de théorie pour cerner l'effet de l'élasticité, mais ils ont réussi à tracer une courbe qui sépare la région stable (là où il n'y a pas rupture) de la région instable où la goutte se fragmente en deux ou plusieurs gouttelettes. Chin et Han (1979) ont donné suite aux travaux de Han et Funatsu pour l'écoulement élongationnel à travers un conduit convergent. Leur théorie donne des

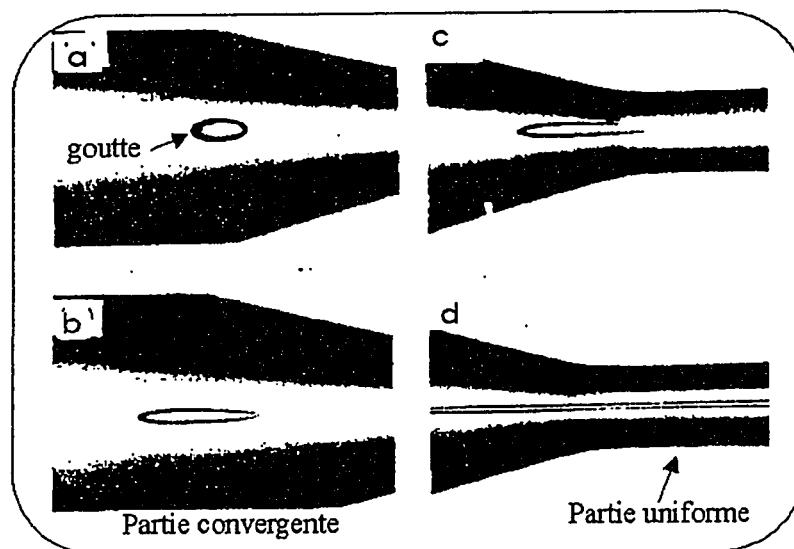
informations qualitatives fondamentales sur l'importance relative des divers facteurs entrant en ligne de compte dans les phénomènes de division de gouttes viscoélastiques. Il ont montré que la déformation de la goutte augmente avec l'accroissement du nombre capillaire et varie légèrement avec le rapport de viscosité. Cette déformation augmente aussi légèrement avec l'accroissement de l'élasticité de la matrice. D'après les résultats obtenus par Chin et Han, on constate que la viscosité du milieu joue un rôle plus important sur l'état de déformation que celui de l'élasticité du milieu ou de la viscosité de la goutte. La figure 1.7 montre que la théorie développée surévalue la déformation pour des nombres capillaires supérieurs à 0.2. La description du comportement rhéologique des fluides par le modèle de Jeffreys constitue un simplification importante dans leur modèle.

#### 1.4 Résumé et commentaires

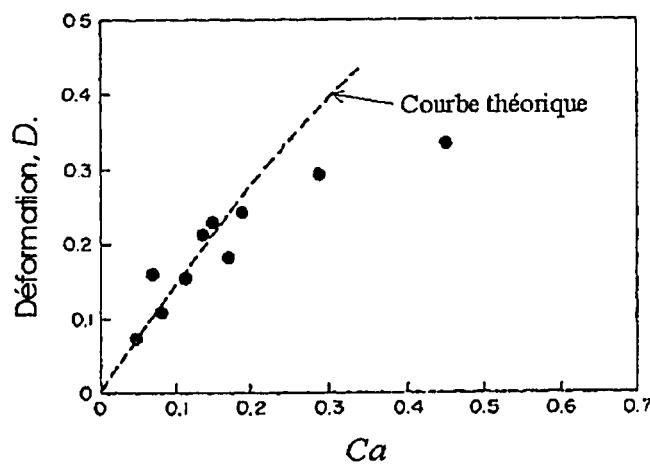
La majorité des travaux sur les mélanges de polymères peuvent être regroupés en trois grandes classes:

(i) La première classe regroupe les travaux qui ne traitent que les mélanges de fluides newtoniens. La plupart de ces travaux montrent que:

- Il existe des limites dans le rapport de viscosité au dessus et en dessous desquelles la rupture des gouttes dispersées est très difficile.
- La valeur du rapport de viscosité pour lequel la rupture est plus aisée se situe aux alentours de l'unité.
- La rupture en écoulement élongationnel est plus facile qu'en cisaillement simple.



**Figure 1.6:** Déformation d'une goutte viscoélastique (solution de polyisobutylène) à travers un convergent (Han et Funatsu, 1978).



**Figure 1.7:** Validation expérimentale de la théorie de Chin et Han (1979).

- La majorité des théories proposées ne sont valides que pour des faibles déformations, alors que durant l'opération de malaxage, les particules de la phase dispersée peuvent atteindre des déformations élevées.

(ii) La seconde classe regroupe les travaux qui traitent du comportement des systèmes mixtes dans lesquels une seule composante du mélange est viscoélastique. Ces travaux montrent que:

- Le nombre capillaire critique dans un système mixte (où l'une des composantes est viscoélastique) est plus élevé que dans le cas des mélanges des fluides newtoniens.
- L'élasticité de la phase dispersée a un effet de stabilisation des gouttes dispersées, alors que l'élasticité de la matrice a un effet de déstabilisation.

(iii) La troisième et dernière classe regroupe les quelques travaux qui touchent les cas les plus réalistes où les deux composantes du système sont viscoélastiques. Ces travaux ne donnent généralement que des informations qualitatives sur le rôle de l'élasticité sur la déformation et la rupture des gouttes dispersées.

Par ailleurs, aucune étude antérieure n'a mis en lumière l'effet de l'élasticité des gouttes et de la matrice en absence d'effets rhéofluidifiants. Ceux qui ont étudié le comportement des mélanges de fluides viscoélastiques ont souvent utilisé des matériaux non seulement à élasticité élevée, mais aussi qui possèdent un comportement rhéofluidifiant. La différence des comportements par rapport à ceux des systèmes de fluides newtoniens représente un résultat complexe qu'on ne peut pas lier directement à l'élasticité ou à la viscosité des différentes phases du mélange. La quantification de la contribution de l'élasticité sur la taille et la forme des particules de la phase dispersée demeure donc inconnue.

## CHAPITRE II

### MATÉRIAUX UTILISÉS, TECHNIQUES EXPÉRIMENTALES ET DISCUSSION DES RÉSULTATS OBTENUS

Dans ce chapitre, on présente les différents fluides modèles utilisés dans le présent travail, la technique de préparation ainsi que certaines de leurs propriétés rhéologiques. Les détails sur la caractérisation rhéologique fera l'objet du chapitre III. En ce qui concerne les différentes techniques expérimentales utilisées pour la caractérisation rhéologique et la génération des deux types d'écoulements, on ne présente dans ce chapitre que les points jugés importants et qui ne seront pas expliqués en détail dans les articles faisant objet des trois prochains chapitres. Une brève discussion générale des résultats obtenus sera présentée à la fin du chapitre.

#### 2.1 Fluides modèles utilisés et mesures rhéologiques

Pour rendre possible la séparation des effets de l'élasticité de ceux des effets visqueux, un des rares moyens disponibles est l'utilisation des fluides modèles idéalement élastiques découverts depuis une vingtaine d'années par David Boger (1977). Ces fluides possèdent à la fois une viscosité relativement constante et un niveau d'élasticité élevé.

##### 2.1.1 Caractéristiques générales d'un fluide de Boger

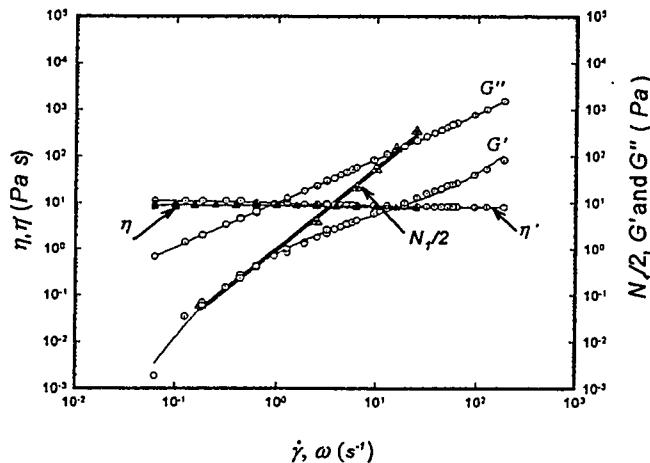
La figure 2.1 illustre respectivement les viscosités en régime permanent,  $\eta$ , et dynamique,  $\eta'$ , de l'un des fluides de Boger utilisés dans le présent travail (ce fluide est identifié au

tableau 2.1 par  $D_1$ ). On y présente également le module de stockage,  $G'$ , et la première différence des contraintes normales,  $N_I$ , caractéristiques de l'élasticité du fluide. On remarque que  $\eta$  et  $\eta'$  sont presque identiques et présentent une très légère dépendance du taux de cisaillement ou de la fréquence angulaire. Quant à  $N_I$  et  $G'$ , ils obéissent généralement à la relation suivante (Boger et al., 1977):

$$\lim_{\omega \rightarrow 0} \frac{G'}{\omega^2} = 1/2 \lim_{\dot{\gamma} \rightarrow 0} \frac{N_I}{\dot{\gamma}^2} \quad (2.1)$$

L'élasticité de ce type de fluide, caractérisée par le temps de relaxation de Maxwell,  $\lambda$ , peut être calculée à partir des données expérimentales de la première différence des contraintes normales en utilisant la relation suivante :

$$\lambda = N_I / 2\eta \dot{\gamma}^2 \quad (2.2)$$



**Figure 2.1:** Comportement rhéologique d'un fluide de Boger à  $T= 25^\circ\text{C}$  (solution formée par 0.244% de polyisobutylène à haute masse moléculaire dissout dans du polybutène newtonien) (Mighri et al., 1997).

### 2.1.2 Systèmes de fluides de Boger utilisés dans le présent travail

Le choix des matériaux utilisés dans ce travail a été dicté par le fait que les combinaisons goutte/matrice devraient être immiscibles. Les combinaisons choisies, dont la composition est montrée au tableau 2.1, répondent bien à cette exigence.

- (a) Pour les fluides de la phase matrice, nommés  $M_i$  dans le reste du travail, de faibles quantités de polyacrylamide à haute masse moléculaire (*PAA*), [ $2 \times 10^6 \leq M_w \leq 4 \times 10^6$  kg/kmol, Separan AP30 de Dow Chemical] ont été dissoutes dans du sirop de maltose (*MS*), et de l'eau distillée (*W*). Une faible quantité de bactéricide (*300 ppm de NaN<sub>3</sub>*) a été ajoutée au mélange pour éviter la formation de bactéries à cause de la présence du sucre dans le sirop de maltose. La masse volumique mesurée du mélange est de l'ordre de *1.15 g/mL*.
- (b) Pour les fluides de la phase dispersée, nommés  $D_i$ , de faibles quantités de polyisobutylène à haute masse moléculaire (*PIB*), [ $1 \times 10^6 \leq M_w \leq 2 \times 10^6$  kg/kmol, d'Aldrich] ont été dissoutes dans un mélange de polybutène newtonien (*PB*), [ $\mu = 24 \text{ Pa.s}$  à  $25^\circ\text{C}$ , Indopol H100 de Stanchem Canada], et du kérósène (*Ker.*). La masse volumique du mélange est de l'ordre de *0.98 g/mL*.

Le mélange a été effectué, dans une enceinte fermée à la température ambiante, à l'aide d'un agitateur à faible vitesse de rotation afin d'éviter la dégradation des polymères à haute masse moléculaire. Une durée de mélange de cinq jours a été jugée suffisante pour assurer une meilleure dissolution (Boger et al., 1977). Les solutions ont été gardées

hermétiquement à des températures d'environ 5°C afin d'éviter toute possibilité d'évaporation ou de dégradation.

Comme détails complémentaires concernant les conditions expérimentales pour mesurer les viscosités et les contraintes normales, nous mentionnons :

(a) Les mesures de la viscosité et des contraintes normales ont été effectuées à l'aide d'un rhéogoniomètre Weissenberg, modèle R-18, en utilisant des plateaux parallèles avec un entrefer de 1 mm. À cause de la sensibilité de l'appareil, nous n'avons pas pu mesurer avec précision les valeurs des contraintes normales inférieures à 10 Pa. Seules les valeurs qui sont supérieures à 10 Pa ont été donc retenues.

(b) Vu qu'on a utilisé du polybutène et des solvants plus ou moins volatils, tels que le kérosène et le sirop de maltose, la viscosité des fluides modèles préparés était donc très sensible à la variation de la température. Un contrôle adéquat de la température d'essais a été effectué et la température à l'intérieur de la chambre d'essais a été maintenue à  $25 \pm 0.5$  °C. Des résultats de viscosité en cisaillement continu, obtenus à l'aide du rhéogoniomètre Weissenberg, ont été sensiblement identiques à ceux obtenus à l'aide du rhéomètre VOR de Bohlin (montage de type couette). Ceci nous a assuré de la bonne précision et de la répétitivité des résultats. De plus, nous signalons que nous avons appliqué une mince couche d'huile de silicone, de faible viscosité, au niveau de la surface libre des échantillons testés pour empêcher l'évaporation de l'eau contenue dans le sirop. Cette technique a été utilisée par Aït-Kadi et al. (1988).

Le tableau 2.2 résume les propriétés rhéologiques des différentes combinaisons de fluides

utilisées, soient le rapport de viscosité, le temps de relaxation de Maxwell ainsi que le rapport d'élasticité. Ce dernier est défini par le rapport entre le temps de relaxation de Maxwell de la phase dispersée (goutte) et celui de la matrice. Les figures 2.2 et 2.3 montrent respectivement les résultats correspondant à la viscosité dynamique,  $\eta'$ , aux modules de stockage,  $G'$ , et de perte,  $G''$ , en fonction de la fréquence angulaire, pour les différents fluides des gouttes et ceux des matrices utilisés dans le présent travail. Nous remarquons que dans la région des faibles fréquences, le module de stockage augmente avec le pourcentage de polyisobutylène ajouté à la solution. De plus, comme déjà mentionné à la section 2.1.1, le module de stockage varie d'une manière presque quadratique avec la fréquence angulaire dans le cas des solutions les moins concentrées en polyisobutylène ou en polyacrylamide.

**Tableau 2.1:** Désignation et composition des fluides de Boger utilisés dans le présent travail.

	Désignation des fluides	Formulation du mélange <sup>a)</sup>
Fluides de la matrice	$M_N$	0.00% PAA + 92.0% MS + 8.00% W.
	$M_I$	0.03% PAA + 92.0% MS + 7.97% W.
	$M_2$	0.06% PAA + 92.0% MS + 7.94% W.
	$M_3$	0.10% PAA + 92.0% MS + 7.90% W.
Fluides de la goutte	$D_N$	0.000% PIB + 93.0% PB + 7.00% Ker.
	$D_I$	0.244% PIB + 92.8% PB + 6.98% Ker.
	$D_2$	0.600% PIB + 91.0% PB + 8.40% Ker.
	$D_3$	0.800% PIB + 93.0% PB + 6.20% Ker.
	$D_4$	1.200% PIB + 92.0% PB + 6.80% Ker.

<sup>a)</sup> Tous les pourcentages sont en masse.

**Tableau 2.2:** Systèmes de fluides de Boger utilisés, leurs temps de relaxation, les rapports de viscosité et d'élasticité des différentes combinaisons, ainsi que leurs tensions interfaciales.

Fluides de la matrice ( $M_i$ )	Fluides de la goutte ( $D_i$ )	Temps de relaxation Matrice $\lambda_m(s)$	Temps de relaxation Goutte $\lambda_d(s)$	Rapport de viscosité (k)	Rapport d'élasticité (k')	Tension interfaciale $\alpha$ (mN/m)
$M_N$	$D_N$	---	---	0.50	---	$\approx 22.0$
$M_1$	$D_N$		---	0.50	0.00	22.5
	$D_1$		0.13	0.75	0.37	23.0
	$D_2$	0.36	0.22	0.52	0.60	19.5
	$D_3$		1.44	0.63	4.00	23.5
	$D_4$		2.16	1.10	6.00	20.0
$M_2$	$D_1$		0.13	0.71	0.15	22.5
	$D_2$	1.00	0.22	0.49	0.22	23.5
	$D_3$		1.44	0.60	1.15	22.5
	$D_4$		2.16	1.05	1.70	21.0
$M_3$	$D_1$		0.13	0.45	0.03	27.5
	$D_2$	4.00	0.22	0.28	0.07	25.0
	$D_3$		1.44	0.36	0.30	24.0
	$D_4$		2.16	0.68	0.47	27.0

### 2.1.3 Technique expérimentale utilisée pour mesurer la tension interfaciale

Dans un système de deux liquides immiscibles, les interactions entre les deux constituants sont caractérisées par un paramètre  $\alpha$  appelé tension interfaciale entre les deux milieux 1 et 2. Ce paramètre est défini à partir du travail,  $W$ , nécessaire pour créer l'interface (frontière physique) et des tensions de surface  $\alpha_1$  et  $\alpha_2$  de chacun des deux

constituants:

$$\alpha = \alpha_1 - \alpha_2 - W \quad (2.3)$$

Plusieurs techniques expérimentales peuvent être utilisées pour déterminer la tension interfaciale. On peut les classer en deux catégories, (i) les méthodes à l'équilibre (goutte pendante, goutte posée, etc.) et, (ii) les méthodes dynamiques (rupture capillaire, goutte tournante, etc.).

Dans ce travail, les mesures de la tension interfaciale ont été effectuées à l'aide de la technique de la goutte tournante (spinning drop) à cause de sa fiabilité ainsi que de la disponibilité de l'appareil au laboratoire. Cette technique, utilisée par Elmendorp et De Vos (1986), consiste à faire tourner un tube transparent contenant une goutte de fluide suspendue dans une matrice d'un autre fluide plus dense. L'importance de la déformation en fonction de la vitesse de rotation du tube donne accès à la tension interfaciale. Le profil de la goutte déformée est déterminé par la compétition entre les forces centripètes et les forces interfaciales. Elmendorp et De Vos (1986) ont démontré qu'à des vitesses de rotation suffisamment élevées, la goutte devient très déformée et forme ainsi un profil cylindrique dont la longueur peut excéder quatre fois son diamètre. Dans ces conditions, la relation entre la tension interfaciale et le diamètre de la goutte allongée prend la forme suivante :

$$\alpha = \frac{\omega^2 d^3 \Delta\rho}{32} \quad (2.4)$$

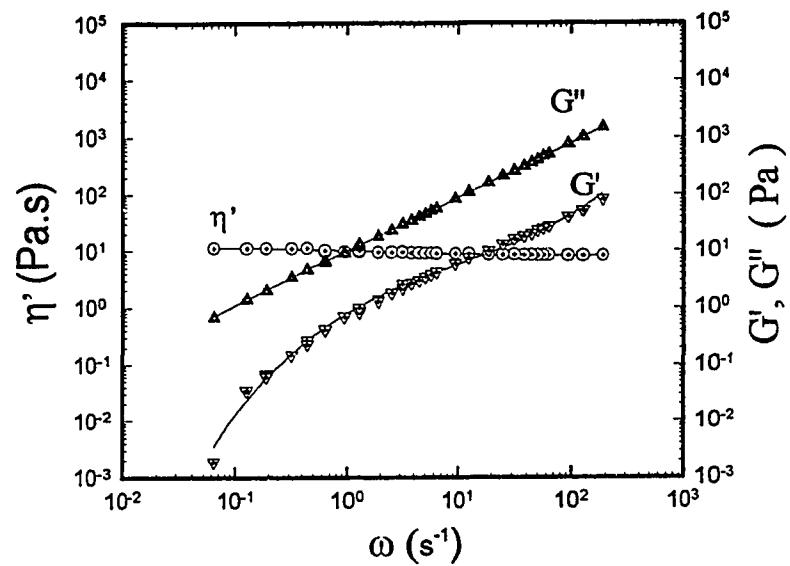
où  $\omega$  est la vitesse de rotation du tube,  $d$  le diamètre du cylindre formé par la goutte déformée, et  $\Delta\rho$  la différence entre les densités des deux phases. Dans le cas des faibles

déformations, la tension interfaciale est donnée par l'expression suivante (Elmendorp et De Vos (1986):

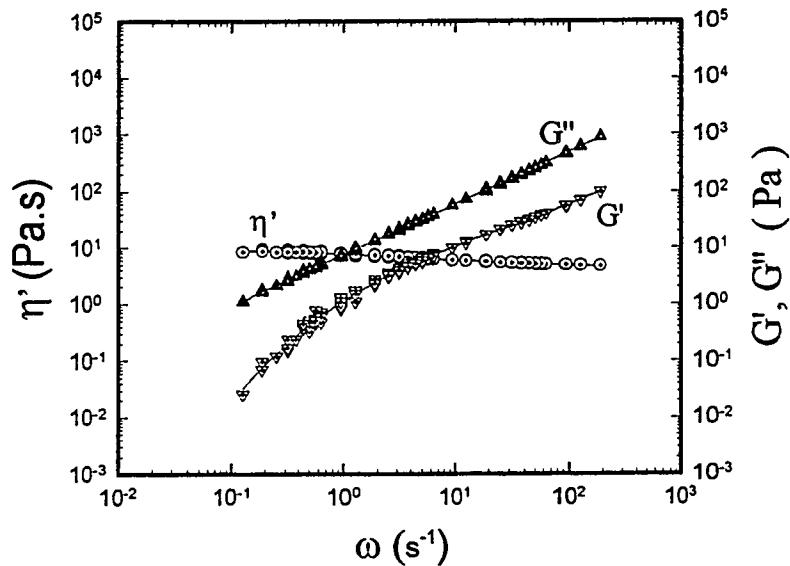
$$\alpha = \frac{\omega^2 \Delta \rho}{4C} \quad (2.5)$$

où  $C$  est un facteur de forme tabulé pour plusieurs configurations possibles de la goutte déformée.

Les valeurs des tensions interfaciales des différentes combinaisons de fluides utilisés dans notre étude, obtenues à l'aide de la technique de la goutte tournante, sont résumées au tableau 2.2. Les mesures ont été effectuées à 25°C, température à laquelle ont été effectués les essais de déformation et de rupture des gouttes. Les résultats obtenus représentent la moyenne de trois essais dont la durée de chacun de ces essais est d'environ une heure et demie, temps nécessaire pour atteindre une déformation stable de la goutte.

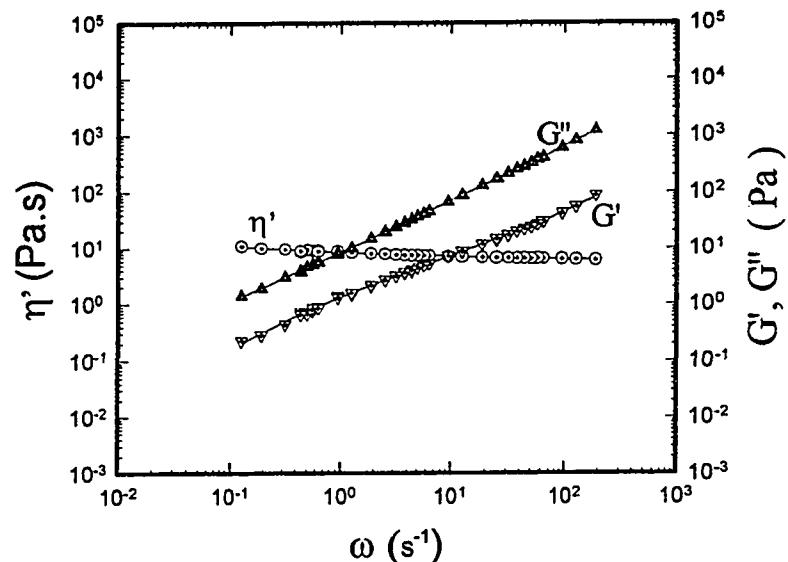
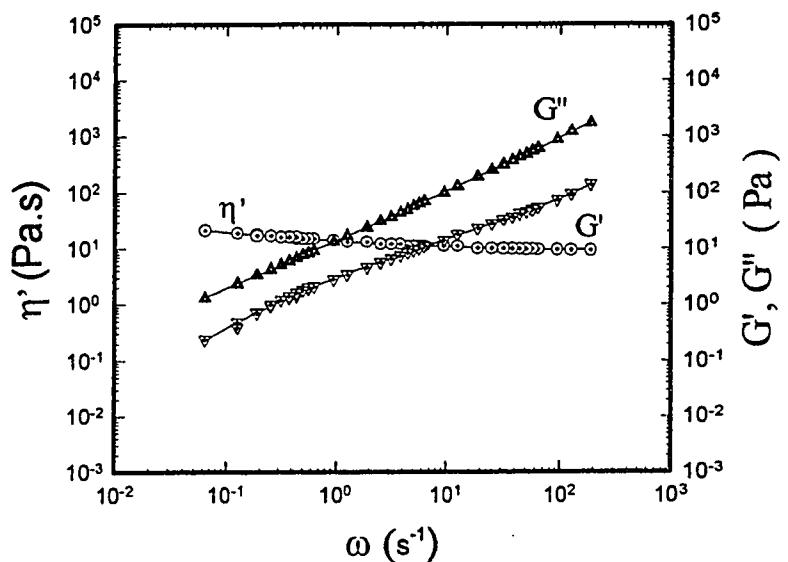


a) Fluide de la goutte,  $D_1$ .

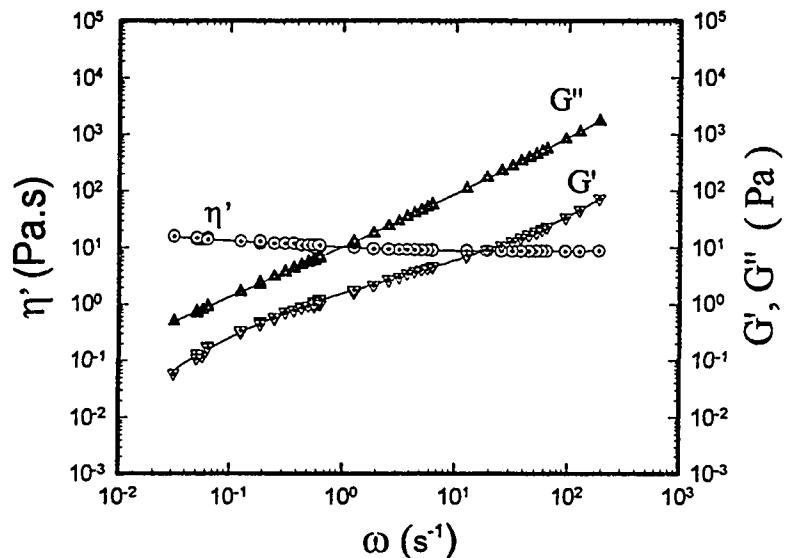


b) Fluide de la goutte,  $D_2$ .

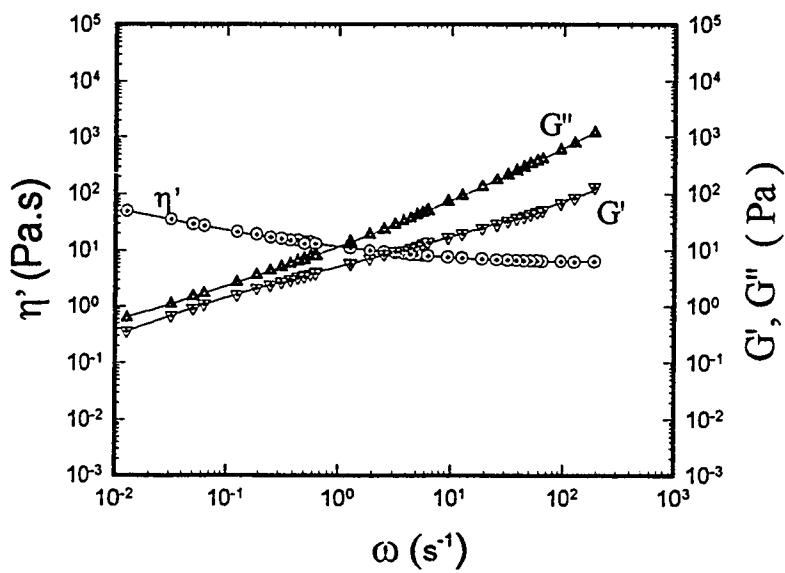
**Figure 2.2:** Courbes de la viscosité dynamique,  $\eta'$ , et des module de stockage et de perte, respectivement  $G'$  et  $G''$  (fluides des gouttes).

c) Fluide de la goutte,  $D_3$ .d) Fluide de la goutte,  $D_4$ .

**Figure 2.2 (suite):** Courbes de la viscosité dynamique,  $\eta'$ , et des module de stockage et de perte, respectivement  $G'$  et  $G''$  (fluides des gouttes).

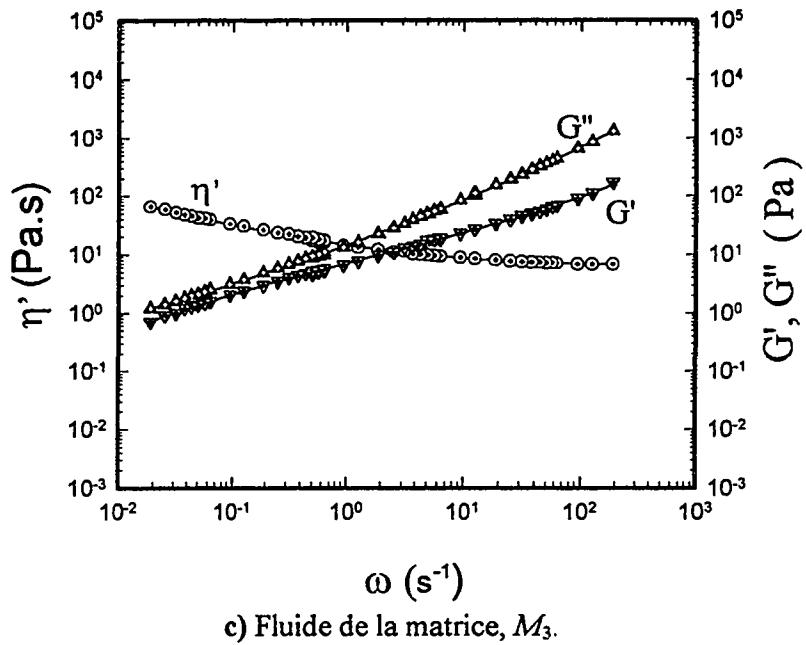


a) Fluide de la matrice,  $M_1$ .



b) Fluide de la matrice,  $M_2$ .

**Figure 2.3:** Courbes de la viscosité dynamique,  $\eta'$ , et des module de stockage et de perte, respectivement  $G'$  et  $G''$  (fluides de la matrice).



**Figure 2.3 (suite):** Courbes de la viscosité dynamique,  $\eta'$ , et des module de stockage et de perte, respectivement  $G'$  et  $G''$  (fluides de la matrice).

## 2.2 Présentation des montages expérimentaux et des procédures d'essais

### 2.2.1 Écoulement élongationnel

L'étude en écoulement élongationnel a été effectuée dans une géométrie de type convergent-divergent. Dans ce type de géométrie, l'écoulement près des parois de la convergence ou de la divergence est dû essentiellement au cisaillement, alors que celui le long de l'axe central est largement élongationnel. Quant à l'écoulement dans la zone intermédiaire, il est formé par un mélange de cisaillement et d'élongation. Le montage expérimental a été conçu pour être opérationnel sur un rhéomètre capillaire de marque Instron. La figure 2.4 montre un schéma simplifié du montage qui se monte au fond du

baril du rhéomètre, exactement de la même manière qu'un capillaire normal. L'écoulement est donc vertical et s'effectue du haut vers le bas. L'usinage du conduit convergent-divergent a été réalisé dans un bloc rectangulaire en acrylique afin d'éliminer le maximum de distorsion optique due aux courbures du cône. Pour améliorer la qualité de l'image, les surfaces intérieures du conduit ainsi que les surfaces extérieures du bloc (à travers lesquelles l'écoulement est visionné) ont été très bien polies à l'aide d'une pâte au diamant. Une calibration a été ensuite effectuée à l'aide d'un élément rigide (bille d'acier), et le rapport entre les dimensions réelles de la bille et les dimensions lues à travers le bloc d'acrylique a servi comme facteur de correction lors du calcul de la déformation des gouttes. Pour des raisons de difficultés expérimentales, l'évolution de la déformation de la goutte le long de l'axe central de la conduite n'a été suivie que dans la partie convergente du montage. En effet, il était impossible de suivre l'évolution de la contraction ou de la rupture de la goutte dès qu'elle sortait de la convergence et rentrait dans la partie divergente. À cause des contraintes trop élevées générées dans cette zone, la goutte déviait de sa trajectoire et il était impossible de tirer des conclusions quant à l'évolution de sa déformation dans la divergence. Les caractéristiques géométriques du conduit convergent sont: (a) le diamètre à l'entrée est de 28 mm, et (b) l'angle de convergence est de 19° sur une longueur de 39 mm, ce qui correspond à un diamètre de sortie de 2 mm.

Le fluide de la matrice est poussé à partir du baril du rhéomètre à l'aide d'un piston, de la même manière que si on effectuait les essais avec un capillaire normal. Les fluides de la goutte sont injectés à l'entrée du convergent (au niveau de l'axe central) à l'aide d'une

micro-seringue comme indiqué à la figure 2.4. Un système d'injection pas à pas installé sur la micro-seringue permet d'obtenir des gouttelettes de différentes grosseurs (*0.4 - 1.5 mm* de diamètre). Une fois la goutte est injectée et la seringue retirée de la trajectoire de l'écoulement, on laisse la goutte se relaxer pendant environ *5 min*, le temps qu'elle prenne sa forme sphérique de départ. Nous signalons que, si le piston du rhéomètre est maintenu en arrêt, il n'y a pas d'écoulement du fluide de la matrice dû à la force de gravité. En plus, la goutte ne monte pas de beaucoup dans la matrice à cause de la faible différence de densité entre les fluides de la matrice et celui de la goutte. Cette différence de densité est donc jugée trop faible pour affecter la dynamique de l'écoulement. Lors de l'écoulement de la matrice, la déformation de la goutte injectée est enregistrée au fur et à mesure que la goutte avance le long de l'axe central du convergent. À cet effet, un système de caméra-vidéo muni d'un système optique de grossissement a été mis en place. La caméra principale se déplace verticalement sur des rails, et suit le déplacement de la goutte durant son passage dans le convergent. Une seconde caméra fixe est dirigée vers un compteur électronique qui permet de donner en temps réel la position exacte de la goutte le long de l'axe de l'écoulement. Le temps est mesuré à l'aide d'un compteur digital dont la précision est de *1/30 s*. Un montage spécial a été mis en place pour enregistrer sur le même ruban magnétique la forme de la goutte, sa position dans le convergent, ainsi que le temps écoulé depuis l'instant où elle rentre dans le convergent. L'enregistrement sur cassette vidéo est ensuite analysé séparément à l'aide d'un logiciel de traitement de l'image (Image Pros).

### 2.2.2 Écoulement en cisaillement

L'écoulement en cisaillement a été généré entre deux plaques parallèles concentriques en acrylique (bien polies à l'aide d'une pâte au diamant), fabriquées spécialement pour être installées sur un rhéogoniomètre Weissenberg. La plaque supérieure est fixe, alors que la vitesse de rotation de la plaque inférieure est imposée par le rhéogoniomètre. Le diamètre des deux plaques est de *60 mm*, alors que l'entrefer entre les deux plaques a été fixé à *2.5 mm*. La figure 2.5 montre un schéma simplifié de la partie utile du montage qui ne nécessite pas de changements majeurs au niveau du rhéogoniomètre. En effet, le système de fixation sur le rhéogoniomètre est exactement le même que celui déjà utilisé pour fixer les plateaux normaux à plaques parallèles ou à cône et plaque. Une fois le système installé, le fluide de la matrice est ensuite rempli entre les deux plaques. Les fluides de la goutte sont ensuite injectés dans la matrice à l'aide d'une seringue, comme indiqué à la figure 2.5. De la même façon qu'en écoulement élongationnel, une fois la goutte est injectée et la seringue retirée, on laisse la goutte se relaxer pendant environ *5 min*, le temps qu'elle prenne sa forme sphérique de départ. Pour s'assurer que le diamètre de la goutte ne dépasse pas *0.8 mm*, on soumet la goutte à un taux de cisaillement élevé pour la briser et ne garder que la goutte qui convient le mieux (diamètre entre *0.4 à 0.8 mm* de diamètre). Les autres gouttelettes sont aspirées à l'aide d'une seringue. Connaissant la vitesse de rotation du plateau inférieur et la position de la goutte par rapport à l'axe de rotation, le taux de cisaillement au niveau de la goutte est donné par la relation suivante:

$$\dot{\gamma} = \Omega \frac{r}{h} \quad (2.6)$$

où  $\Omega$  est la vitesse angulaire du plateau inférieur,  $r$  la distance de la goutte par rapport à l'axe de rotation, et  $h$  l'entrefer entre les deux plateaux.

Comme dans le cas de l'écoulement élongationnel, la déformation de la goutte est enregistrée à l'aide d'un système de caméra-vidéo muni d'un système optique de grossissement. La caméra fixe un miroir placé juste en dessous du plateau inférieur, sur lequel on voit la goutte entraînée de se déformer. Le temps de déformation est mesuré à l'aide du même type de chronomètre utilisé sur le premier montage. L'enregistrement sur ruban magnétique est ensuite analysé séparément à l'aide d'un logiciel de traitement de l'image (Visilog). D'autres détails techniques sur la procédure d'essais sont montrés dans le chapitre IV.

### 2.3 Présentation et discussion des résultats obtenus pour les deux types d'écoulements

Nos travaux ont permis de tirer des conclusions importantes quant au rôle joué par l'élasticité sur le comportement de gouttes dans une matrice en écoulement. La contribution de l'élasticité sur la déformation et la rupture des gouttes a été mesurée en comparant les résultats obtenus pour des systèmes de fluides élastiques avec ceux obtenus pour des systèmes newtoniens possédant la même tension interfaciale et le même rapport de viscosité. Dans le cas de l'écoulement élongationnel, on a démontré que l'élasticité de la goutte ainsi que celle de la matrice avaient un effet inverse sur la déformation de la goutte. L'élasticité de la matrice aidait la goutte à se déformer davantage, alors que

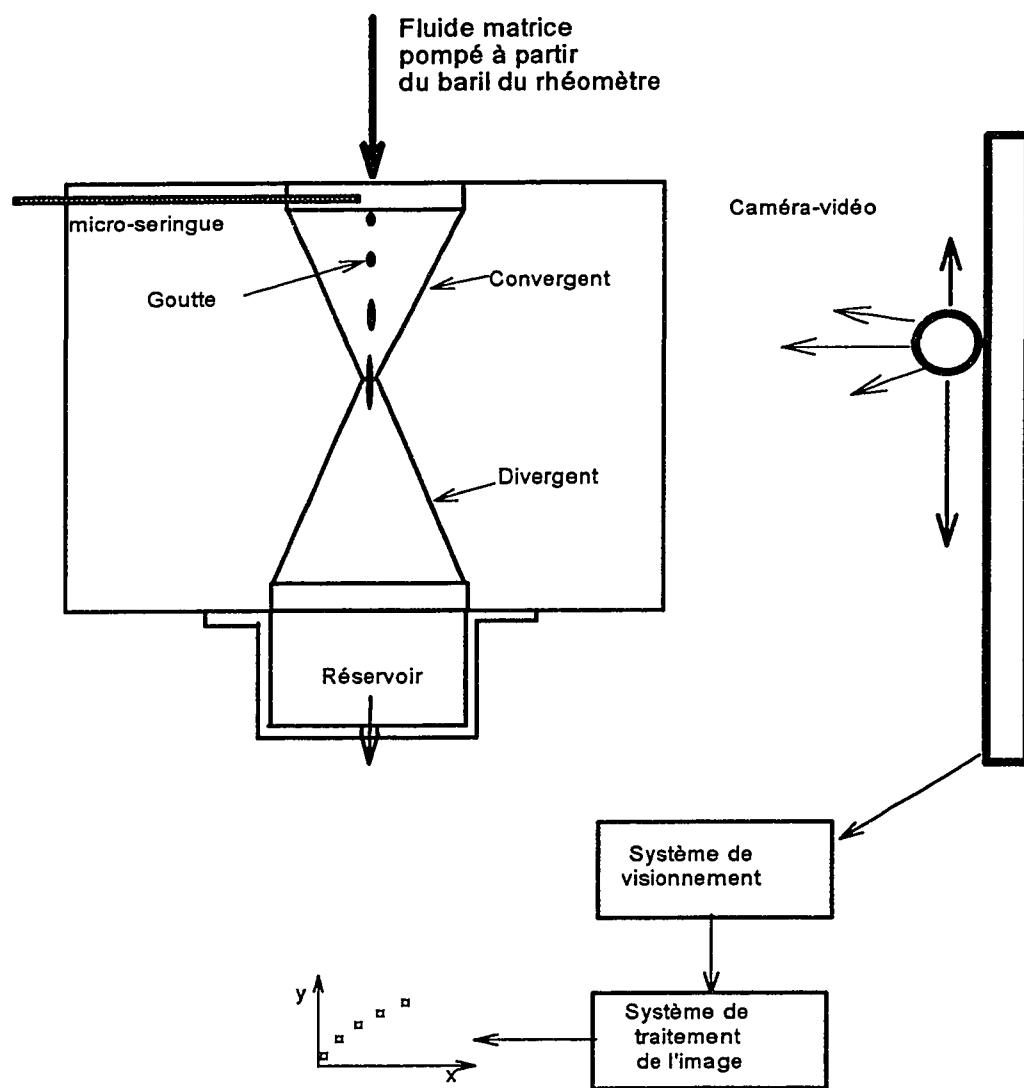
l'élasticité de la goutte résistait à sa déformation et la rendait de plus en plus rigide. Nos travaux ont aussi montré que, pour un rapport d'élasticité goutte/matrice inférieur à 0.2, l'élasticité de la matrice avait plus de contrôle sur la déformation de la goutte, alors que l'effet de l'élasticité de la goutte était nettement dominant pour des rapports d'élasticité supérieurs à 0.2. Une relation empirique reliant la déformation de la matrice avec celle de la goutte a été développée. Cette relation, qui représentait une contribution originale de ce travail, a permis de quantifier la contribution de l'élasticité des deux phases (matrice/goutte) dans la déformation de la goutte.

Quant aux résultats obtenus en cisaillement, on a aboutit quasiment aux mêmes conclusions quant à l'effet de l'élasticité sur la déformation des gouttes. Le montage expérimental conçu a permis d'aller jusqu'à la rupture de la goutte, et d'étudier ainsi l'effet de l'élasticité sur les mécanismes de rupture. Une relation empirique entre le nombre capillaire critique (rapport entre les forces visqueuses et les forces interfaciales au moment du bris) et le rapport d'élasticité goutte/matrice a été développée. On a pu démontrer que le nombre capillaire critique augmente avec l'augmentation du rapport d'élasticité, et atteint une valeur maximale d'environ 1.75 pour des rapports d'élasticité supérieurs à 4. Cette valeur représente la contribution maximale de l'élasticité dans le nombre capillaire critique. On a également observé que le temps nécessaire pour briser la goutte sous cisaillement critique augmente avec l'augmentation du rapport d'élasticité. Pour des faibles rapports d'élasticité goutte/matrice, il n'y a pas de déviation remarquable du comportement des systèmes élastiques par rapport à celui des systèmes newtoniens,

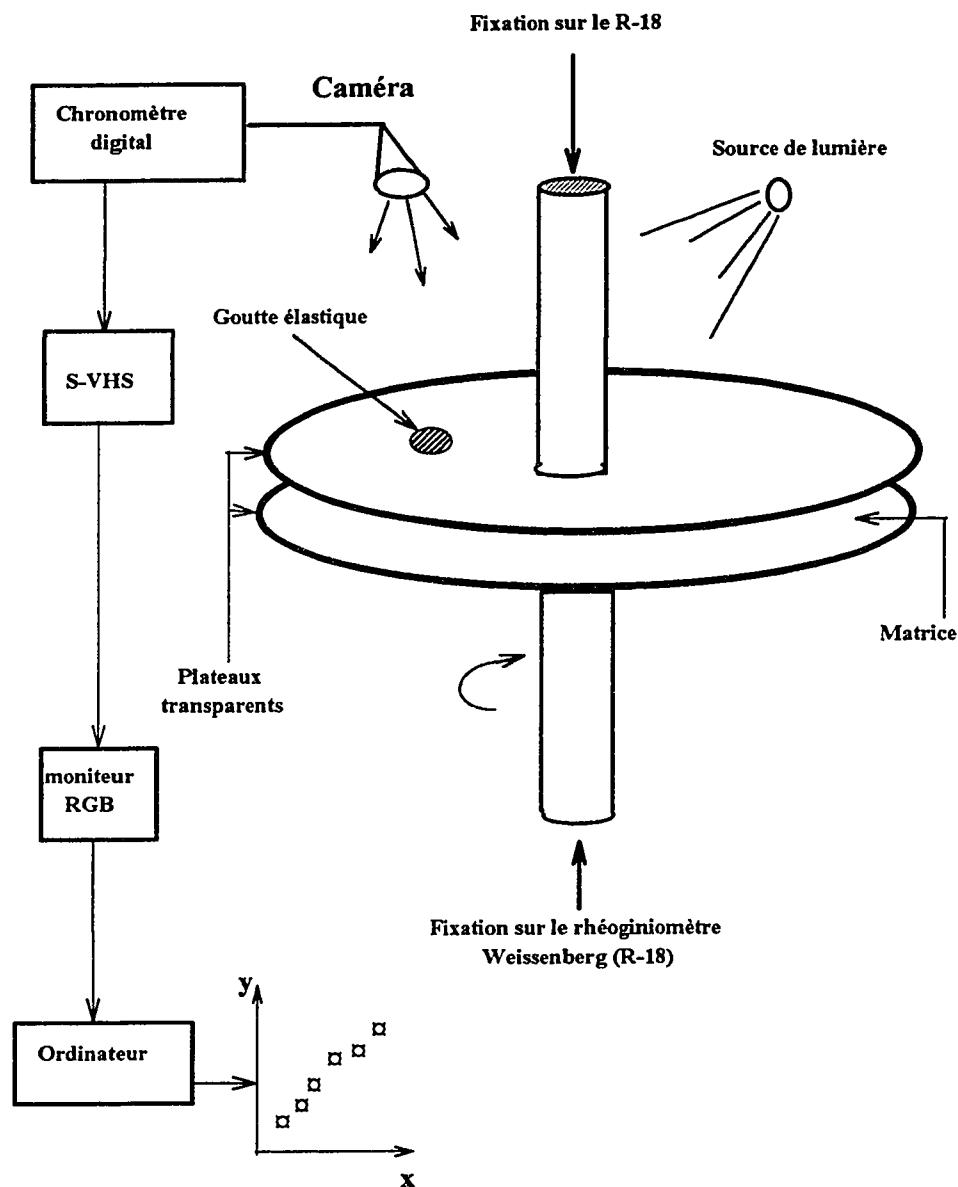
possédant le même rapport de viscosité et la même tension interfaciale.

La figure 2.6 compare deux résultats typiques de déformation de gouttes sous cisaillement critique avec ceux déjà obtenus en écoulement élongationnel. Ces résultats correspondent aux combinaisons newtonienne et élastique, respectivement  $M_N/D_N$  et  $M_1/D_2$ . On signale que seules les données de déformation sous cisaillement critique ont été disponibles pour comparer la déformabilité de gouttes dans les deux cas d'écoulement. En effet, il a été vérifié que la grandeur de la vitesse élongationnelle n'affecte pas la déformation des gouttes, qui est plutôt reliée à la déformation totale de la matrice. Les résultats de la figure 2.6 montrent que, pour la même déformation totale de la matrice, la déformation de la goutte est plus élevée en élongation qu'en cisaillement. Ces résultats sont en accord avec ceux de la littérature (Rumsheidt et Mason, 1961; Grace, 1982; Luciani, 1993).

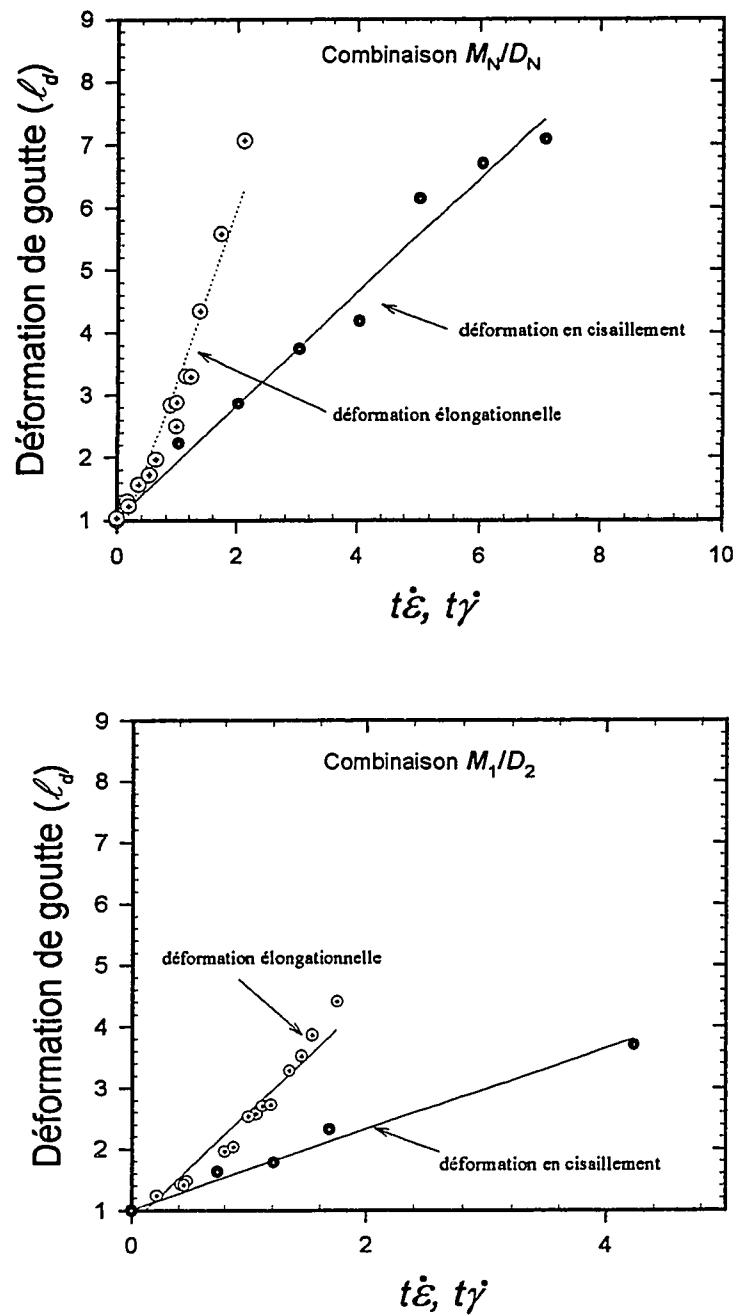
La phase finale de ce travail consistait à adapter une méthode de simulation en deux dimensions qui utilise la technique des éléments finis pour simuler la déformation de gouttes élastiques dans une matrice élastique en écoulement élongationnel à travers un conduit convergent. Le modèle d'Oldroyd-B a été utilisé dans le code de calcul pour décrire le comportement viscoélastique de la goutte et celui de la matrice. Malgré la limitation de ce code aux cas d'écoulements bidimensionnels, les résultats de simulation semblent être acceptables comparativement aux résultats expérimentaux qui ont été obtenus pour un écoulement convergent axisymétrique. Les résultats de simulation prédisent d'une manière quasi-quantitative les effets de l'élasticité sur la déformation de la goutte.



**Figure 2.4:** Schéma du montage expérimental utilisé pour générer l'écoulement élongationnel.



**Figure 2.5:** Schéma du montage expérimental utilisé pour générer l'écoulement en cisaillement.



**Figure 2.6:** Comparaison entre la déformation élongationnelle et celle en cisaillement, présentées en fonction de  $t\dot{\varepsilon}$  et  $t\dot{\gamma}$ , respectivement les déformations élongationnelles et en cisaillement de la matrice:  
(combinaisons:  $M_N/D_N$  et  $M_1/D_2$ )

## CHAPITRE III

### INFLUENCE DES PROPRIÉTÉS ÉLASTIQUES SUR LA DÉFORMATION DE GOUTTES EN ÉCOULEMENT ÉLONGATIONNEL

On présente dans cet article les résultats d'une étude expérimentale qui met en évidence la contribution de l'élasticité dans la déformation d'une goutte dans une matrice en écoulement élongationnel. Les fluides modèles de type Boger utilisés, leur composition, ainsi que leur comportement rhéologique sont présentés en détail dans ce travail. On y présente également la technique expérimentale pour générer l'écoulement élongationnel et permettre le suivi en temps réel de la goutte au cours de sa déformation.

Les travaux effectués montrent que l'élasticité de la goutte ainsi que celle de la matrice ont un effet inverse sur la déformation de la goutte. L'élasticité de la matrice aide la goutte à se déformer d'avantage, alors que l'élasticité de la goutte résiste à la déformation et la rend de plus en plus rigide. Une relation empirique reliant les déformations de la matrice et de la goutte a été développée. Cette relation quantifie la contribution de l'élasticité de la goutte ainsi que celle de la matrice dans la déformation de la goutte.

## INFLUENCE OF ELASTIC PROPERTIES ON DROP DEFORMATION IN ELONGATIONAL FLOW

BY

**F. Mighri, A. Ajji\*\* and P. J. Carreau**

Centre de Recherche Appliquée sur les Polymères, CRASP;  
Ecole Polytechnique of Montreal, C. P. 6079, Stn. Centre-Ville,  
Montreal, QC, H3C 3A7 Canada

\*\* Industrial Materials Institute, National Research Council Canada  
75 Bd. de Mortagne, Boucherville, QC, J4B 6Y4 Canada

### Synopsis

We report experimental results on the deformation of a single drop suspended in a medium under uniaxial elongational flow along the central axis of a converging conical channel made of Plexiglas. Both the drop and the continuous phases consist of constant viscosity elastic fluids, so-called Boger fluids. This study reveals several interesting features about the role played by both the drop and matrix elasticities on the drop deformability. In a given matrix fluid, the drop deformation decreases as its elasticity increases. For a given drop fluid, the matrix elasticity has the opposite effect: the drop deformation increases with increasing the matrix elasticity. An empirical relation between the drop and matrix deformations is established as a function of the drop and matrix characteristic elastic times.

### 3.1 INTRODUCTION

Blending of molten polymers is a versatile and economically viable method of manufacturing new materials with a wide range of properties. The most important elementary step during the blending process is the deformation and breakup of single polymer drops of the dispersed phase into the matrix phase polymer. In a polymer mixer, complex flow fields involving shear and elongation are generally present. A fundamental understanding of the deformation and breakup mechanisms of isolated polymer drops under the above two well-defined flow fields will lead to better design and control of the equipment.

Most of the previous work reported in the literature on drop behavior focused on Newtonian fluid mixtures, restricted to small deformations. This is far from reality, considering that polymer blends are viscoelastic and that large deformations are encountered during the blending operation. Systems of fluids exhibiting non-Newtonian behavior, characterized by nonlinear stress-strain relationships and elasticity, were less studied for reasons of complexity. In polymer-polymer systems, the mechanism of drop deformation differs from that of Newtonian systems. The dispersed drops are subjected to both viscous forces, which tend to deform the drop, and resisting forces arising from interfacial forces and fluid elasticity, which have a stabilizing effect during deformation (Van Oene, 1972; Flumerfelt, 1972; Wu, 1987). Authors who studied viscoelastic systems used fluids (generally, polymeric melts), which are not only elastic but also shear thinning. The influence of shear thinning in the absence of any elasticity has not been investigated,

while the influence of elasticity in the absence of any shear thinning is never obvious from either a theoretical or experimental point of view. The goal of the present experimental study is to determine the contribution of elasticity to drop deformability in elongational flow by using constant viscosity elastic fluids. These fluids, so-called Boger fluids (Boger and Binnington, 1977), exhibit an elastic response, e.g., normal stresses in shear flow, but have approximately shear-independent viscosity. Such properties make it possible to assess the effect of elasticity in a flow field without considering complications associated with shear thinning.

### **3.2 EXPERIMENTAL STUDIES ON DROP DEFORMATION IN ELONGATIONAL FLOW**

A number of researchers have carried out many experimental studies on drop deformation in elongational flow fields. It has been proven that drop deformation and breakup occur much more easily in elongational fields than in shear fields (Wu, 1987; Chin and Han 1979; Bentley and Leal, 1986). Taylor (1934) was the first to use a four-roll mill apparatus to study the deformation and breakup of Newtonian drops in a two-dimensional elongational flow. The same problem was studied by Bentley and Leal (1986) using a computer-controlled four-roll mill, which allows experiments of long duration. They measured steady drop shapes and the unsteady stretching of drops. Han and Funatsu (1978) conducted an experimental investigation on viscoelastic drop elongation and breakup through converging and uniform cross-section transparent channels. They found

that viscoelastic drops are more stable than the Newtonian ones in both Newtonian and viscoelastic media, and required higher shear stresses for breakup. Milliken and Leal (1991) studied the behavior of viscoelastic drops in a Newtonian matrix under two-dimensional elongational flows. They found that viscoelastic drops with viscosity ratios  $k < 1$  ( $k = \eta_{drop}/\eta_{matrix}$ ) have a significantly smaller deformation and critical capillary number than Newtonian drops. However, for viscoelastic drops with viscosity ratios  $k > 1$ , the deformation is similar to that of Newtonian drops. In particular, they found that low viscosity viscoelastic drops do not display the highly deformed steady drop shapes, characteristic of low viscosity Newtonian drops. Recently, Delaby et al. (1994) used a new technique based on the freezing of the viscoelastic drops by quenching after a controlled flow in the melt. For a negligible interfacial tension, they also found that the drops deform less than the far away surrounding matrix for a viscosity ratio  $k > 1$ , and deform more for  $k < 1$ . Their findings are in contrast with the results of Meijer and Janssen (1993) who found that at small viscosity ratios, the drop deformation in planar elongational flow closely follows that of the matrix. Other experimental studies on drop elongation can be found in the literature (Rumscheidt and Mason, 1961; Kalb et al., 1981; Grace, 1982; Sakellarides and Mchugh, 1986; Van Der Reijden-Stolk and Sara 1986).

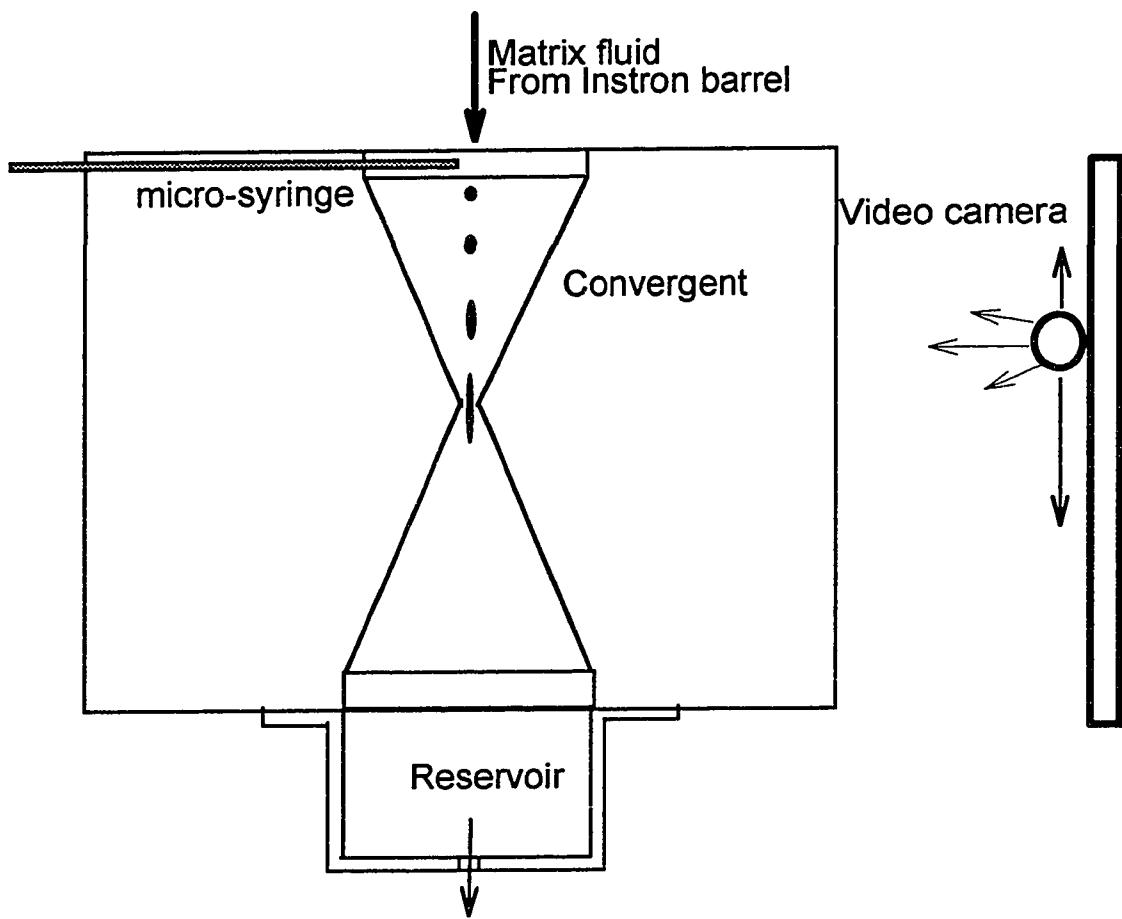
### 3.3 EXPERIMENT

#### 3.3.1 Experimental setup and procedure

A sketch of the experimental setup is depicted in Fig. 3.1. The elongational flow setup

consists of a transparent channel of Plexiglas with a converging and diverging cross-section channel. In order to avoid optical distortion of the drop due to the conical section, the channel was bored out off a large rectangular block of Plexiglas. The setup was mounted at the bottom of the barrel of an Instron capillary rheometer, using the plunger to pump the matrix fluid through the converging channel. In this study, focus was directed to the converging section only, in which the drops were stretched. The upper cone diameter was 28 mm with a convergence angle of 19° over a length of 39 mm, which corresponds to an exit diameter of 2mm.

The experiments were carried out at room temperature ( $T \approx 25^\circ C$ ) for different matrix/drop combinations in which the elasticity of both the drops and the matrix fluids were changed. Drops of different sizes (0.4 - 0.9 mm in diameter) were injected at the central axis of the convergent section by means of a microsyringe, as shown in Fig. 3.1. A video system with magnification optics and a digital chronometer was used to record the drop position, its shape, and the traveling time along the central axis of the converging section. The recorded film was then analyzed separately using an image analysis software. The drop images were scanned at different positions along their course and their dimensions were then measured.



**Figure 3.1:** Sketch of the experimental setup.

### 3.3.2 Model fluids and their rheological characterization

The immiscible elastic (Boger) solutions were prepared using a low-speed mixer for a period of five days to ensure thorough dissolution of the polymer. The suspending media or matrices,  $M_i$ , were dilute solutions of small amounts of high molecular weight polyacrylamide, (PAA), ( $2 \times 10^6 \leq M_w \leq 4 \times 10^6 \text{ kg/kmol}$ , *Separan AP30*) in a mixture of maltose syrup,  $MS$ , and distilled water,  $W$ . The specific gravity of the matrix was about 1.15 g/mL. For the dispersed drops,  $D_i$ , small amounts of high molecular weight polyisobutylene,  $PIB$ , ( $1 \times 10^6 \leq M_w \leq 2 \times 10^6 \text{ kg/kmol}$ ) dissolved in kerosene,  $Ker$ , and low molecular weight Newtonian polybutene,  $PB$ , ( $M_w = 920 \text{ kg/kmol}$ ,  $\mu = 24 \text{ Pa.s}$  at  $25^\circ C$ , *Indopol H100*) were used. Their specific gravity was about 0.98 g/mL. The difference in the specific gravity of the matrix and droplets is believed to be too small to affect the flow dynamics. Table 3.1 lists the different fluids and their composition.

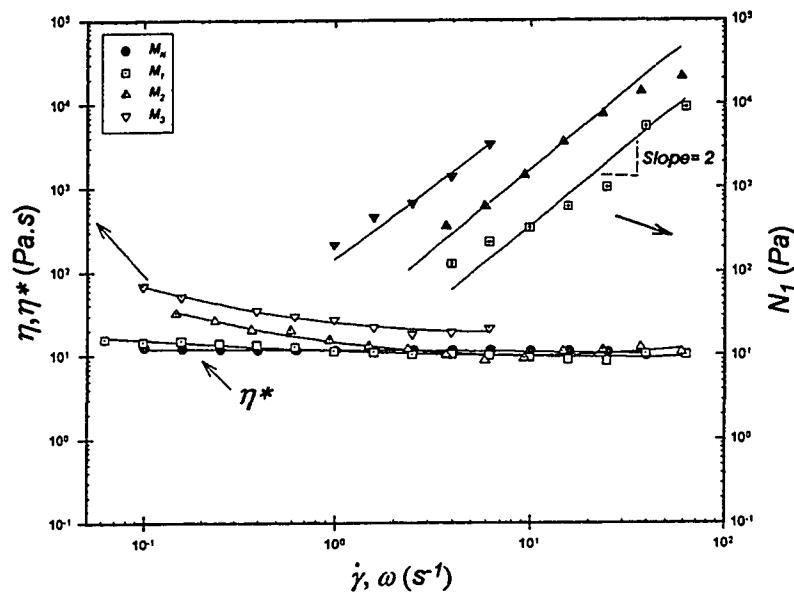
The steady-state shear viscosities,  $\eta$ , and primary normal stresses differences,  $N_1$ , were measured at  $25^\circ C$  using an R-18 Weissenberg rheogoniometer. A thin film of nonvolatile immiscible material (silicone oil) was applied to the free surface of the matrix fluid sample to avoid evaporation. As shown in Figs. 3.2(a) and 3.2(b), the fluids exhibit no significant shear thinning for shear rates up to  $30 \text{ s}^{-1}$ . It should be mentioned that the elongational viscosity does not necessarily behave analogously to the shear viscosity. Nevertheless, only the steady shear viscosity was used due to experimental limitations in measuring the elongational viscosity. Much of the previous work on elongational drop deformations used the steady-state shear viscosity in calculating the viscosity ratio (Milliken and Leal, 1991;

Delaby et al., 1994 and 1995). We believe that, for small elongations, the Trouton ratio is not much different from 3, and the elongational viscosity ratio of the drop and matrix should be approximately the same as the shear viscosity ratio. The viscosity ratio,  $k$ , of the different matrix/drop combinations, as a function of the shear rate is approximately constant. The average values are reported in Table 3.2.

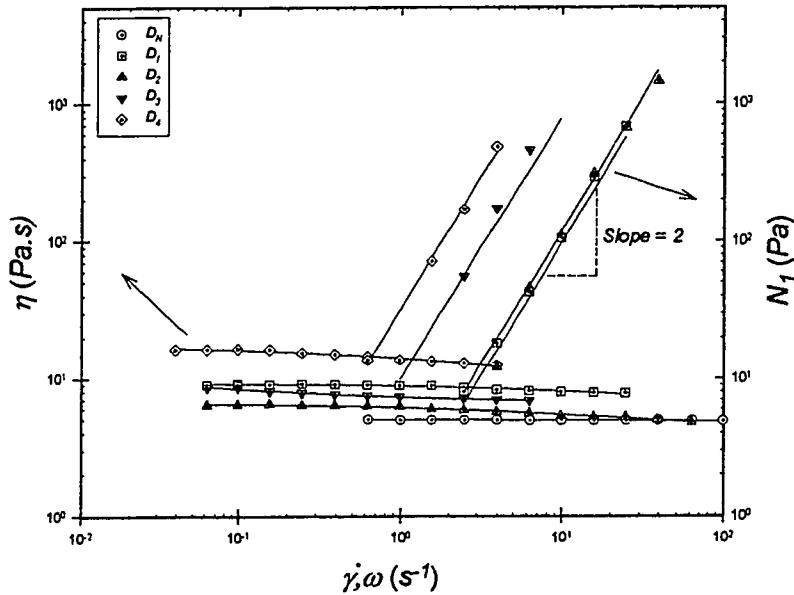
**Table 3.1:** Designation and composition of the elastic fluids used.

	<b>Designation</b>	<b>Formulation <sup>a)</sup></b>
Matrix fluids	$M_N$	0.00% <i>PAA</i> + 92.0% <i>MS</i> + 8.00% <i>W</i> .
	$M_1$	0.03% <i>PAA</i> + 92.0% <i>MS</i> + 7.97% <i>W</i> .
	$M_2$	0.06% <i>PAA</i> + 92.0% <i>MS</i> + 7.94% <i>W</i> .
	$M_3$	0.10% <i>PAA</i> + 92.0% <i>MS</i> + 7.90% <i>W</i> .
Drop fluids	$D_N$	0.000% <i>PIB</i> + 93.0% <i>PB</i> + 7.00% <i>Ker</i> .
	$D_1$	0.244% <i>PIB</i> + 92.8% <i>PB</i> + 6.98% <i>Ker</i> .
	$D_2$	0.600% <i>PIB</i> + 91.0% <i>PB</i> + 8.40% <i>Ker</i> .
	$D_3$	0.800% <i>PIB</i> + 93.0% <i>PB</i> + 6.20% <i>Ker</i> .
	$D_4$	1.200% <i>PIB</i> + 92.0% <i>PB</i> + 6.80% <i>Ker</i> .

<sup>a)</sup> All percentages are in weight.



**Figure 3.2(a):** Viscosity and primary normal stress difference of the elastic matrix fluids (at 25°C).



**Figure 3.2(b):** Viscosity and primary normal stress difference of the elastic drop fluids (at 25°C).

The magnitude of the primary normal stress difference, at any given shear rate, was found to increase with increasing weight fraction of the high molecular weight polyisobutylene for the drop fluids and that of the high molecular weight polyacrylamide for the matrix fluids (Fig. 3.2). The slopes of  $\log(N_1)$  versus  $\log(\dot{\gamma})$  are close to 2. This quadratic behavior is another characteristic of an elastic (Boger) fluid. Figure 3.3 compares the steady-state shear viscosity and the primary normal stress difference of one of the drop fluids (fluid  $D_1$ ) to its dynamic viscosity,  $\eta'$  ( $\approx \eta^*$ ), and storage and loss moduli, respectively,  $G'$  and  $G''$ , obtained at  $25^\circ C$  with a Bohlin VOR rheometer. Both the steady shear and dynamic viscosities are essentially the same, as expected for Boger fluids. The storage modulus,  $G'$ , is closely related to  $N_1$  at low frequency:

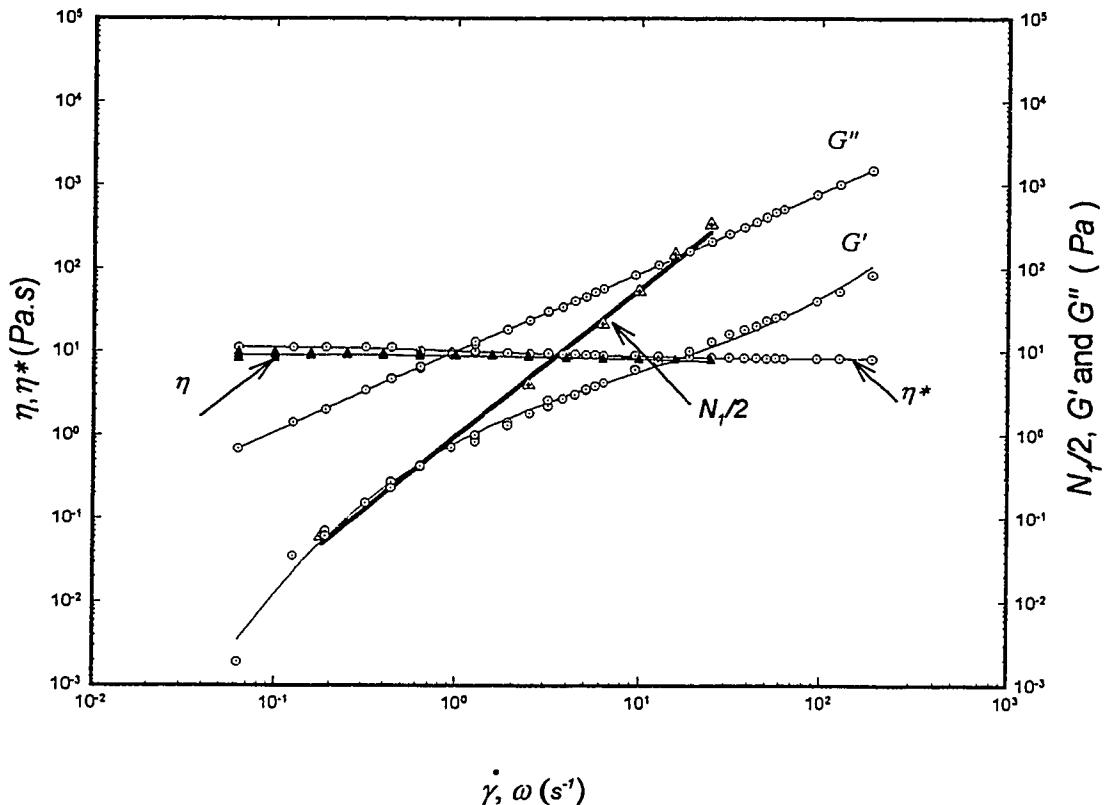
$$\lim_{\omega \rightarrow 0} \frac{G'}{\omega^2} = 1/2 \lim_{\dot{\gamma} \rightarrow 0} \frac{N_1}{\dot{\gamma}^2} \quad (3.1)$$

The fluids elasticity, characterized by the Maxwell relaxation time,  $\lambda$ , can be calculated from  $N_1$  data using the following relation:

$$\lambda = N_1 / 2\eta\dot{\gamma}^2 \quad (3.2)$$

Figure 3.3 shows that, at high shear rates,  $N_1$  is much higher than  $2G'$  as observed in general for polymer solutions and melts. The use of  $2G'$  to approximate the primary normal stress difference,  $N_1$ , underestimates the elasticity effects on the blend behavior for large deformation flows. Jackson et al. (1984) conducted steady and oscillatory shear experiments and concluded that Boger fluids are more elastic in steady shear than in oscillatory shear. The relaxation time calculated from  $G'$  data is then much smaller than

that calculated from  $N_1$  data. For this reason, the relaxation times of the different fluids used were calculated from the steady shear data rather than the oscillatory shear data. They are approximately constant for shear rates up to  $30\text{ s}^{-1}$ , and were used to calculate the elasticity ratio,  $k'$ , defined as the ratio between the drop and matrix relaxation times ( $k' = \lambda_d/\lambda_m$ ). The corresponding values of  $\lambda_d$ ,  $\lambda_m$  and  $k'$  are reported in Table 3.2.



**Figure 3.3:** Dynamic properties for the drop fluid,  $D_1$ , and relation between  $N_1$  and  $G'$  (at  $25^\circ\text{C}$ ).

**Table 3.2:** Fluid systems and corresponding relaxation times, viscosity ratio, elasticity ratio, and interfacial tension.

Matrix fluids ( $M_i$ )	Drop fluids ( $D_i$ )	Relaxation time		Viscosity ratio ( $k$ )	Elasticity ratio ( $k'$ )	Interfacial tension $\alpha$ (mN/m)
		Matrix $\lambda_m(s)$	Drop $\lambda_d(s)$			
$M_1$	$D_N$	---	---	0.50	---	$\approx 22.0$
	$D_N$		---	0.50	0.00	22.5
	$D_1$		0.13	0.75	0.37	23.0
	$D_2$	0.36	0.22	0.52	0.60	19.5
	$D_3$		1.44	0.63	4.00	23.5
$M_2$	$D_4$		2.16	1.10	6.00	20.0
	$D_1$		0.13	0.71	0.15	22.5
	$D_2$	1.00	0.22	0.49	0.22	23.5
	$D_3$		1.44	0.60	1.15	22.5
$M_3$	$D_4$		2.16	1.05	1.70	21.0
	$D_1$		0.13	0.45	0.03	27.5
	$D_2$	4.00	0.22	0.28	0.07	25.0
	$D_3$		1.44	0.36	0.30	24.0
	$D_4$		2.16	0.68	0.47	27.0

The interfacial tensions,  $\alpha$ , between the drop and matrix phases were determined by using the spinning drop technique (Elmendorp and De Vos, 1986). For each drop/matrix system, three measurements were made and the average values are also reported in Table 3.2. It should be mentioned that no significant variation in the interfacial tension (within the accuracy of the measurements) was found if the drop fluid is changed in a given matrix fluid. Only a marginal effect was observed with the matrix fluid  $M_1$ . The values are approximately constant at about 22 mN/m for  $M_1/D_i$  and  $M_2/D_i$ , and 25 mN/m for  $M_3/D_i$ .

Our results are in agreement with those obtained by Shanker et al. (1996) who found that the incorporation of small amounts of high molecular weight polyisobutylene for introducing elasticity in an otherwise Newtonian polybutene solvent has only a marginal effect on the interfacial tension.

### 3.4 EXPERIMENTAL RESULTS AND DISCUSSION

The first step of this experimental work was the measurement of the centerline velocity,  $V_z$ , in the converging channel of the Newtonian matrix fluid,  $M_N$ , and the three elastic matrix fluids,  $M_1$ ,  $M_2$  and  $M_3$ . The following technique was used: first, the position,  $z$ , of the top surface of a very small drop (0.4 mm in diameter) injected at the entrance of the cone was recorded as a function of its traveling time,  $t$ , along the cone axis. This information was used to calculate the matrix fluid centerline velocity  $V_z = \Delta z / \Delta t$ . Since the drop is very small, we assume that the matrix velocity profile at the trailing edge of the drop is not influenced by the presence of the drop itself. The centerline velocity is then used to calculate the matrix elongational strain rate  $\dot{\epsilon}(z) = \Delta V_z / \Delta z$ . Figures 3.4(a) and 3.4(b) show the variation of  $V_z$  and  $\dot{\epsilon}(z)$  for the four matrix fluids as a function of the axial position along the cone axis for a matrix flow rate of  $28 \text{ mm}^3 / \text{s}$ . The dimensionless axial position with respect to the length,  $Z_0$ , of the converging channel is used, and the centerline velocity is normalized with respect to the average velocity,  $V$ , at the entrance of the cone given by

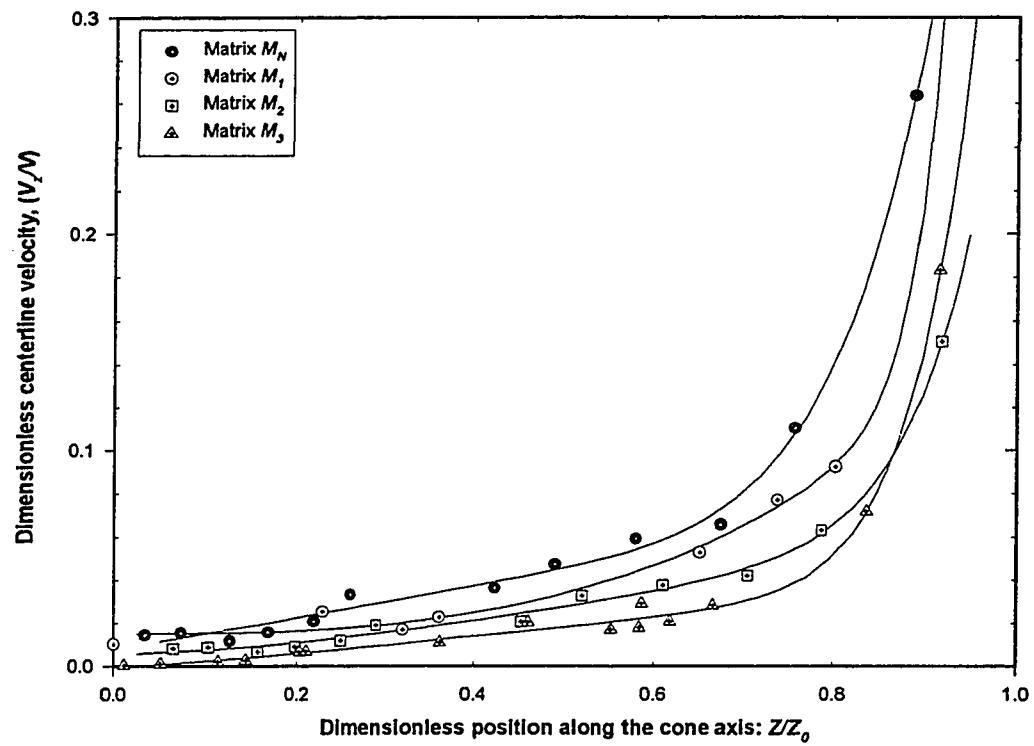
$$V = \frac{4Q}{\pi D_0^2} \quad (3.3)$$

where  $Q$  is the matrix flow rate and  $D_0$  is the initial cone diameter. Figures 3.4(a) and 3.4(b) show approximately linear increases of the centerline velocity and extensional strain rate in the first 70% of the converging section, followed by exponential increases near the end of the converging section. In all cases, the centerline velocity and elongational rate profiles of the elastic fluids are below the profiles of the Newtonian fluid. James et al. (1990) observed the same phenomenon for a constant viscosity elastic fluid (a solution of a copolymer of *PMMA* in an organic solvent). They explained that the differences between the profiles depend directly on the normal stresses in the extension generated in the elastic fluids. The velocity profile of elastic fluids across each section of the converging flow is flatter than that of Newtonian fluids of the same viscosity. At a given flow rate, the velocity or elongational strain rate at the cone axis is then lower than that of a Newtonian fluid. Using a generalized Maxwell model, Philippe (1981) numerically calculated the velocity profile of viscoelastic fluids through a converging channel. His numerical results show also that the centerline velocity decreases with increasing fluid elasticity.

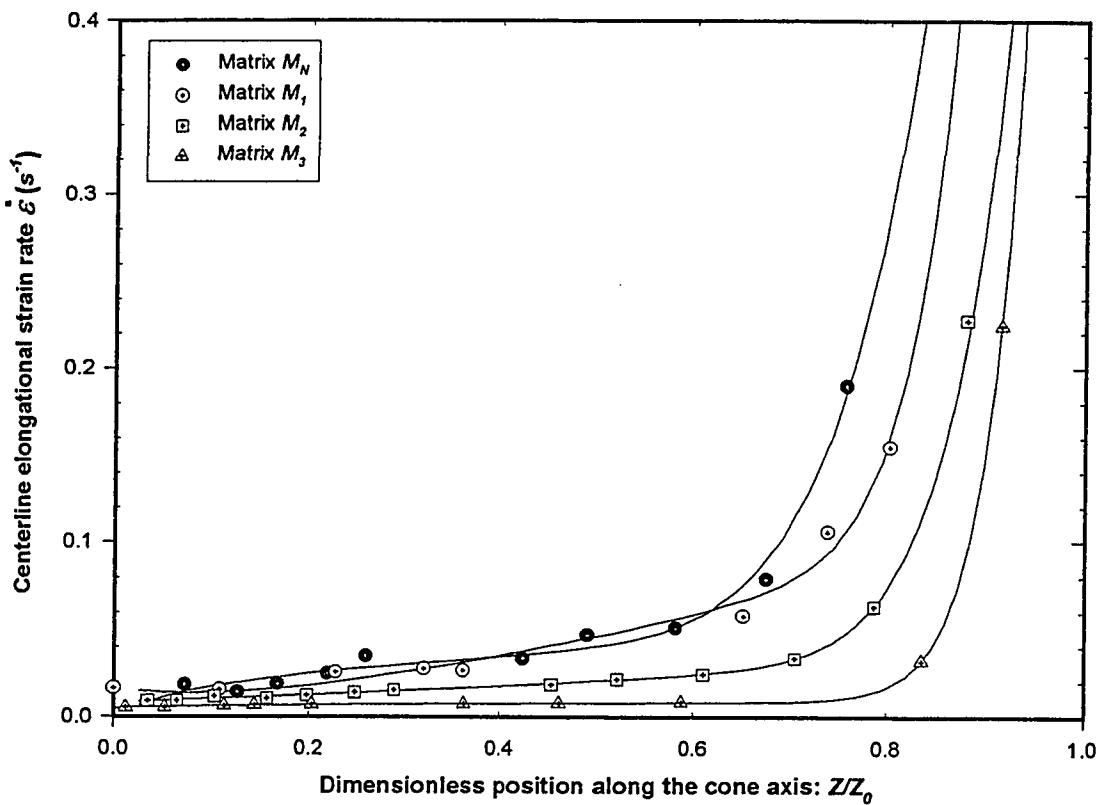
Two approximations are used concerning the flow field: (i) The flow field is considered to be unbounded and the cone wall has no effects on the drop deformation. This assumption is justified since the ratio of the initial drop diameter to the upper cone radius is very small ( $D_{drop}/D_{cone} \ll 1$ ), and the drop remains far away from the cone during its deformation. (ii) The elongational strain rate over the length of the drop is supposed to be constant and equal to the value at the center of the drop (Van Der Reijden-Stolk and Sara, 1986). This

assumption is valid for the first 70% of the converging section. Each measurement of the drop deformation will then be related to the position of the center of the drop. In the last portion of the cone, no measurements of drop deformation were carried out. The assumption that the small difference in the specific gravity of the matrix and drops has no influence on the flow dynamics was verified experimentally by stopping the plunger of the rheometer. No subsequent motion of the drops could be detected.

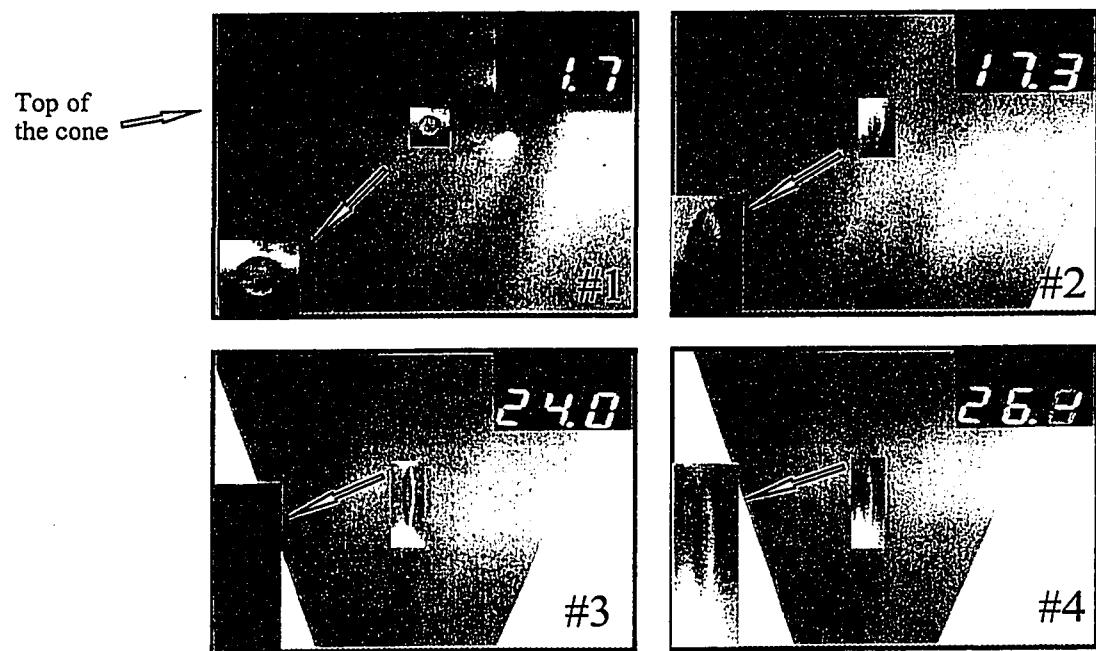
Figures 3.5(a) and 3.5(b) show typical pictures of two different elastic drops with initial diameters of  $0.80\text{ mm}$  and  $1.2\text{ mm}$ , respectively, undergoing elongation at different positions along the cone axis. The drop shape is magnified on each picture in order to get a clear contour of the drop. The numerical values in the right-top corner of each picture correspond to the position of the moving camera, which is used to calculate the exact position of the drop. The drop, initially of spherical shape when injected at the entrance of the cone, is stretched progressively as it proceeds further into the conical section. Figure 3.5(a) shows that the deformation of the smaller drop remains approximately uniform. In the case of the larger drop, Fig. 3.5(b) shows that the drop remains axisymmetric, but the deformation is nonuniform along the drop. This drop is then stretched more at its front than at its top, mainly when it approaches the end of the cone. Milliken and Leal (1991) explained the cusp formation at the front of the drop by the presence of the polymer inside the drop, which may act as a surfactant. The polymer is swept towards the end of the drop during deformation and then lowers the interfacial tension. However, their observations concern mainly highly concentrated polymer solutions, which are viscoelastic materials.



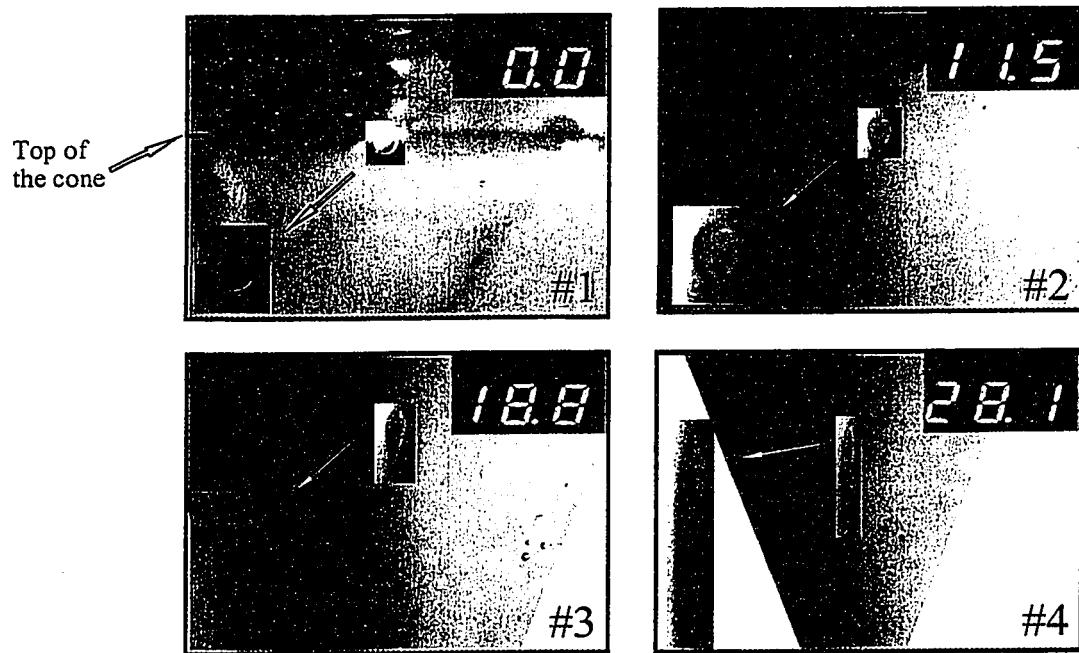
**Figure 3.4(a):** Dimensionless centerline velocity along the cone axis for the matrix flow rate of  $28 \text{ mm}^3/\text{s}$



**Figure 3.4(b):** Elongational centerline strain rate along the cone axis for the matrix flow rate of  $28 \text{ mm}^3/\text{s}$



**Figure 3.5(a):** Typical pictures of an elastic drop at different positions along the cone axis (drop of 0.8 mm in initial diameter).



**Figure 3.5(b):** Typical pictures of an elastic drop at different positions along the cone axis (drop of 1.2 mm in initial diameter).

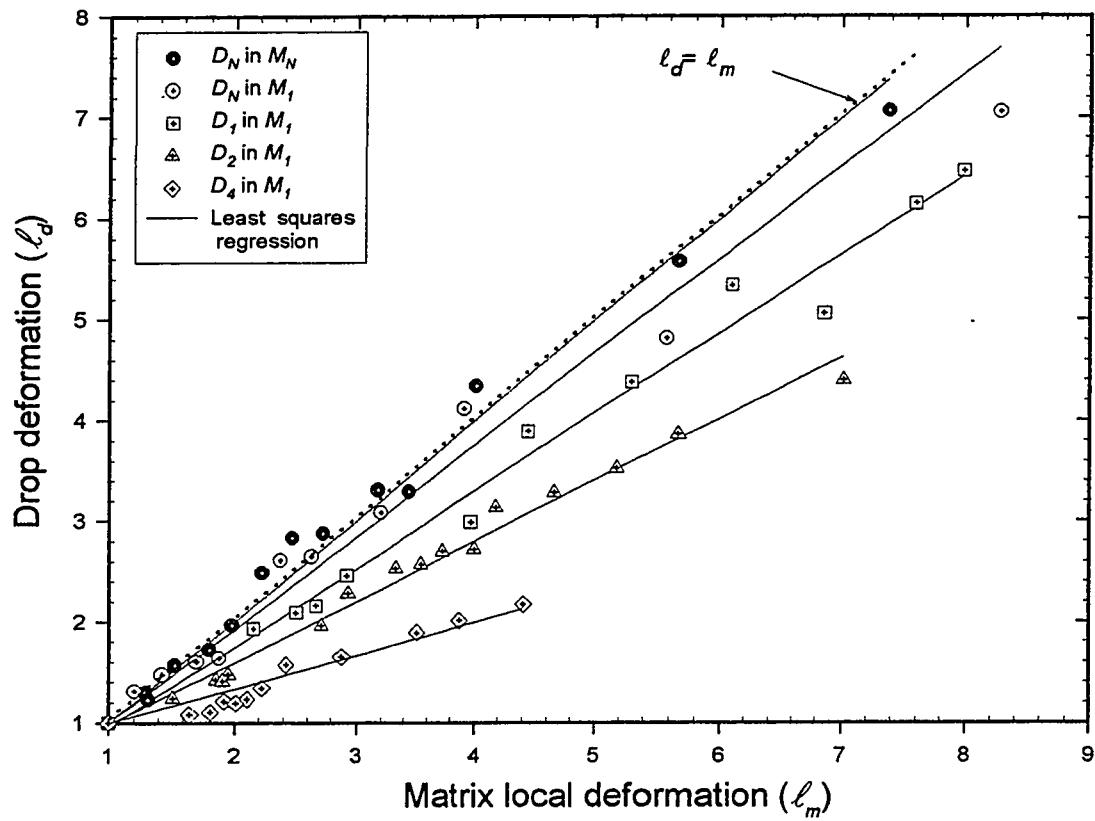
They presented a series of photographs for the particular case of an elastic drop fluid (413 ppm of high molecular weight polyacrylamide, *PAA*, in 6.7% by weight of low molecular weight carboxymethyl cellulose, *CMC*, in deionized water), which clearly show highly curved ends. We believe that the asymmetric deformation in Fig. 3.5(b) is mainly due to the variation of the elongational strain rate between the top and at the front of the drop rather than for the reason given by Milliken and Leal. This variation in the elongational strain rate is much more important at the end of the conical section, especially for the large drop. For typical data corresponding to a large drop (Picture No. 4 in Fig. 3.5(b)), the matrix elongational strain rates at the top and the front of the deformed drop are  $10^2 \text{ s}^{-1}$  and  $2.4 \times 10^{-2} \text{ s}^{-1}$ , respectively. Such a variation of over 100 % is no longer negligible. For the data presented here, we restrict the analysis to drops for which the variation in elongational strain rate between the top and the front does not exceed 10 %.

In order to know how the variation of the drop elasticity affects its deformability in a given matrix fluid, a series of tests were carried out using one matrix fluid ( $M_1$ ), one Newtonian drop fluid ( $D_N$ ), and four elastic drop fluids ( $D_1 - D_4$ ). For the Newtonian drop, the viscosity ratio and the interfacial tension were approximately the same as for the elastic drops. Because of the large strains involved during drop and matrix elongation, the Hencky strain,  $\varepsilon$ , was used for the matrix strain measure and the corresponding stretch ratio is,  $\ell_m = e^{\varepsilon_m}$ . The aspect ratio,  $\ell_d = L/D$ , was used as the measure of drop elongation because it is a sensitive measure for highly elongated drops (Milliken and Leal,

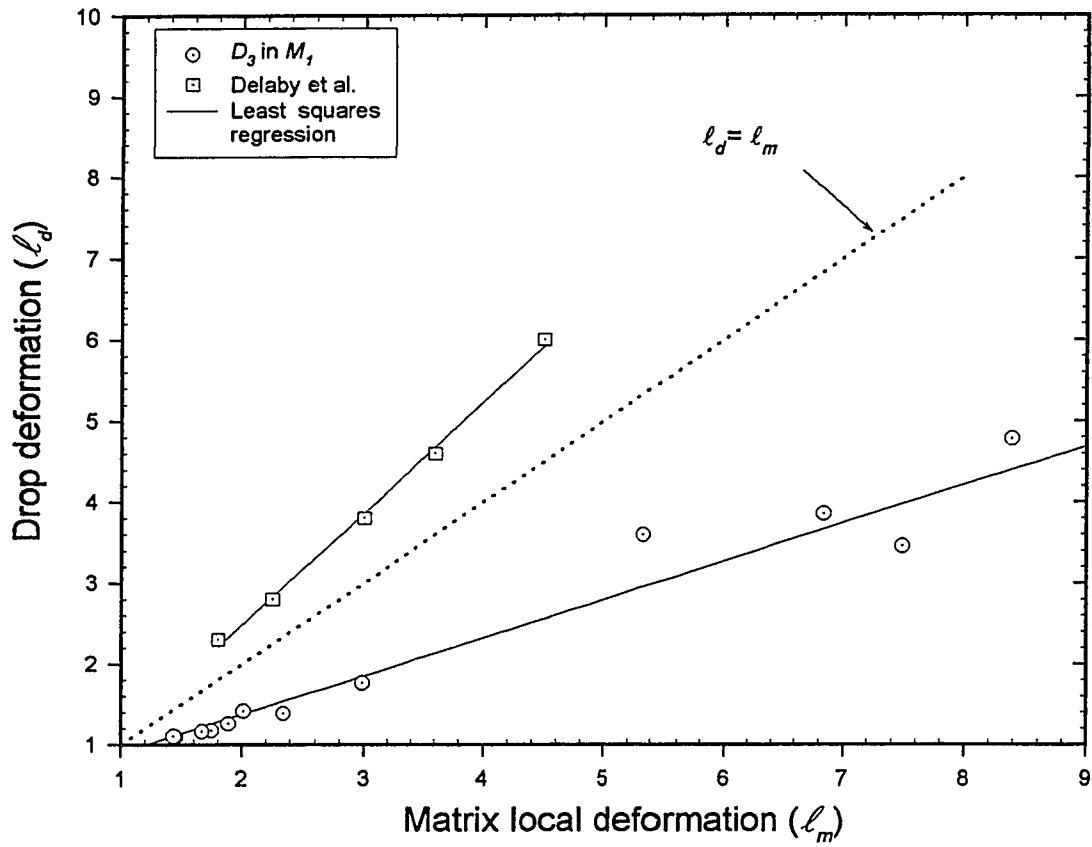
1991).  $L$  is the major axis of the deformed drop and  $D$  is its initial diameter. Some of the experimental results for the drop elongation as a function of the matrix deformation are shown in Fig. 3.6. They were obtained for initial drop diameters of 0.5 - 0.9 mm and each curve corresponds to at least three different initial drop sizes. No significant effects of the initial drop size on its deformation were observed. This is in concordance with the results of Van Der Reijden-Stolk and Sara (1986) using Newtonian systems. It is worth noting that the drop deformation is approximately a linear function of that of the matrix for all the sets of fluids tested. The Newtonian drop,  $D_N$ , deforms approximately as much as the matrix,  $M_I$ . One would expect a larger drop deformation for a viscosity ratio equal to 0.5 (Delaby et al., 1994). In our case, the high interfacial stresses due to a higher value of the interfacial tension ( $\alpha = 22.5 \text{ mN/m}$ ) oppose more resistance to the viscous and elastic stresses of the matrix, yielding smaller drop elongations. All the elastic drops are less deformed than the surrounding matrix inspite their viscosity ratio generally smaller than 1 (only the drop  $D_4$  is more viscous than the matrix, with  $k = 1.10$ ). In addition to the viscous stresses, two other key stresses could affect the drop deformation: the elastic and the interfacial stresses. As shown in Table 3.2, drops  $D_1$  and  $D_2$  are less elastic than the matrix  $M_I$  ( $k' = 0.37$  and  $0.60$ , respectively), whereas drop  $D_4$  is more elastic ( $k' = 6.0$ ). The more elastic the drop is (i.e., larger resisting stresses), the less it is deformed. The deformation for the Newtonian combination ( $D_N$  in  $M_N$ ) is shown in Fig. 3.6 for a comparison. All elastic drops deform less than the Newtonian drop in the Newtonian matrix. The Newtonian drop has approximately the same deformation in the elastic matrix,  $M_I$ , as in the Newtonian matrix,  $M_N$ . The small difference observed for high matrix

deformations ( $\ell_m \geq 4$ ) could probably be due to the small shear-thinning effect of the matrix,  $M_l$ , as presented in Fig. 3.2(a). We believe that the small variation of the viscosity ratio has a marginal effect on drop deformation. This will be verified in the next section where the elasticity of the continuous phase is changed. Our experimental results concerning the role played by the drop elasticity on the deformation are in qualitative agreement with those obtained in elongational flow by Chin and Han (1979), and Shanker et al. (1996). They are also in agreement with the results obtained in shear flow by Elmendorp and Malcree (1985), and Varanasi et al. (1994). The corresponding conclusions of Chin and Han must be taken with care because the decrease in the drop deformation could also be due to shear-thinning effects.

Figure 3.7 compares our experimental results for the matrix/drop combination  $M_l/D_3$  with those obtained by Delaby et al. (1994) for a matrix/drop combination of the same viscosity ratio ( $k=0.63$ ). In both cases, the drop is more elastic than the matrix and the elastic and interfacial stresses are then resisting stresses. The drop deformation, in our case, is much lower than that obtained by Delaby et al. The differences between the two results are due to differences in the elasticity ratio and the interfacial tension, which are higher for the fluid combination that we used. The first is two times higher, whereas the latter is approximately four times higher. Also, Delaby et al. used polymer melts, which were shear thinning with elastic characteristic times decreasing with the deformation rate.

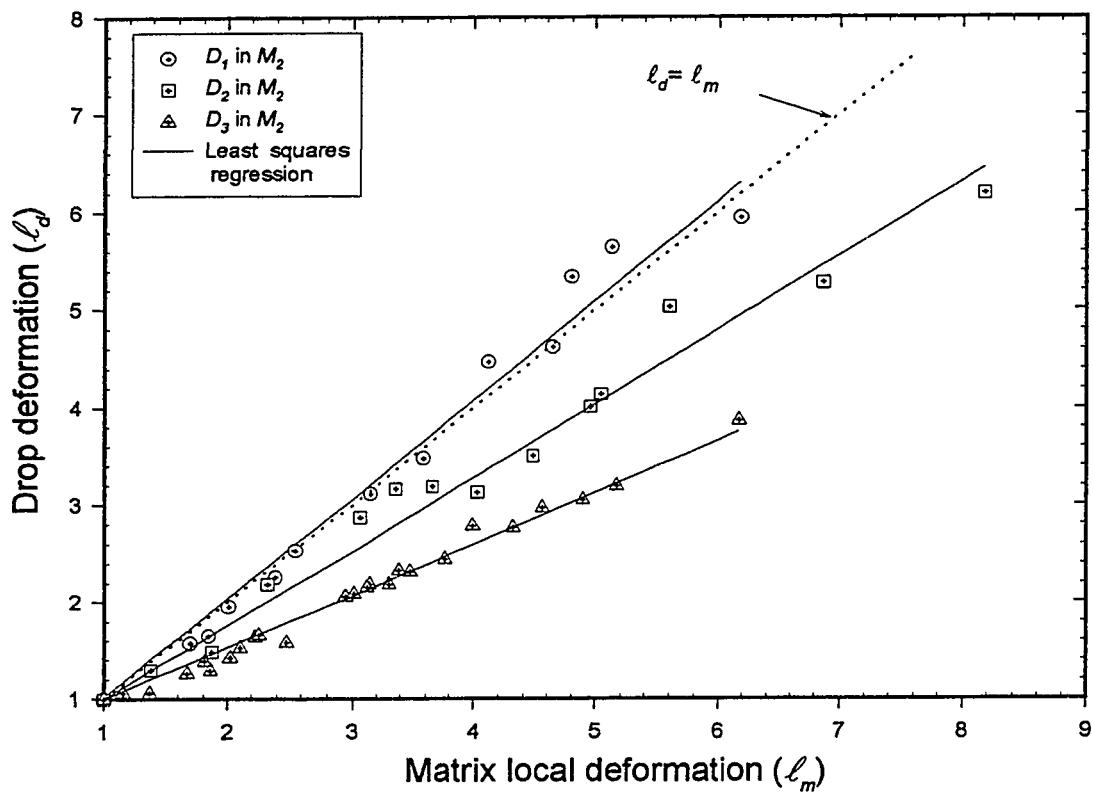


**Figure 3.6:** Drop elongation,  $\ell_d$ , as a function of matrix elongation,  $\ell_m$  ;  
(effect of the drop elasticity).

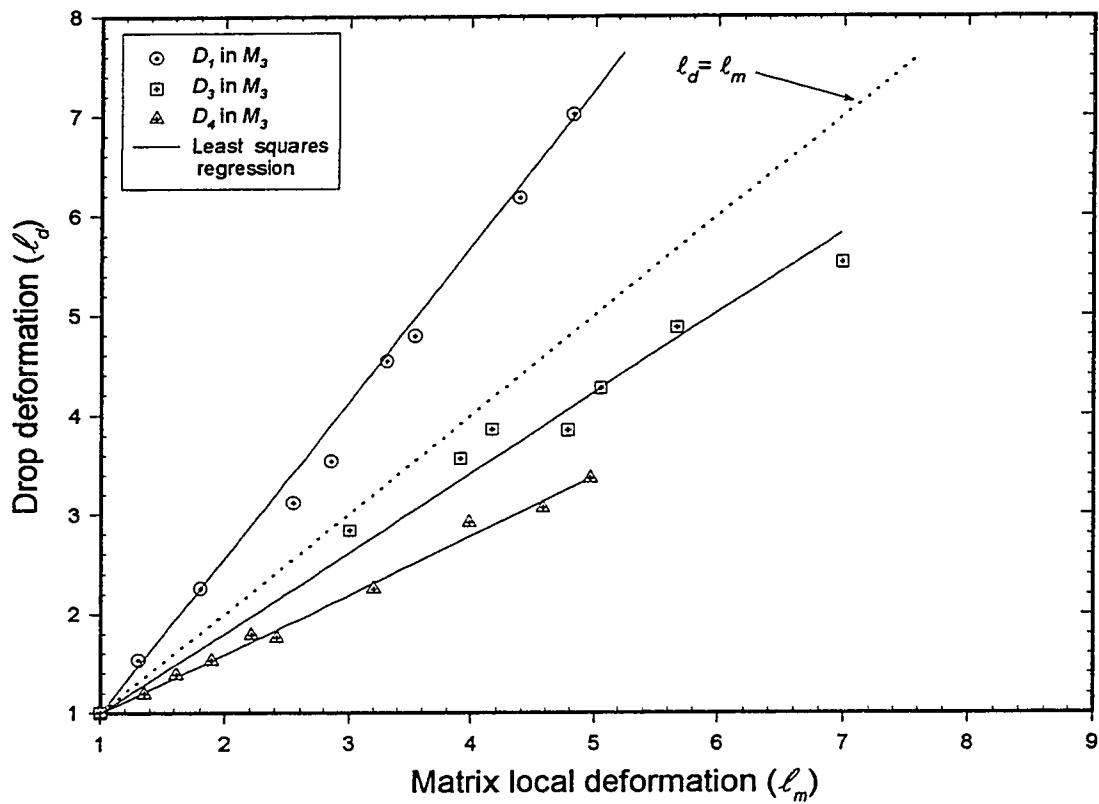


**Figure 3.7:** Comparison of the drop elongation for the matrix/drop combination  $M_1/D_3$  with the results of Delaby et al. (1994).

To examine how the drop deformability is affected by the elasticity of the continuous phase, a second series of tests were carried out using two more matrix fluids,  $M_2$  and  $M_3$ , and the same elastic drop fluids used before,  $D_1 - D_4$ . Some of the corresponding results are shown in Figs. 3.8(a) and 3.8(b). As before, no effect of the initial drop diameter was observed and the drop deformation is a linear function of that of the matrix. In some cases, where the elasticity of the matrix is much higher than that of the drop (combinations:  $M_2/D_1$  and  $M_3/D_1$ ), the drop deforms more than the matrix. This is due to the combined effect of the viscous and elastic stresses (deforming stresses), which leads to higher deformations. To verify if the small variation of the viscosity ratio has a significant effect on the drop deformation compared to that of the elasticity ratios, two groups of fluid combinations were selected from the experimental data. The first group consists of fluid systems with approximately identical viscosity ratios but different elasticity ratios (Fig. 3.9(a)), and the second consists of fluid systems with approximately identical elasticity ratios and small differences in the viscosity ratios (Fig. 3.9(b)). Figures 3.9(a) and 3.9(b) show that the small variation of the viscosity ratio has only a marginal effect on drop deformation, which is seen to be mostly dependent on the elasticity ratio. The deformation for the Newtonian combination ( $D_N$  in  $M_N$ ) is also shown for comparison. As before, we observe that all elastic drops in elastic matrices deform less than the Newtonian drop in the Newtonian matrix. Keep in mind that the interfacial tension is approximately the same for all the fluid systems used.



**Figure 3.8(a):** Drop elongation,  $\ell_d$ , as a function of matrix elongation,  $\ell_m$  ; (drops  $D_1$ ,  $D_2$  and  $D_3$  in the matrix  $M_2$ ).



**Figure 3.8(b):** Drop elongation,  $\ell_d$ , as a function of matrix elongation,  $\ell_m$  ;  
(drops  $D_1$ ,  $D_3$  and  $D_4$  in the matrix  $M_3$ ).

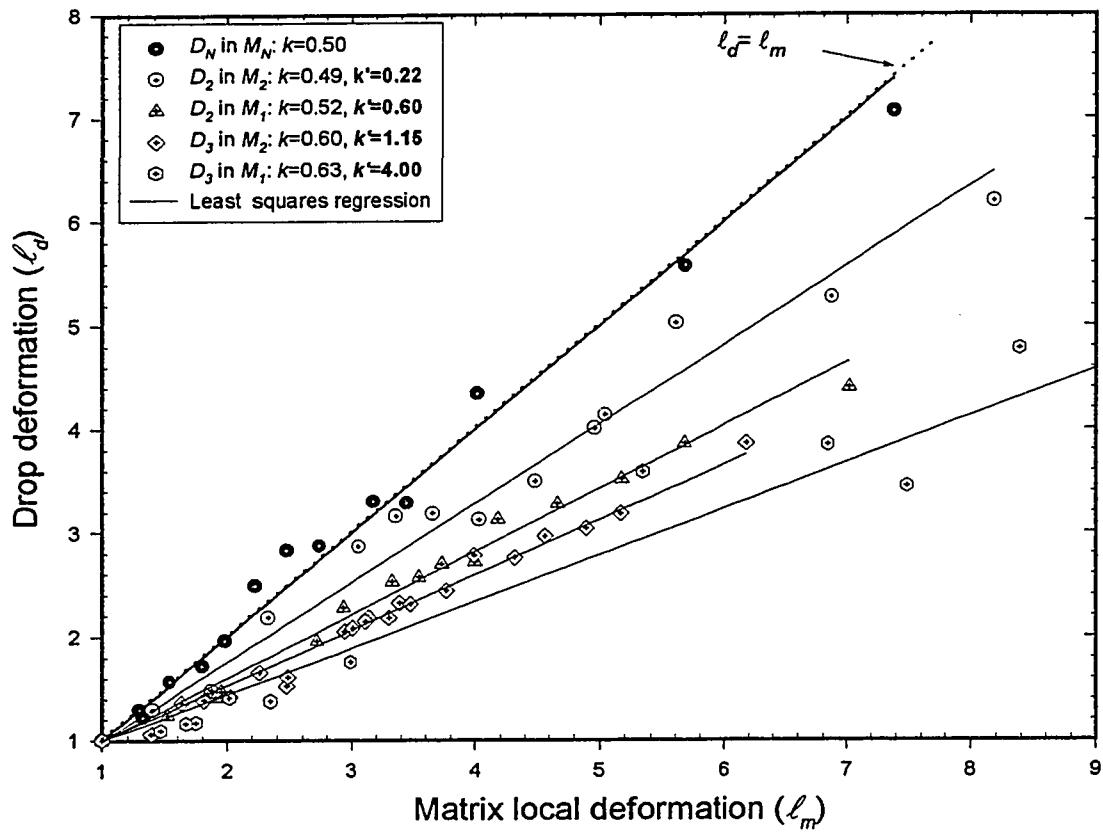
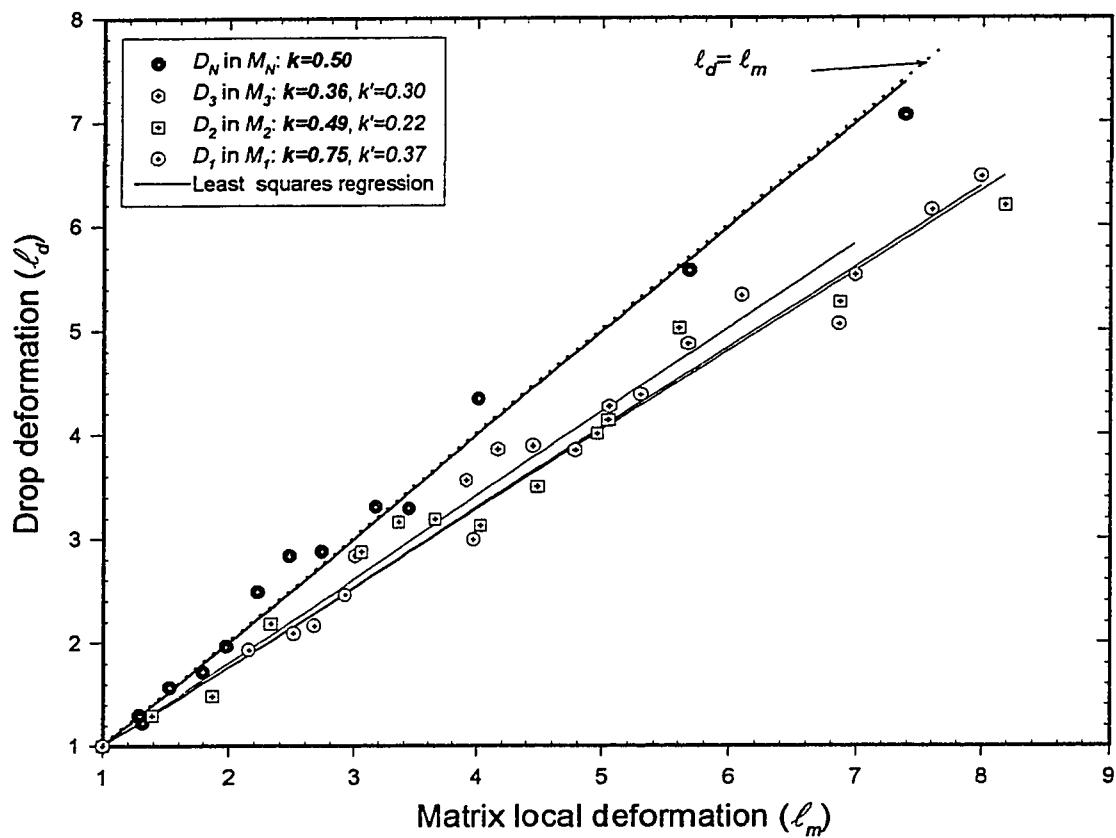


Figure 3.9(a): Drop deformation: Effects of the elasticity ratio.



**Figure 3.9(b):** Drop deformation: Effects of the viscosity ratio.

Under these experimental conditions, the drop and matrix elongations corresponding to each fluid system can be correlated as

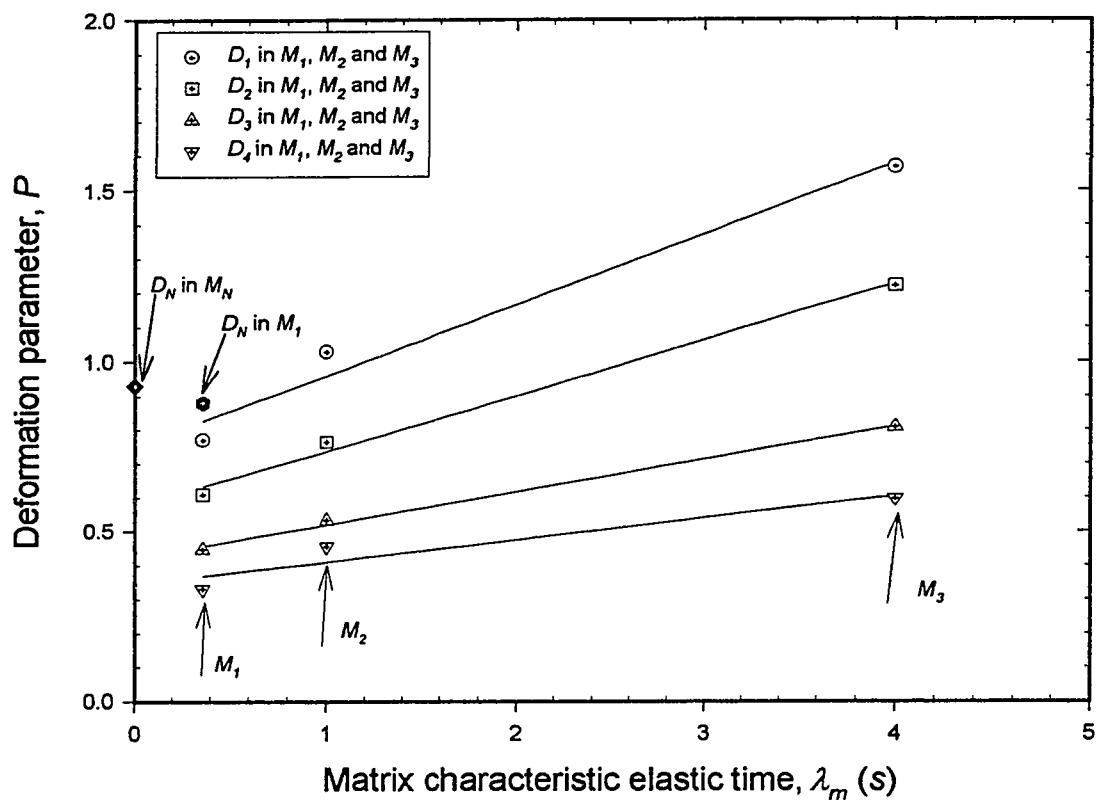
$$(\ell_d - 1)/(\ell_m - 1) = P(\alpha, k, \lambda_d, \lambda_m) \quad (3.4)$$

where  $P$  is a deformation parameter, which depends on the drop and matrix relaxation times, respectively,  $\lambda_d$  and  $\lambda_m$ , as well as on the viscosity ratio and interfacial tension.

No simple correlation for the parameter  $P$  could be obtained as a function of classical dimensionless numbers such as capillary, Deborah, or Weissenberg numbers. The variation of this deformation parameter is shown in Fig. 3.10 for the various drops as a function of the matrix characteristic elastic time. Figure 3.10 reports also the deformation parameters corresponding to the two particular fluid systems  $M_l/D_N$  and  $M_N/D_N$ . It is interesting to note that the relationship between the deformation parameter and the matrix characteristic elastic time is approximately linear for all the elastic fluid systems studied, and can be correlated as

$$P(\alpha = cst, k \approx cst, \lambda_d, \lambda_m) = a\lambda_m + b \quad (3.5)$$

where the parameters  $a$  ( $s^{-1}$ ) and  $b$  vary with the drop characteristic elastic time,  $\lambda_d$ , as shown in Fig. 3.11. The product  $a\lambda_m$  in Eq. (3.5) remains much smaller than the parameter  $b$  for all the matrix/drop combinations. This means that the drop deformation is more affected by the drop elasticity than by the matrix elasticity. The deformation parameters corresponding to the particular cases of the fluid systems  $M_N/D_N$  and  $M_l/D_N$  fit very well with the extrapolated curve, as presented in Fig. 3.11.

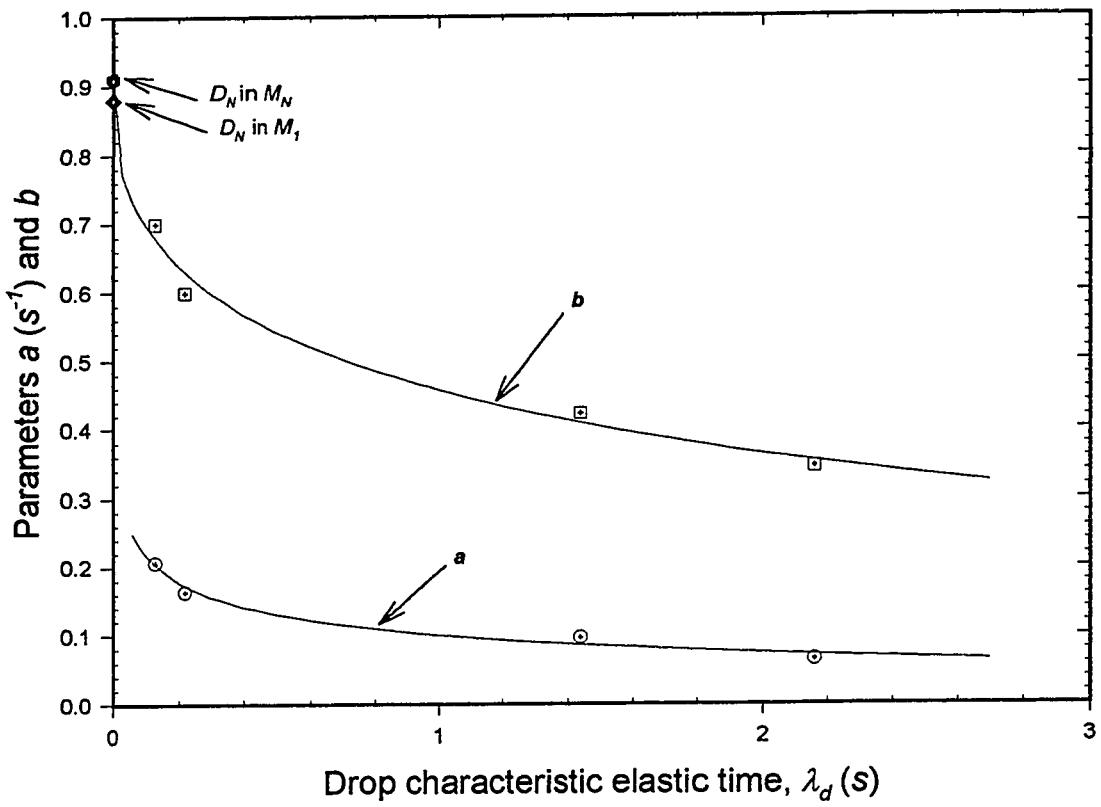


**Figure 3.10:** Variation of the deformation parameter,  $P$ , for the different fluid systems as a function of the matrix characteristic elastic time,  $\lambda_m$ .

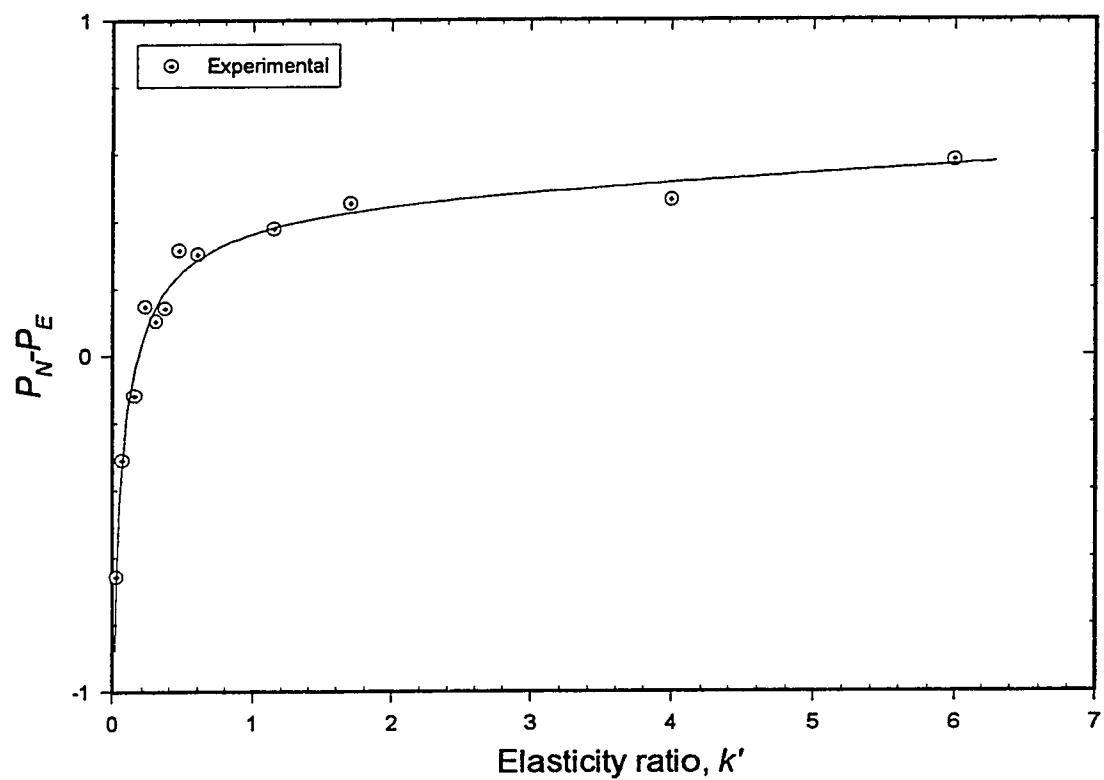
The contribution of the drop and matrix elasticities to the drop deformation can now be determined by comparing the deformation of the elastic drops in the elastic matrices to that of the Newtonian drop in the Newtonian matrix. If the deformation parameter of the Newtonian system is  $P_N$  and that of the elastic systems is  $P_E$ , Eq. (3.4) can be rewritten as follows:

$$(\ell_d)_E = (\ell_d)_N - (P_N - P_E)(\ell_m - 1) \quad (3.6)$$

where  $(\ell_d)_N$  and  $(P_N - P_E)(\ell_m - 1)$  are, respectively, the viscous and the elastic contributions to the drop deformation. Figure 3.12 shows the elastic contribution,  $(P_N - P_E)$ , as a function of the elasticity ratio,  $k'$ . The curve is valid only for elastic systems, i.e., the matrix and the drop are both elastic ( $k' > 0$ ). Considering that the small variation of the viscosity ratio is not affecting the data, the results of Fig. 3.12 show an increase of  $(P_N - P_E)$  with the elasticity ratio ( $k' = \lambda_d/\lambda_m$ ). For high matrix elasticity ( $k' < 0.2$ ), the deformation of elastic drops in an elastic matrix is higher than that of Newtonian drops in a Newtonian matrix with the same viscosity ratio and interfacial tension. For  $k' < 0.2$ , the matrix elasticity has more effect on the drop deformation than the drop elasticity. However, for  $k' > 0.2$ , the elastic drop deforms less than a Newtonian drop in a Newtonian matrix, and the drop deformation is more affected by the drop elasticity. This is also in agreement with the results of Chin and Han (1979) who found that, for high values of  $k'$ , the medium elasticity plays a much smaller role than the drop elasticity in affecting the drop deformation.



**Figure 3.11** Variation of the parameters  $a$  and  $b$  as a function of the drop characteristic elastic time,  $\lambda_d$ .



**Figure 3.12:** Variation of the elastic contribution ( $P_N - P_E$ ) as a function of the elasticity ratio.

### 3.5 CONCLUSION

In this experimental study, we have investigated the contribution of elasticity on drop deformation in elongational flow by using a variety of constant viscosity elastic (Boger) fluids. Two series of tests were carried out in order to know how the drop deformability is affected by the variation of both the drop or the matrix elasticities. The results have shown that the drop deformation decreases with increasing its elasticity. The matrix elasticity have the opposite effect, i.e., the drop deformation increases with increasing matrix elasticity, but the drop elasticity seems to have much more control on the drop deformability. For elasticity ratio,  $k' < 0.2$ , the matrix elasticity has more effect on the drop deformation than the drop elasticity. However, for  $k' > 0.2$ , the drop deformation is more affected by drop elasticity.

A simple empirical relation between the drop and the matrix elongations as function of drop and matrix elasticities was established. This relation is valid under a narrow range of viscosity ratios ( $0.5 \leq k \leq 1.10$ ) and an approximately constant interfacial tension of about  $22 \text{ mN/m}$ . More research is needed to include the effects of both the viscosity ratio and the interfacial tension.

### APPENDIX: NOMENCLATURE

$D$ : Drop diameter,  $m$ .

$G', G''$ : Storage and loss moduli,  $Pa$ .

$k$ :	Viscosity ratio ( $k = \eta_d / \eta_m$ ).
$k'$ :	Elasticity ratio ( $k' = \lambda_d / \lambda_m$ ).
$L$ :	Drop length after elongation, $m$ .
$\ell_d, \ell_m$ :	Drop and matrix deformations.
$N_I$ :	Primary normal stress difference, $Pa$ .
$P$ :	Deformation parameter.
$V$ :	Average velocity, $m/s$ .
$Q$ :	Matrix flow rate, $m^3/s$ .
$Z_0$ :	Length of the converging channel, $m$ .
$\alpha$ :	Interfacial tension, $mN/m$ .
$\varepsilon_d, \varepsilon_m$ :	Drop and matrix Hencky strains.
$\dot{\varepsilon}$ :	Elongational strain rate, $s^{-1}$ .
$\eta, \eta'$ :	Steady-state and dynamic viscosities, $Pa.s$ .
$\eta_d, \eta_m$ :	Drop and matrix steady-state viscosities, $Pa.s$ .
$\lambda$ :	Characteristic elastic time, ( $\lambda = N_I / 2\eta \dot{\gamma}^2$ ), $s$ .
$\lambda_d, \lambda_m$ :	Drop and matrix characteristic elastic times, $s$ .
$\mu$ :	Newtonian viscosity, $Pa.s$ .
$\omega$ :	Frequency, $rad/s$ or $s^{-1}$ .

## References

- Bentley, B. J. and L. G. Leal, "A computer-controlled four-roll mill for investigation of particle and drop dynamics in two-dimensional linear shear flows," *J. Fluid Mech.* **167**, 219-240 (1986).
- Boger, D. V. and R. J. Binnington, "Separation of elastic and shear thinning effects in the capillary rheometer," *Trans. Soc. Rheol.* **21**, 515-534 (1977).
- Chin, H. B. and C. D. Han, "Studies on droplet deformation and breakup: Droplet deformation in Extensional flow," *J. Rheol.* **23**, 557-590 (1979).
- Delaby, I., B. Ernst and R. Muller, "Droplet deformation in polymer blends during uniaxial elongational flow: Influence of viscosity ratio for large capillary numbers," *J. Rheol.* **38**, 1705-1720 (1994).
- Delaby, I., B. Ernst and R. Muller, "Drop deformation during elongational flow in blends of viscoelastic fluids: Small deformation theory and comparison with experimental results," *Rheol. Acta* **34**, 525-533 (1995).
- Elmendorp, J. J. and G. De Vos, "Measurement of interfacial tensions of molten polymer systems by means of the spinning drop method," *Polym. Eng. Sci.* **26**, 415-417 (1986).
- Elmendorp, J. J. and R.J. Maalcke, "A study on polymer blending microrheology: Part 1," *Polym. Eng. Sci.* **25**, 1041-1047 (1985).
- Flumerfelt, R. W., "Drop breakup in simple shear fields of viscoelastic fluids," *Ind. Eng. Chem. Fundam.* **11**, 312-318 (1972).
- Grace, H. P., "Dispersion phenomena in high viscosity immiscible fluid systems and application of static mixers as dispersion devices in such systems," *Chem. Eng. Commun.* **14**, 225-277 (1982).

- Han, C. D. and K. Funatsu, "An experimental study of droplet deformation and breakup in pressure-driven flows through converging and diverging channels," *J. Rheol.* **22**, 113-133 (1978).
- Jackson, K. P., K. Walters and R. W. Williams, "A rheometrical study of Boger fluids," *J. Non-Newt. Fluid Mech.* **14**, 173-188 (1984).
- James, D.F., G. M. Chandler and S. J. Armour, "A converging channel rheometer for the measurement of extensional viscosity," *J. Non-Newt. Fluid Mech.* **35**, 421-443 (1990).
- Kalb, B., G. Cox and R. S. J. Manley, "Hydrodynamically induced formation of cellulose fibers. II. Fiber formation by deformation of drops with zero interfacial tension," *J. Colloid Interface Sci.* **82**, 286-297 (1981).
- Meijer, H. E. and J. M. Janssen, "In mixing and compounding: Theory and practical progress," In *Progress in Polymer Processing Series*, vol. 4 (Hanser, Munich, 1993)
- Milliken, W. J. and L. G. Leal, "Deformation and breakup of viscoelastic drops in planar extensional flows," *J. Non-Newt. Fluid Mech.* **40**, 355-379 (1991).
- Philippe, A., "Contribution à l'étude des écoulements viscoélastiques dans les convergents," Thèse de doctorat ès Sciences, École supérieure des mines de Paris, (1981).
- Rumscheidt, F. D. and S. G. Mason, "Particle motions in sheared suspensions: Deformation and burst of fluid drops in shear and hyperbolic flow," *J. Colloid Sci.* **16**, 238-261 (1961).
- Sakellarides, S. L. and A. J. McHugh, "Structure formation during polymer blend flows," *Polym. Eng. Sci.* **27**, 1662-1674 (1987).
- Shanker, R., R. D. Spradling, H. T. Pham, S. Namhata and C. P. Bosnyak, "Effect of viscoelasticity on transient drop dispersion," *Soc. Plastic Eng. Conf. Proc.* **2**, 2596-2600 (1996)

- Taylor, G. I., "The deformation of emulsions in definable fields of flow," Proc. Roy. Soc. London, Ser. A **146**, 501-523 (1934).
- Van Der Reijden-Stolk, C. and A. Sara, "A study on polymer blending microrheology Part 3: Deformation of Newtonian drops submerged in another Newtonian fluid flowing through a converging cone," Polym. Eng. Sci. **26**, 1229-1239 (1986).
- Van Oene, H., "Modes of dispersion of viscoelastic fluids in flow," J. Colloid interface Sc. **40**, 448-467 (1972).
- Varanasi, P.P., M. E. Ryan and P. Stroeve, "Experimental study on the breakup of model viscoelastic drops in uniform shear flow," Ind. Eng. Chem. Res. **33**, 1858-1866 (1994).
- Wu, S., "Formation of dispersed phase in incompatible polymer blend: Interfacial and rheological effects," Polym. Eng. Sc. **27**, 335-343 (1987).

## CHAPITRE IV

### **INFLUENCE DES PROPRIÉTÉS ÉLASTIQUES SUR LA DÉFORMATION ET RUPTURE DE GOUTTES DANS UNE MATRICE EN CISAILLEMENT**

Les résultats des travaux présentés dans ce chapitre complètent ceux déjà obtenus au chapitre précédent. Cette fois-ci, l'étude porte sur l'écoulement en cisaillement, généré entre deux plaques parallèles. Contrairement au montage conçu pour générer l'écoulement élongationnel (sujet du chapitre précédent), le montage conçu pour le cisaillement a permis d'atteindre le cisaillement critique. On a pu ainsi tirer des conclusions quant à l'influence de l'élasticité de la goutte ou celle de la matrice sur les mécanismes de déformation ou de rupture de la goutte. Une relation empirique reliant la déformation en régime permanent de la goutte au nombre capillaire a été développée. Cette relation met en évidence la contribution de l'élasticité des deux phases (matrice/goutte) sur la déformation de la goutte. Les résultats obtenus pour les conditions critiques de rupture montrent que le nombre capillaire critique ainsi que le temps de bris sous cisaillement critique augmentent avec l'augmentation du rapport d'élasticité goutte/matrice.

# INFLUENCE OF ELASTIC PROPERTIES ON DROP DEFORMATION AND BREAKUP IN SHEAR FLOW

BY

*F. Mighri, P. J. Carreau\* and A. Ajji\*\**

*Centre de Recherche Appliquée sur les Polymères, CRASP;*

*Department of Chemical Engineering*

*Ecole Polytechnique of Montreal, C. P. 6079, Stn. Centre-Ville,  
Montreal, QC, H3C 3A7 Canada*

*\*\* Industrial Materials Institute, National Research Council Canada  
75 Bd. de Mortagne, Boucherville, QC, J4B 6Y4 Canada*

## Synopsis

We report in this paper experimental results on the deformation and the critical breakup conditions of a single drop in a medium under simple shear flow. The role played by both drop and matrix elasticities is quantified by using constant viscosity elastic (Boger) fluids. The experiments were conducted using two transparent parallel disks mounted on an R-18 Weissenberg rheogoniometer. The critical shear rate was determined by imposing successive small changes in shear rate from low to higher values until the drop breakup was observed. The results show remarkable differences in the mode of deformation and breakup for Newtonian and elastic fluid systems. It is also found that the drop resistance to deformation and breakup increases with increasing elasticity ratio. The contribution of the drop and matrix elasticities is quantified by using an empirical relation established between the drop deformation and the capillary number,  $Ca$ . The critical breakup conditions, such as a dimensionless breakup time,  $t^* b$ , and a critical capillary number,  $Ca_c$ , are determined as a function of the drop/matrix elasticity ratio,  $k'$ . The values of  $Ca_c$  and  $t^* b$  are found to increase with increasing  $k'$ .

#### 4.1 INTRODUCTION

Polymer blends are important industrial materials. Their properties can be altered to satisfy a wide range of properties. A number of industrial processes involve dispersion of immiscible liquid/liquid systems; the final morphology resulting from the mixing process influences the properties of the final product. The size, shape of drops, and degree of dispersion play important roles on the final properties of the blend. It is quite obvious that a better understanding of the deformation and breakup mechanisms of isolated polymer drops under shear or elongation will lead to better design and control of the equipment.

Most of the previous work reported in the literature on drop behavior under shear focused on Newtonian fluid mixtures. Taylor (1932, 1934) performed the pioneering work on the deformation and breakup of a single Newtonian drop in a Newtonian matrix under simple shear. Newtonian systems were further investigated by several authors (Cox, 1969; Hinch and Acrivos, 1980; Grace, 1982; Rallison, 1984; Wu, 1987; etc.).

Molten polymers are viscoelastic liquids under processing conditions. The dispersed drops are subjected to both elastic and viscous forces, arising from the matrix, which tend to deform the drop. The resisting forces arising from the interfacial tension and drop elastic and viscous forces tend to retract the drop. Therefore, the mechanism of drop deformation and breakup is quite different in viscoelastic systems from that in Newtonian systems. Some interesting results in simple shear flow were obtained by Flumerfelt (1972) who carried out one of the first experimental studies on the breakup of Newtonian drops sheared in viscoelastic fluids. He found that, under a certain minimum drop

diameter,  $D_{min}$ , which varies with each fluid system, breakup cannot be observed. This minimum drop diameter, as well as the critical shear rate,  $\dot{\gamma}_c$ , required for breakup, increase with increasing matrix elasticity. He further observed that breakup of a Newtonian drop occurs at lower shear rates in a Newtonian matrix than in a viscoelastic matrix of the same viscosity ratio. Flumerfelt (1972) also observed lower values for  $D_{min}$  and  $\dot{\gamma}_c$  under unsteady shear conditions (shear rate ramp). A linear relationship between the critical capillary number  $Ca_c$  ( $Ca_c = \eta_m \dot{\gamma}_c D / \alpha$ ) , and the matrix elasticity expressed in terms of  $\lambda_1$ , the first time constant in the Bird-Carreau model (1968), was developed:

$$Ca_c = f_1(k) \lambda_1 \dot{\gamma}_c + f_2(k) \quad (4.1)$$

where  $f_1(k)$  and  $f_2(k)$  are functions of the drop/matrix viscosity ratio ( $k = \eta_d / \eta_m$ ). The critical capillary number is the ratio between the critical viscous stress,  $\eta_m \dot{\gamma}_c$ , and the interfacial stress,  $\alpha/D$ , respectively.  $\alpha$  is the interfacial tension and  $D$  the drop diameter. Tavgac (1972) studied the deformation and breakup of viscoelastic drops suspended in a viscoelastic fluid under shear flow. He observed that, depending on matrix/drop combined properties, the elastic forces arising from the matrix phase may have a stabilizing or destabilizing effect on the breakup process. At high values of viscosity ratio, an elastic matrix favors the breakup of Newtonian drops, but stabilizes the drops at low values of viscosity ratio. Tavgac (1972) also reported that the breakup of viscoelastic drops in viscoelastic matrices occurred at lower shear rates under transient conditions compared to steady-state conditions. Gauthier et al. (1971) also studied the

deformation and breakup of viscoelastic drops in Newtonian matrix in Poiseuille flow. They found that drop deformation and breakup are similar to those of Newtonian drops in a Newtonian matrix for small values of the viscosity ratio. For high viscosity ratio, viscoelastic drops were pulled into a thread, which broke once shearing was stopped. The critical capillary number was considerably higher than that of a Newtonian drop. Elmendorp and Maalcke (1985) conducted an experimental investigation on viscoelastic and Newtonian drop deformation and breakup in Newtonian and viscoelastic matrices respectively. They found that the deformation of a viscoelastic drop in a Newtonian matrix decreases with increasing drop elasticity. In contrast, the deformation of a Newtonian drop in a viscoelastic matrix increases with increasing matrix elasticity. The contribution of elasticity to drop deformation could not be quantified due to complications associated with shear thinning of the fluid systems used. Varanasi et al. (1994) showed that, at any given value of the viscosity ratio, the critical capillary number increased with increasing drop elasticity. Recently, Levitt et al. (1997) investigated the deformation of polypropylene drops of different viscosities and elasticities, sheared in a polystyrene matrix. For high elastic matrices, widening of drops perpendicular to the flow direction was observed. The width of the flattened drops depended on differences in elasticities between matrix and drop. For viscosity ratio larger than unity and elasticity ratio above 2, no drop widening was observed. Levitt et al. (1997) developed the following relation between the second normal stress differences,  $N_{2d}$  and  $N_{2m}$ , of the drop and matrix phases respectively, and the degree of widening:

$$N_{2d} - N_{2m} = \alpha / R_2^{crit.} \approx 0.6(G'_m - G'_d) \quad (4.2)$$

where  $R_2^{crit.}$  is the half drop thickness measured from the cross section of the extended drop, and  $G'_d$  and  $G'_m$ , are the drop and matrix storage moduli respectively.

Mighri et al. (1997) investigated the contribution of elasticity on drop deformation in elongational flow. The elasticity ratio,  $k' = \lambda_d/\lambda_m$ , defined as the ratio between the drop and matrix relaxation times,  $\lambda_d$  and  $\lambda_m$  respectively, was found to play a major role on the drop deformation. The drop deformation was shown to decrease with increasing drop elasticity. The matrix elasticity has the opposite effect, i.e., the drop deformation increases with increasing matrix elasticity. For elasticity ratio  $k' \leq 0.2$ , the matrix elasticity has more effect on drop deformation than drop elasticity. However, for  $k' \geq 0.2$ , drop deformation is more affected by drop elasticity. We should mention that the breakup mechanisms in elongational flow were not studied because of experimental limitations.

The goal of this experimental study is to extend our previous work to shear flow field and determine the contribution of elasticity to drop deformation and breakup in shear using the same constant viscosity elastic (Boger) fluids. This investigation is restricted to cases for which the shear rate does not exceed the critical value. Both deformation and breakup (breakup time and critical capillary number) of elastic drops in elastic matrices are studied and compared to results obtained for Newtonian systems.

## 4.2 EXPERIMENTAL

### 4.2.1 *Experimental setup and procedure*

The experimental setup consists of two transparent parallel disks of Plexiglas mounted on a R-18 Weissenberg rheogoniometer. Disks of 50 mm diameter were used, and the gap between the disks was 2 mm. The experiments were carried out at room temperature ( $T \approx 25^\circ\text{C}$ ) for different matrix/drop fluids with approximately the same viscosity ratio and interfacial tension and different elasticity ratios. Drops of different sizes (0.4 - 0.8 mm in diameter) were injected in the matrix by means of a microsyringe. Once a drop was properly injected in the matrix, the drop was sheared at high shear rate until broken down into smaller droplets. Only one selected drop was kept in the matrix; the other drops were carefully removed using the syringe. The diameter of the selected drop was about 30 % of the gap distance between the disks. Preliminary tests confirmed that the disk surfaces had marginal effect on the drop deformation. The drop remained suspended approximately at the same distance from the two disk surfaces. The shear rate applied to the drop was calculated from the known position of the drop and the speed of rotation of the lower disk.

The steady state and critical deformations, and the breakup process were recorded using a high-speed video system with magnification optics and a digital chronometer. For the measurement of the steady state drop deformation, the experimental procedure was as follows: (i) First, the speed of rotation of the lower disk was increased in small increments and at each speed, the drop shape was recorded until it attained a steady shape, which was used to determine the drop aspect ratio. (ii) Second, when the critical

shear rate was attained, the unsteady shape of the drop was recorded with the corresponding breakup time. The video tapes of the experiments were then analyzed using an image analysis system, consisting of a video frame grabber and a computer.

#### **4.2.2 Model fluids and their rheological properties**

The constant viscosity elastic (Boger) fluids used in this study were the same fluids as those used in our previous work on drop deformation in elongational flow (Mighri et al., 1997). More details on the composition, the technique used for their preparation, and their rheological characterization are given in that work (see also Boger and Binnington, 1977). Table 4.1 lists the different drop/matrix combinations, the corresponding Maxwell relaxation times ( $\lambda_d$  and  $\lambda_m$ , respectively), the viscosity ratio ( $k$ ), the elasticity ratio ( $k'$ ), and the interfacial tension( $\alpha$ ). The Maxwell relaxation time was calculated from the first normal stress differences,  $N_1$ , data using the following relation:

$$\lambda = N_1 / 2\eta \dot{\gamma}^2 \quad (4.3)$$

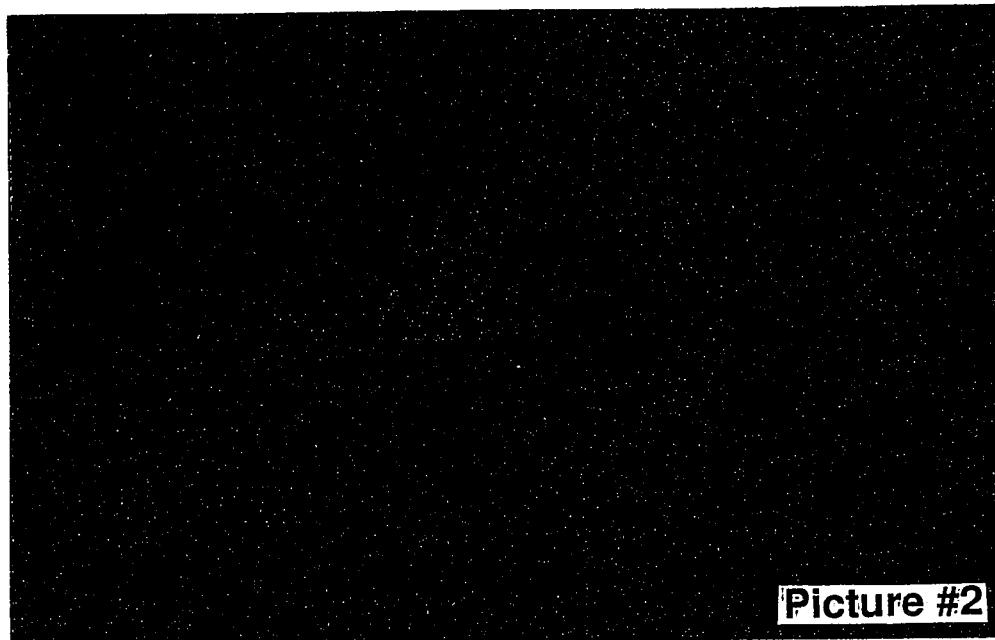
It is worth noting that the values of  $\lambda$  were approximately constant for all the elastic fluids used, for shear rates up to  $30 s^{-1}$ . The interfacial tension between the drop and matrix fluids were determined by using the spinning drop technique (Elmendorp and De Vos, 1986). The values were approximately constant for the different drop/matrix combinations and the average value of about  $22 mN/m$  was used in our calculations.

**Table 4.1:** Fluid systems and corresponding relaxation times, viscosity ratio, elasticity ratio, and interfacial tension.

Matrix fluids ( $M_i$ )	Drop fluids ( $D_j$ )	Relaxation time		Viscosity ratio ( $k$ )	Elasticity ratio ( $k'$ )	Interfacial tension $\alpha$ (mN/m)
		Matrix $\lambda_m(s)$	Drop $\lambda_d(s)$			
$M_1$	$D_N$	---	---	0.50	---	$\cong 22.0$
	$D_N$		---	0.50	0.00	22.5
	$D_I$		0.13	0.75	0.37	23.0
	$D_2$	0.36	0.22	0.52	0.60	19.5
	$D_3$		1.44	0.63	4.00	23.5
$M_2$	$D_I$		0.13	0.71	0.15	22.5
	$D_2$	1.00	0.22	0.49	0.22	23.5
	$D_3$		1.44	0.60	1.15	22.5
	$D_4$		2.16	1.05	1.70	21.0
$M_3$	$D_I$		0.13	0.45	0.03	27.5
	$D_2$	4.00	0.22	0.28	0.07	25.0
	$D_3$		1.44	0.36	0.30	24.0
	$D_4$		2.16	0.68	0.47	27.0

### 4.3 EXPERIMENTAL RESULTS AND DISCUSSION

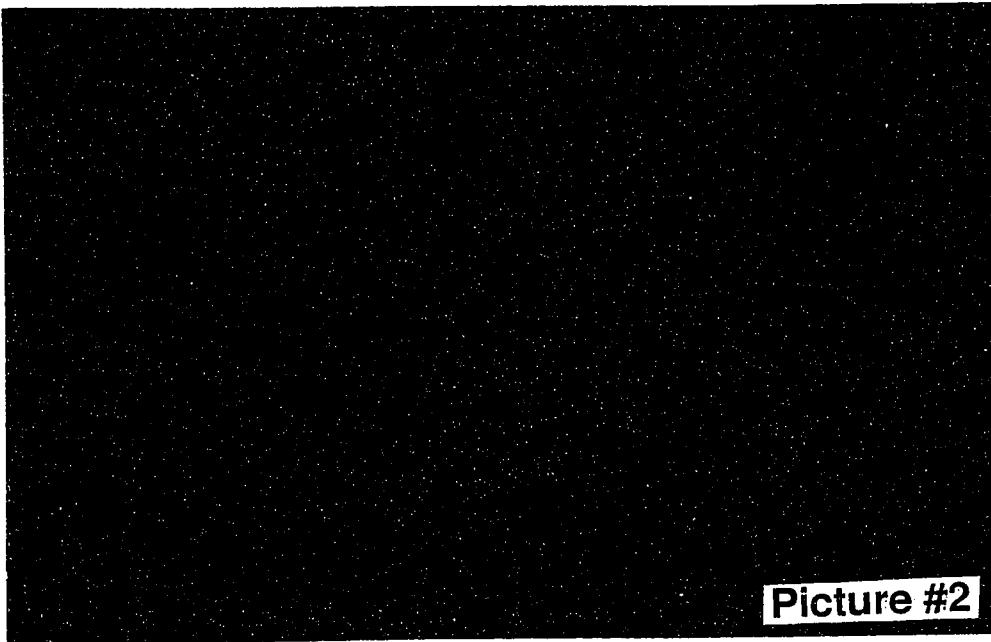
First, we consider the steady-state deformation observed for the different matrix/drop combinations presented in Table 4.1. As mentioned before, the shear rate was increased in small increments in order to observe the drop deformation from one steady-state to another. The deformation mechanism was observed to depend on the matrix/drop combination and the applied shear rate. Figures 4.1(a) and 4.1(b) show typical pictures of the Newtonian drop,  $D_N$ , sheared in the Newtonian matrix,  $M_N$ , and the elastic drop,  $D_2$ , sheared in the elastic matrix,  $M_3$ , respectively. The mechanism of drop deformation was quite different in the elastic system from that in the Newtonian (inelastic) system. The shape of the Newtonian drop changed as a function of the shear rate from a spheroidal shape with highly curved ends to an elongated cylinder, which conserved its curved ends. In contrast, when the elastic drop was sheared in the elastic matrix, the steady deformed drop looked like a spheroid with slightly sharper edges at small shear rate values, and like a cylinder with highly pointed ends when the shear rate was increased up to a value below the critical shear rate. Widening of the elastic drop was also observed for the elastic combination,  $D_2$  in  $M_3$ ; the deformed drop became flatter, its width becoming larger than its initial diameter. This widening increased with increasing applied shear rate. The same phenomenon was also observed by Levitt et al. (1997). They explained this widening by the secondary normal stress difference exerted by the matrix on the drop causing stretching perpendicular to the flow direction. The widening due to the difference between the drop and matrix elasticities competes with the contraction in the opposite direction.



**Figure 4.1(a):** Typical pictures of a Newtonian drop under deformation:  
(Newtonian drop/matrix combination:  $D_N$  sheared in  $M_N$ )



Picture #1



Picture #2

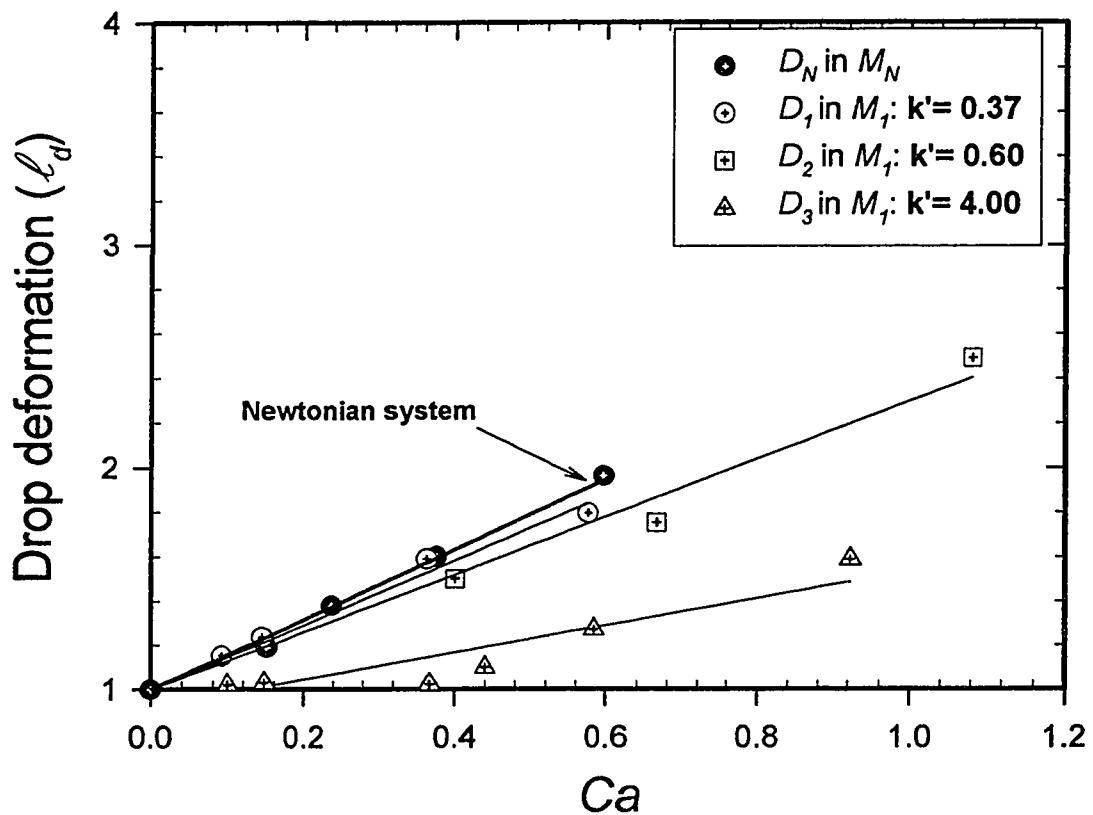
**Figure 4.1(b):** Typical pictures of an elastic drop under deformation:  
(Elastic drop/matrix combination:  $D_2$  sheared in  $M_3$ )

caused by the interfacial tension. As mentioned before, Levitt et al. (1997) related the degree of widening with the differences in drop and matrix elasticities using Eq. 4.2. Their approximation of  $(N_{2d} - N_{2m})$  by  $0.6(G'_m - G'_d)$  needs to be verified for carefully determined normal stress differences.

The following section presents the results for steady-state drop deformation. The aspect ratio,  $\ell_d = L/D$ , was used as the measure of drop deformation because it is a sensitive measure for highly deformed drops (Milliken and Leal, 1991).  $L$  is the major axis of the deformed drop and  $D$  is its initial diameter. The results of drop deformation were calculated for different elasticity ratios,  $k'$ , as a function of the capillary number,  $Ca$ , which combines the effects of shear rate, matrix viscosity, interfacial tension, and initial drop diameter ( $Ca = \eta_m \dot{\gamma} D / \alpha$ ). The elasticity ratio,  $k'$ , which includes the combined effects of both drop and matrix first normal stress differences, and the viscosity ratio, is given by

$$k' = (\lambda_d / \lambda_m) = N_{1d} / (N_{1m} k) \quad (4.4)$$

Figure 4.2 shows how the variation of the drop elasticity affects drop deformation in a given matrix fluid. The figure reports the drop deformation as a function of capillary number for three elastic drops of different elasticities ( $D_1$ - $D_3$ ), sheared in the same matrix,  $M_1$ . The deformation for the Newtonian combination ( $D_N$  in  $M_N$ ) is also reported in Fig. 4.2 for the purpose of comparing elastic to Newtonian behavior.



**Figure 4.2:** Drop deformation,  $\ell_d$ , as a function of the capillary number,  $Ca$ : (effect of the drop elasticity).

As observed previously for elongational flow (Mighri et al. (1997)), with  $k' \geq 0.37$ , the elastic drops in the elastic matrix,  $M_1$ , deform less than the Newtonian drop in the Newtonian matrix of a comparable viscosity ratio and interfacial tension. The drop elasticity enhances its resistance to deformation and tends to retract the drop, thus assisting the interfacial forces in minimizing the drop deformation. The more elastic the drop is (i.e., higher values of  $k'$ ), the less it is deformed. Figure 4.3 shows how the drop deformation is affected by the elasticity of the continuous phase. For this case, four elastic drops ( $D_1$ - $D_4$ ), and two more matrix fluids,  $M_2$  and  $M_3$ , of different elasticities were used. The deformation for the Newtonian combination ( $D_N$  in  $M_N$ ) is also reported for a comparison. As before (Fig. 4.2), for  $k' \geq 0.37$ , which corresponds to the two other drop/matrix combinations:  $D_4$  in  $M_2$ , and  $D_3$  in  $M_N$ , the elastic drops still deform less than the Newtonian drop in the Newtonian matrix. Since the matrix  $M_N$  is Newtonian, the results reported in Fig. 4.3 for the drop/matrix combination  $D_3$  in  $M_N$ , correspond to an infinite elasticity ratio ( $k' = (\lambda_d/\lambda_m) \rightarrow \infty$ ). It will be shown later that those results give an idea about the maximal contribution of drop and matrix elasticities on drop deformation. In contrast, for  $k' < 0.37$  (combinations:  $D_1$  in  $M_2$ ,  $D_1$  in  $M_3$ , and  $D_2$  in  $M_3$ ), elastic drops deform more in elastic matrices than the Newtonian drop in the Newtonian matrix of a comparable viscosity ratio and interfacial tension. The forces that deform the drop are the matrix elastic forces combined with the shearing forces. This leads to higher drop deformations, and the more elastic the matrix

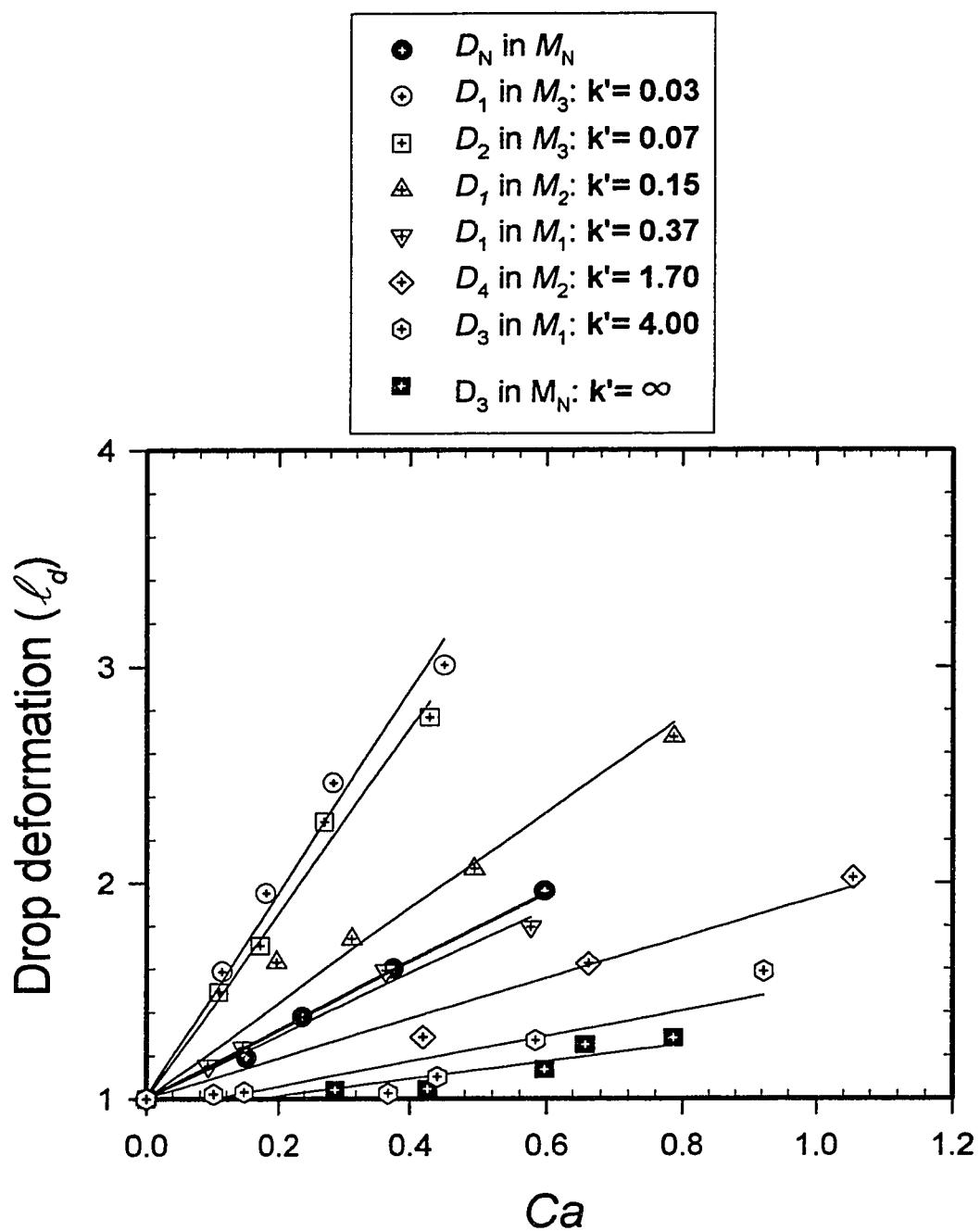
is, the more the drop is deformed. It should be mentioned that drop and matrix elasticities seems to have the same action on drop deformability in shearing flow field as in the elongational flow field, i.e., the matrix elasticity has the opposite effect on drop deformability than the drop elasticity. This is in agreement with the qualitative results of Elmendorp and Maalcke (1985). Their results could be, however, affected by shear-thinning effects.

It is worth noting from Figs. 4.2 and 4.3 that, for most of the systems tested, there is a linear relation between the drop deformation and the capillary number in the range of  $C\alpha$  experimentally studied ( $C\alpha \leq 1.2$ ). Only the two combinations  $D_3$  in  $M_1$  and  $D_3$  in  $M_N$  present a small nonlinearity for low values of  $C\alpha$ . This is probably due to the experimental imprecision in the measurement of small deformations at low values of  $C\alpha$ . Elmendorp and Maalcke (1985) also observed a linear relation between drop deformation and shear rate for shear rates up to  $6 s^{-1}$ , which correspond for the fluid systems used to capillary numbers up to 1.10. Under the experimental conditions, the drop deformation corresponding to each drop/matrix combination can be correlated by

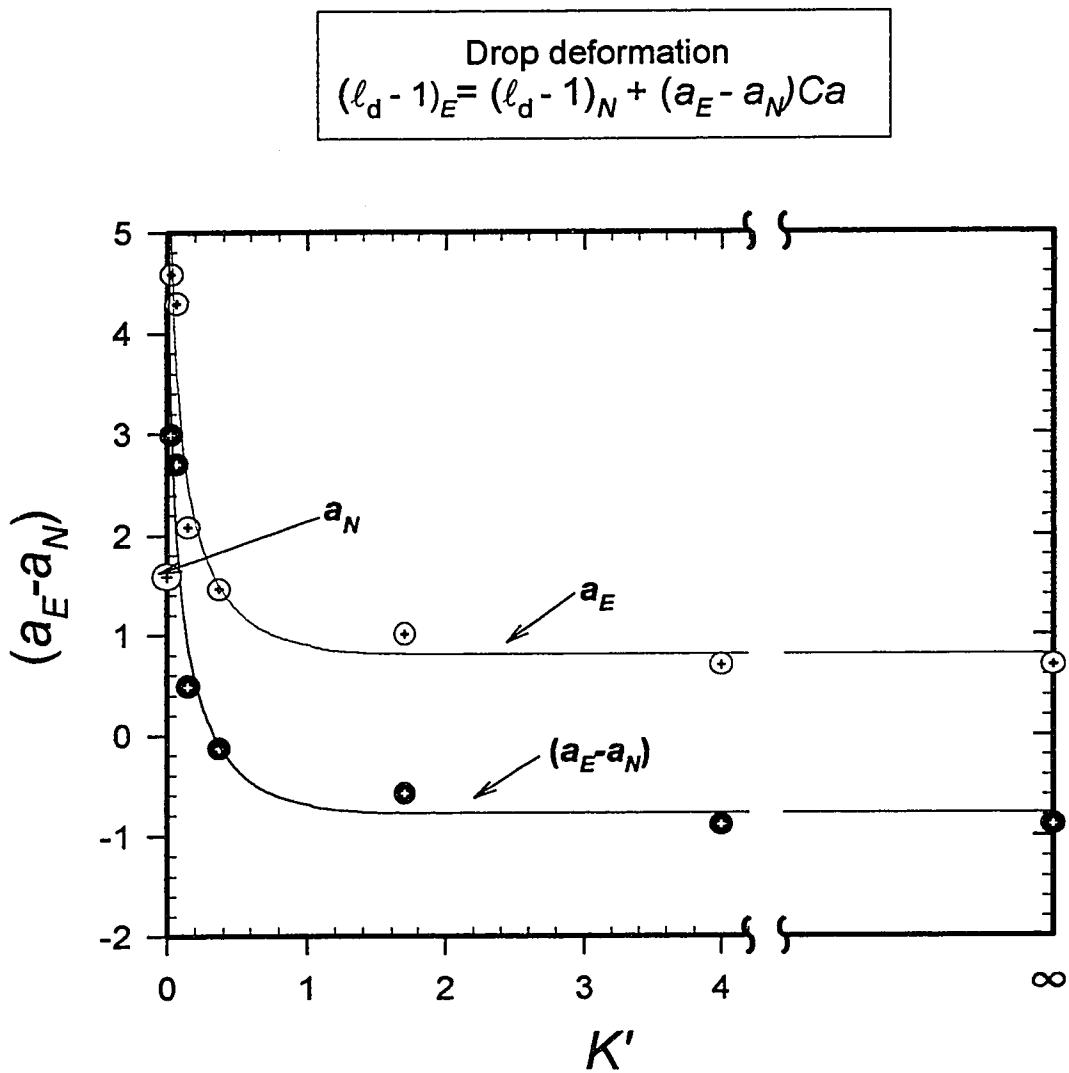
$$\ell_d - 1 = aC\alpha \quad (4.5)$$

where  $a$  is a function of the elasticity ratio,  $k'$ , as presented in Fig. 4.4. The contribution of the drop and matrix elasticity can be determined by comparing the deformation of elastic drops in elastic matrices to that of the Newtonian drop in the Newtonian matrix of the same viscosity ratio and interfacial tension :

$$(\ell_d - 1)_E = (\ell_d - 1)_N + (a_E - a_N)C\alpha \quad (4.6)$$



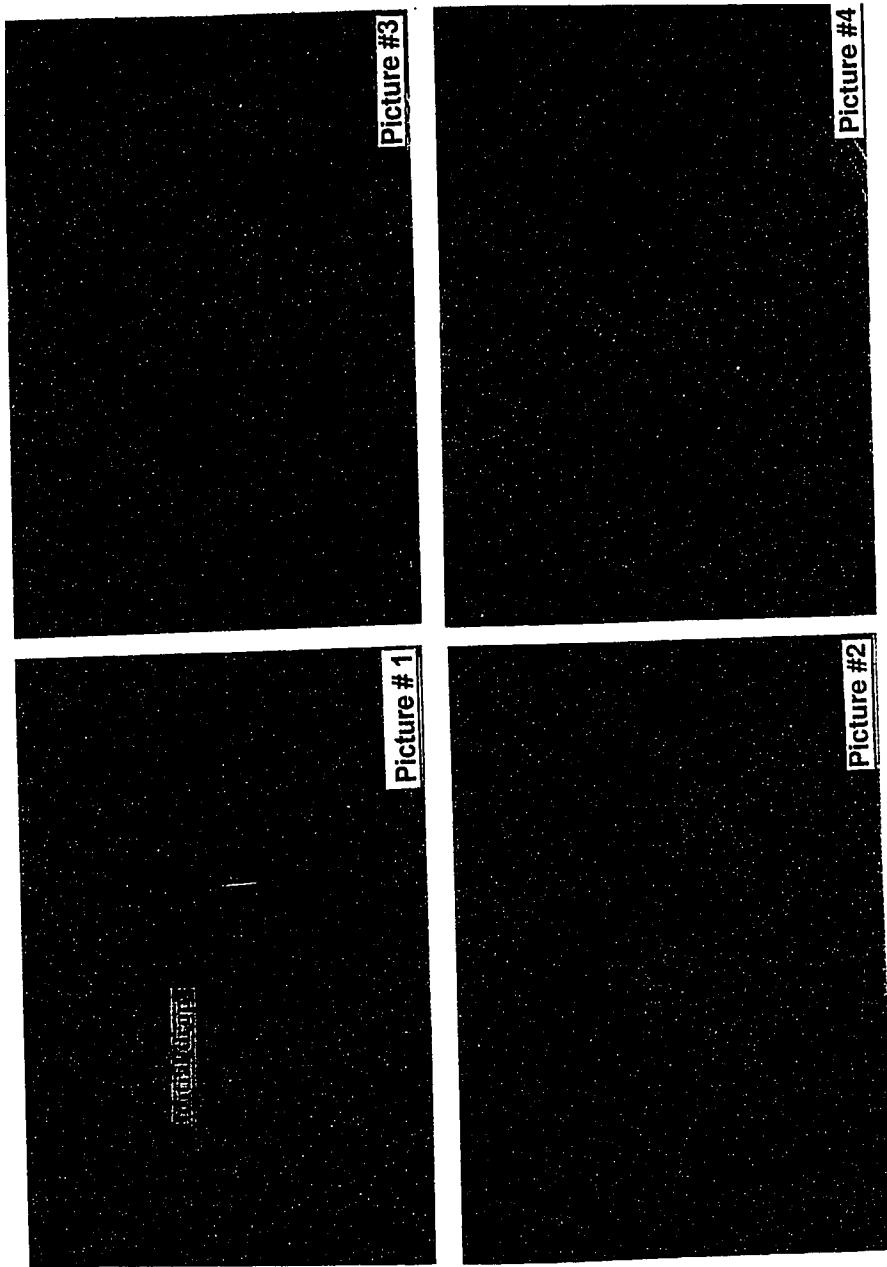
**Figure 4.3:** Drop deformation,  $\ell_d$ , as a function of the capillary number,  $Ca$ : (effect of the matrix elasticity).



**Figure 4.4:** Variation of the parameter  $a$  and the elastic contribution  $(a_E - a_N)$  with the elasticity ratio,  $k'$ .

where the terms  $(\ell_d - 1)_N$  and  $(\alpha_E - \alpha_N)$  are the viscous and elastic contributions to the drop deformation respectively. The subscripts  $E$  and  $N$  refer to elastic and Newtonian fluids respectively. Figure 4.4 shows also the elastic contribution,  $(\alpha_E - \alpha_N)$ , as a function of the elasticity ratio,  $k'$ . Considering that the small variation of the viscosity ratio is not affecting the data (Mighri et al., 1997), the results of Fig. 4.4 show a decrease of  $(\alpha_E - \alpha_N)$  with increasing  $k'$ . For high matrix elasticity ( $k' < 0.37$ ), the deformation of elastic drops in an elastic matrix under shear is higher than that of Newtonian drops in a Newtonian matrix with the same viscosity ratio and interfacial tension. However, for  $k' > 0.37$ , the elastic drops deform less than a Newtonian drop in a Newtonian matrix.

When the critical shear rate,  $\dot{\gamma}_c$ , was attained, the drop shape became unstable (time-dependent) and after a finite time, the drop broke into two or more smaller droplets. The following section presents the results for the unsteady drop deformation and breakup at the critical shear rate. Figures 4.5(a) and 4.5(b) show typical pictures of Newtonian and elastic drops undergoing unsteady deformation in Newtonian and elastic matrices respectively. For the Newtonian combination, the drop is stretched to a large aspect ratio (Fig. 4.5(a)). As the drop stretches, a waist is formed along the midsection. No fragmentation at the ends of the elongated drop was observed. The ends remain highly curved, and at the same time, the waist thins progressively until breakup, generally in two or more smaller droplets. In contrast, Fig. 4.5(b) shows clear differences in the unsteady



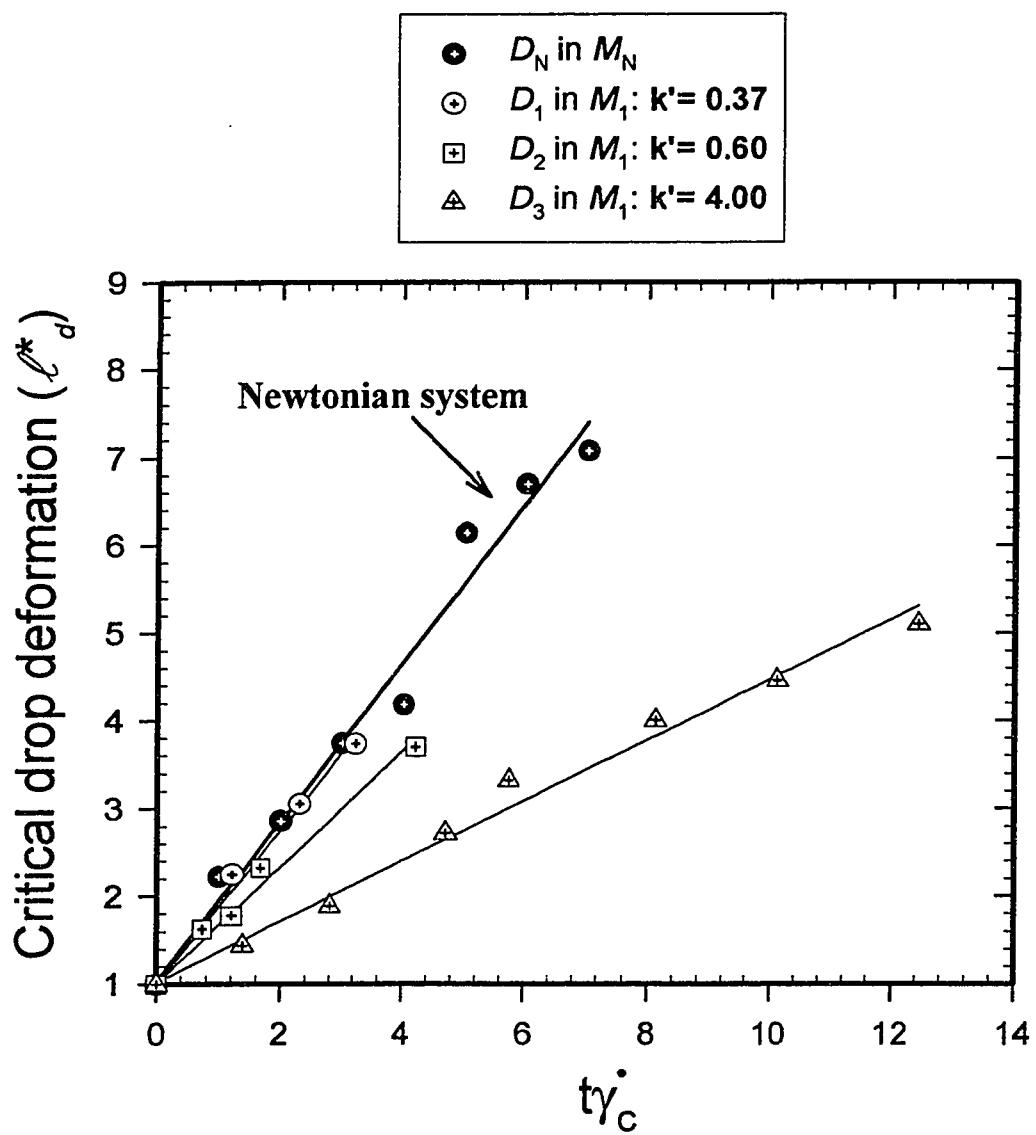
**Figure 4.5(a):** Typical pictures of a Newtonian drop under unsteady-state deformation until breakup (Newtonian combination:  $D_N$  sheared in  $M_N$ )



**Figure 4.5(b):** Typical pictures of an elastic drop under unsteady-state deformation until breakup (Elastic combination:  $D_2$  sheared in  $M_3$ ).

deformation and breakup of the elastic drop in the elastic matrix. At the beginning of the unsteady deformation, the elastic drop presents sharply curved ends. With increasing time, the drop shape becomes progressively thinner and longer. The breakup mechanism is similar to that observed by Marks et al. (1997) and called dripping. In our case, the breakup process began from the rear of the elongated drop and resulted in a series of large and small drops (satellites) on an alternating basis, as shown in the last picture of Fig. 4.5(b). Compared to the Newtonian case, elastic drops in elastic matrices were found, in general, to break more uniformly, leading to a narrower size distribution. The time dependency of the drop deformation depends upon the properties of the matrix/drop combination.

Figure 4.6 shows typical results on the effect of elasticity on the critical (unsteady) drop deformation,  $\ell_d^*$ , at the critical shear rate, for the three elastic drops  $D_1$ ,  $D_2$  and  $D_3$ , sheared in the elastic matrix,  $M_1$ . Those results are shown as a function of the dimensionless elapsed time,  $t\dot{\gamma}_c$ , from the startup of deformation at critical shear rate,  $\dot{\gamma}_c$ . The deformation of the Newtonian drop,  $D_N$ , sheared in the Newtonian matrix,  $M_N$ , is also shown in Fig. 4.6 for a comparison. In all cases, only the values of  $\ell_d^*$ , which vary as a linear function of  $t\dot{\gamma}_c$ , are presented. During the last stage of the critical deformation (i.e., just before breakup), the drop shape became non-uniform, and drop deformation strongly deviated from linearity. As in the case of the steady-state deformation, for  $k' \geq 0.37$ , the unsteady deformation (at the critical shear rate) of the



**Figure 4.6:** Critical drop deformation,  $\ell_d^*$ , at the critical shear rate as a function of the dimensionless time,  $t\dot{\gamma}_c$ .

elastic drops in elastic matrices is less than that of the Newtonian drop in the Newtonian matrix of a comparable viscosity ratio and interfacial tension. For the same value of  $t\dot{\gamma}_c$ , drop deformation decreases with increasing elasticity ratio.

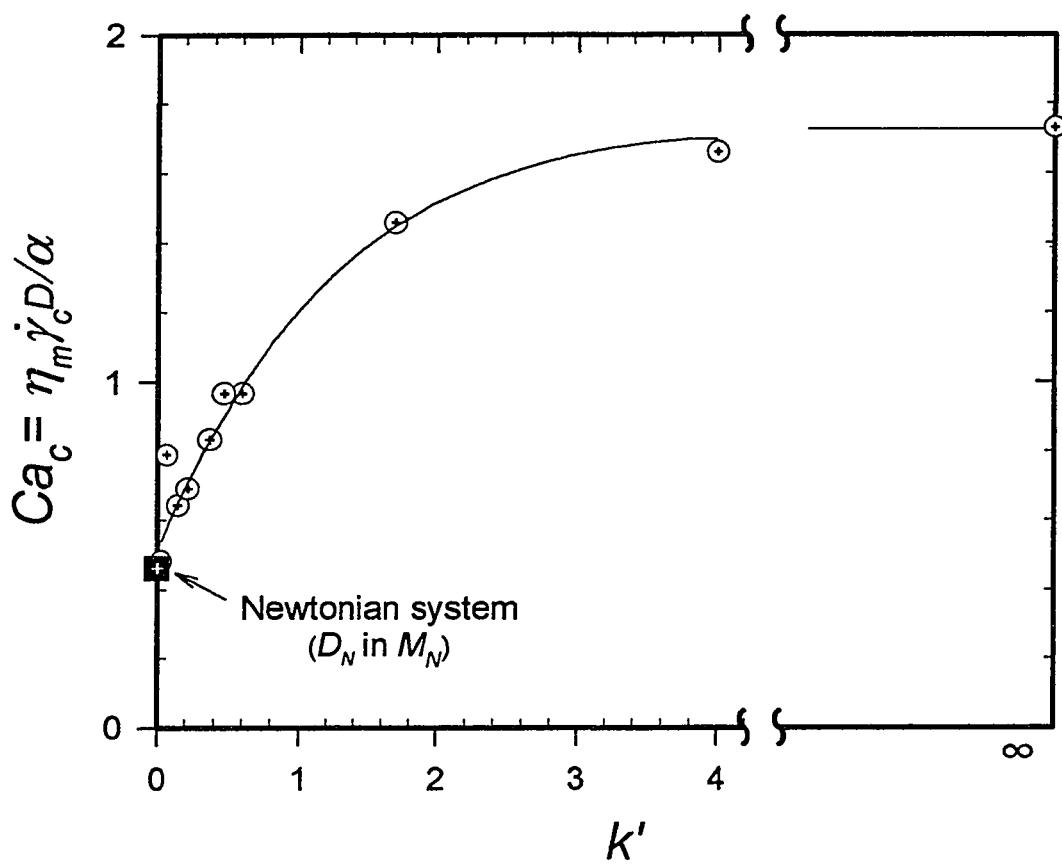
Figure 4.7 shows the variation of the critical capillary number,  $Ca_c$ , with the elasticity ratio. The value of  $Ca_c$  ( $Ca_c = 0.47$ ) for the Newtonian combination, shown for a comparison, is in agreement with that obtained by Torza et al. (1972) for a Newtonian combination of the same viscosity ratio. The data obtained for all the different drop/matrix combinations are superimposed, and show a remarkable increase of  $Ca_c$  with increasing elasticity ratio,  $k'$ . The increase of  $Ca_c$  ( $Ca_c = \eta_m \dot{\gamma}_c D / \alpha$ ) with  $k'$  is due only to the increase of  $\dot{\gamma}_c$  with  $k'$ , since the two other properties,  $\eta_m$  and  $\alpha$ , remain constant for all the fluid systems used in our study. Our results are in agreement with the results of Elmendorp and Maalcke (1985), and those of Lee and Flumerfelt (1981). They found that the critical capillary number increases with increasing drop elasticity or decreasing matrix elasticity. During their experimental study on the breakup of viscoelastic drops in a Newtonian matrix, Varanasi et al. (1994) also found that, for any given value of the viscosity ratio, the critical capillary number increases with increasing drop elasticity. Fig. 4.7 shows that the critical capillary number increases rapidly with increasing  $k'$  up to  $k'$  equal to 4. For  $k' > 4$ , the critical capillary number attains a maximum of about 1.75, which corresponds to the maximal contribution of elasticity on drop breakup. For low values of elasticity ratio, elastic drops do not exhibit

any noticeable departure from the Newtonian (inelastic) case. The values of  $Ca_c$  corresponding to the elastic combinations are approximately the same as that obtained for the Newtonian combination. This is probably due to the values of the interfacial tension,  $\alpha$ , for the elastic combinations, which are shown in Table 4.1 to be slightly larger than that of the Newtonian combination.

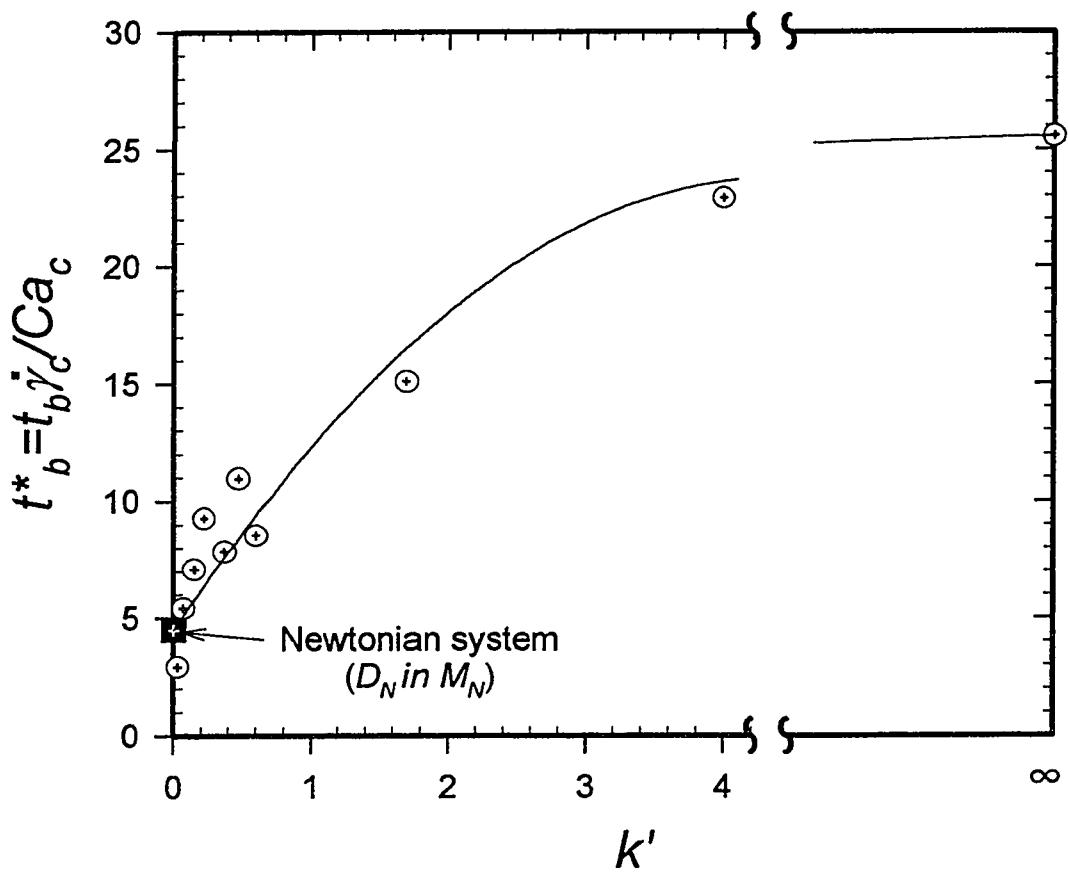
Figure 4.8 shows the dimensionless breakup time,  $t_b^*$ , as a function of the elasticity ratio,  $k'$ . The breakup time,  $t_b$ , is the elapsed time between the startup of deformation and the first breakup of the drop, and  $t_b^*$  is defined by

$$t_b^* = t_b \dot{\gamma}_c / Ca_c \quad (4.7)$$

It is evident from the results that the effect of the elasticity ratio is to increase the overall time for breakup,  $t_b^*$ . For low values of elasticity ratio, the dimensionless breakup time,  $t_b^*$ , corresponding to the elastic combinations of low elasticity ratio, is, as in the case of the critical capillary number, approximately the same as those of the Newtonian combination.



**Figure 4.7:** Variation of the critical capillary number,  $Ca_c$ , with the elasticity ratio.



**Figure 4.8:** Variation of the dimensionless breakup time,  $t_b^*$ , with the elasticity ratio.

#### 4.4 CONCLUSION

In this experimental study, a visualization system has been used to study the deformation and the critical breakup conditions of elastic drops in elastic matrices under uniform shear flow. The contribution of elasticity on drop deformation has been investigated using a variety of constant viscosity elastic (Boger) fluids. The results have shown remarkable differences in the mechanisms of drop deformation in the elastic systems compared to that in the Newtonian system of approximately the same viscosity ratio and interfacial tension. As in the case of the elongational flow (Mighri et al., 1997), the steady-state drop deformation for shear rate less than a critical value, is affected by both the drop or the matrix elasticities. The matrix elasticity helps to deform the drop, whereas the drop elasticity resists to the drop deformation. An empirical relation between the steady-state drop deformation and the capillary number was established. This relation quantifies the contribution of both the drop and matrix elasticities on the drop deformation. For high matrix elasticity ( $k' < 0.37$ ), the deformation of elastic drops in an elastic matrix under shear is higher than that of Newtonian drops in a Newtonian matrix with the same viscosity ratio and interfacial tension. However, for  $k' > 0.37$ , the elastic drops deform less than a Newtonian drop in a Newtonian matrix.

The critical shear rate and the breakup time have been found to increase with increasing elasticity ratio. For  $k' \leq 4$ , the critical capillary number increases rapidly with increasing  $k'$ ; and for  $k' > 4$ , it attains a maximum of about 1.75, which corresponds to the maximal contribution of elasticity on drop breakup.

## APPENDIX: NOMENCLATURE

$Ca$ :	Capillary number ( $Ca = \eta_m \dot{\gamma} D / \alpha$ ).
$Ca_c$ :	Critical capillary number ( $Ca_c = \eta_m \dot{\gamma}_c D / \alpha$ ).
$D$ :	Drop diameter, $m$ .
$k$ :	Viscosity ratio ( $k = \eta_d / \eta_m$ ).
$k'$ :	Elasticity ratio ( $k' = \lambda_d / \lambda_m$ ).
$L$ :	Drop length after elongation, $m$ .
$t_b$ :	Breakup time, $s$ .
$t_b^*$ :	Dimensionless breakup time ( $t_b^* = t_b \dot{\gamma}_c / Ca_c$ ).
$\ell_d, \ell_m$ :	Drop and matrix deformations.
$\ell_d^*$ :	Critical drop deformation.
$N_1$ :	Primary normal stress difference, $Pa$ .
$\alpha$ :	Interfacial tension, $mN/m$ .
$\dot{\gamma}$ :	Steady state shear rate, $s^{-1}$ .
$\dot{\gamma}_c$ :	Critical shear rate, $s^{-1}$ .
$\eta$ :	Steady state viscosity, $Pa.s$ .
$\eta_d, \eta_m$ :	Drop and matrix steady state viscosities, $Pa.s$ .
$\lambda$ :	Characteristic elastic time, ( $\lambda = N_1 / 2\eta \dot{\gamma}^2$ ), $s$ .
$\lambda_d, \lambda_m$ :	Drop and matrix characteristic elastic times, $s$ .

## References

- Boger, D. V. and R. J. Binnington, "Separation of elastic and shear thinning effects in the capillary rheometer," *Trans. Soc. Rheol.* **21**, 515-534 (1977).
- Cox, R. G., "The deformation of a drop in a general time dependent flow," *J. Fluid Mech.* **37**, 601-623 (1969).
- Elmendorp, J. J. and G. De Vos, "Measurement of interfacial tensions of molten polymer systems by means of the spinning drop method," *Polym. Eng. Sci.* **26**, 415-417 (1986).

- Elmendorp, J. J. and R. J. Maalcke, "A study on polymer blending microrheology: Part 1," *Polym. Eng. Sci.* **25**, 1041-1047 (1985).
- Flumerfelt, R. W., "Drop breakup in simple shear fields of viscoelastic fluids," *Ind. Eng. Chem. Fundam.* **11**, 312-318 (1972).
- Grace, H. P., "Dispersion phenomena in high viscosity immiscible fluid systems and application of static mixers as dispersion devices in such systems," *Chem. Eng. Comm.* **14**, 225-277 (1982).
- Gauthier, F., H. L. Goldsmith, and S. G. Mason, "Particle motions in non-Newtonian media. II : Poiseuille flow," *Trans. Soc. Rheol.* **15**, 297-330 (1971).
- Hinch, E. J. and A. Acrivos, "Long slender drops in simple shear flow," *J. Fluid Mech.* **98**, 305-328 (1980).
- Levitt, L. and C. W. Macosko, "Visualization of morphology development in polymer blends," *Soc. Plastic Eng., Conf. Proc.* **3**, 3565-3570 (1997).
- Marks, C., D. Bigio, and R. Calabrese, "Transient dependent drop breakup mechanisms," *Soc. Plastic Eng., Conf. Proc.* **3**, 3718-3723 (1997).
- Mighri, F., A. Ajji, and P. J. Carreau, "Influence of elastic properties on drop deformation in elongational flow," *J. Rheol.* **41**, 1183-1201 (1997).
- Milliken, W. J. and L. G. Leal, "Deformation and breakup of viscoelastic drops in planar extensional flows," *J. Non-Newt. Fluid Mech.* **40**, 355-379 (1991).
- Rallison, J. M., "The deformation of small viscous drops in shear flows," *Annu. Rev. Fluid Mech.* **16**, 45-66 (1984)
- Tavgac, T., "Drop deformation and breakup in simple shear fields," Ph. D Thesis (Chemical Engineering), Univ. of Houston, Houston, Texas, (1972).
- Taylor, G. I., "The viscosity of a fluid containing small drops of another fluid," *Proc. Roy. Soc., London, Ser. A* **138**, 41-48 (1932).
- Taylor, G. I., "The deformation of emulsions in definable fields of flow," *Proc. Roy. Soc., London, Ser. A* **146**, 501-523 (1934).
- Torza, S., R. G. Cox, and S. G. Mason, "Particle motion in sheared suspensions: XXVII : Transient and steady deformation and burst of liquid drops," *J. Colloid Interface Sci.*, **38**, 395-411 (1972).
- Varanasi, P. P., M. E. Ryan, and P. Stroeve, "Experimental study on the breakup of model viscoelastic drops in uniform shear flow," *Ind. Eng. Chem. Res.* **33**, 1858-1866 (1994).
- Wu, S., "Formation of dispersed phase in incompatible polymer blend: Interfacial and rheological effects," *Polym. Eng. Sc.* **27**, 335-343 (1987).

## CHAPITRE V

### SIMULATION DES EFFETS DE L'ÉLASTICITÉ SUR LA DÉFORMATION DE GOUTTES EN ÉCOULEMENT ÉLONGATIONNEL: COMPARAISON AVEC DES DONNÉES EXPÉRIMENTALES

Le principal objectif de ce dernier article est d'adapter une méthode de simulation numérique en deux dimensions, qui utilise la technique des éléments finis, pour simuler la déformation de gouttes élastiques dans une matrice élastique en écoulement élongationnel. Cette méthode tient compte à la fois de la tension interfaciale entre la goutte et la matrice et de leur niveau d'élasticité. En effet, les résultats présentés dans cet article complémentent ceux déjà obtenus expérimentalement. D'ailleurs, les données expérimentales ont été utilisées pour valider les résultats de simulation numérique. Le modèle d'Oldroyd-B a été utilisé pour décrire le comportement rhéologique de la goutte et celui de la matrice. Deux hypothèses déjà utilisées dans l'étude expérimentale ont pu être vérifiées numériquement: la présence de la goutte dans la matrice n'influence pas le champ de vitesses, et la grandeur de la vitesse élongationnelle n'affecte pas la déformation de la goutte.

## SIMULATION OF ELASTIC EFFECTS ON DROP DEFORMATION IN ELONGATIONAL FLOW: COMPARISON WITH EXPERIMENTAL DATA

BY

*F. Mighri, P. J. Carreau\*, A. Beliveau\*\* and A. Fortin\*\*  
Centre de Recherche Appliquée sur les Polymères, CRASP;*

*Department of Chemical Engineering  
Ecole Polytechnique of Montreal, C. P. 6079, Stn. Centre-Ville,  
Montreal, QC, H3C 3A7 Canada*

*\*\* Department of Mathematics and Industrial engineering  
Ecole Polytechnique of Montreal, C. P. 6079, Stn. Centre-Ville,  
Montreal, QC, H3C 3A7 Canada*

### Synopsis

The deformation of a single viscoelastic drop suspended in a viscoelastic medium under uniaxial elongational flow through a confined converging channel has been simulated by means of a two-dimensional time-dependent numerical method using finite element computations. The simulated drop deformation, obtained for different drop/matrix combinations, was compared to experimental results, obtained for an axisymmetric converging flow, using equivalent experimental conditions. The Oldroyd-B constitutive equation was used for the simulation of the rheological behavior of the constant viscosity elastic fluids. Good agreement between the simulated results and the experiments is shown. The simulation predicts the same elasticity effects on drop deformation as observed experimentally, i. e., drop elasticity enhances the drop resistance to the deformation, whereas the matrix elasticity had the opposite effect: the drop deformation increases with increasing matrix elasticity.

### 5.1 INTRODUCTION

Numerical simulations of realistic flows of polymer blends are of practical interest in order to develop and optimize polymer processing techniques such as mixing and compounding. It is quite obvious that realistic simulations lead to better quality of the final product and reduce production costs.

During the past two decades, numerous constitutive equations have been proposed for non-Newtonian fluids. The search for appropriate constitutive equations for polymeric materials is a major research challenge for rheologists. Generalized Newtonian models are the most simple class of non-Newtonian models, but they only describe the shear rate dependence of the viscosity; neither normal stresses nor any other non-Newtonian effect are included. Non-linear viscoelastic models attempt to model the rheological behavior of viscoelastic (polymeric) fluids in any type of flow, shear, elongation and complex flow situations. A detailed discussion of the different rheological models can be found in the book of Carreau et al. (1997).

With the development of new reliable numerical techniques, simulations with viscoelastic constitutive equations can be presently made for a reasonable range of complex flows. The mission is now to compare numerical simulations of these flows with experimental data, and to assess the constitutive models used. We pursue our study on the application of finite element method (FEM) to the deformation of a drop in a confined convergent channel. This problem is of industrial and fundamental importance since converging flows occur frequently in polymer processing applications such as mixing and compounding. The

transient nature of the flow process and elastic effects make the simulation of drop deformation challenging. Both Newtonian and constant viscosity elastic systems (Boger fluids) are studied. The Oldroyd-B model is used in the simulation program because it adequately describes the rheological properties of Boger fluids (Prilutski et al., 1983; Boger, 1994).

To follow the matrix/drop interface during deformation, two strategies are generally used during computation: (i) The first strategy tracks the interface and requires full or partial remeshing of the domain occupied by the two fluids. Consequently, the mesh evolves until it matches the different interfaces. However, this strategy requires very efficient remeshing techniques. (ii) The second strategy, so-called capturing strategy, requires a single mesh and the interface between the drop/matrix fluids is determined using a function  $F$  (often called the pseudo-concentration) which is computed in the whole domain occupied by the two fluids. This strategy was adopted in the pseudo-concentration method of Thompson (1986), Thompson-Smelser (1988) and Lafaurie et al. (1994). The reader is also referred to the work of Shen (1992) for the application of the pseudo-concentration method in injection molding. A major drawback of this method is that the matrix/drop interface is not explicitly computed but obtained in a *posteriori* manner as an isovalue of  $F$ . Consequently, it is difficult to impose interfacial boundary conditions as in the case of polymer blends for which the interfacial tension is large. Beliveau et al. (1997) presented a way to overcome this difficulty and to impose interfacial tension for the pseudo-concentration method. The reader is also referred to the work of Beliveau (1997) for more details on mathematical developments.

The method of Beliveau et al. (1997) is used in this study to compute the planar deformation of a drop in a confined convergent channel. Although an axisymmetric or three-dimensional simulation of drop deformation is more realistic, this needs a complex formulation of the problem and consequently, important computing resources. We prefer to test, firstly, if a two-dimensional simulation using the numerical method of Beliveau et al. (1997) can predict, at least qualitatively, data from our earlier study on drop deformation in an axisymmetric converging channel (Mighri et al., 1997).

This paper is organized as follows: the constant viscosity elastic fluids of different elasticities used in the experimental study are discussed in Section 5.2. All the rheological parameters needed by the numerical simulation are measured, or deduced from rheological measurements of the elastic fluids. The governing equations for the Newtonian and Oldroyd-B models are presented in Section 5.3. Numerical results and discussions are given in Section 5.4. Calculations are carried out, for a two-dimensional converging geometry, first for a Newtonian fluid system, and second for different elastic systems of approximately constant viscosity ratio,  $k = \eta_d / \eta_m$ , and constant interfacial tension,  $\alpha$ .

## 5.2 CONSTANT VISCOSITY ELASTIC (BOGER) FLUIDS USED FOR COMPARISON WITH NUMERICAL SIMULATIONS

The matrix fluids,  $M_i$ , were dilute solutions of small amounts of high molecular weight polyacrylamide, *PAA*, in a Newtonian solvent (a mixture of maltose syrup and distilled water). For the dispersed drops,  $D_i$ , small amounts of high molecular weight polyisobutylene, *PIB*, were dissolved in a Newtonian solvent (a mixture of kerosene and

low molecular weight Newtonian polybutene, *PB*). Table 5.1 lists the different fluids and their composition. More details on the technique used for the solution preparation and their rheological characterization are given in our previous work on drop deformation in elongation flow (Mighri et al., 1997). As a characteristic of these solutions, the viscosity is approximately constant with shear rate and the first normal stress difference varies with the square of the shear rate, up to moderately high shear rates. We assume that the solvent viscosity is the same for all solutions although the formulation is slightly changed, as shown in Table 5.1. The corresponding steady state shear viscosity,  $\eta_s$ , were measured at room temperature ( $25^\circ\text{C}$ ) using a R-18 Weissenberg rheogoniometer and found to be  $4.9 \text{ Pa.s}$  for the drop fluid and  $11.0 \text{ Pa.s}$  for matrix fluids.

Prilutski et al. (1983) have clearly shown that the observed steady and dynamic shear properties for Boger fluids can be explained within the framework of elastic dumbbell theory. Such properties are more consistent with the Oldroyd-B model than with the convected Maxwell model. On the basis of many experimental studies, Boger (1994) also concluded that, despite its relative simplicity, the Oldroyd-B model is adequate for predicting the rheology in simple or complex flows of constant viscosity elastic (Boger) fluids.

The Oldroyd-B constitutive equation is given by (Prilutski et al., 1983):

$$\underline{\underline{\tau}} + \lambda_1 \delta \underline{\underline{\tau}} / \delta t = \eta \left( \underline{\dot{\gamma}} + \lambda_2 \delta \underline{\dot{\gamma}} / \delta t \right) \quad (5.1)$$

where  $\underline{\tau}$  is the stress tensor,  $\underline{\dot{\gamma}}$  is the rate of deformation tensor, and  $\delta/\delta t$  is the convected Oldroyd derivative. The parameters  $\lambda_1$  and  $\lambda_2$  are respectively the relaxation and retardation times. The interpretation of fluid behavior in terms of elastic dumbbell theory is entirely consistent with the Oldroyd-B model (Boger, 1994), where the solution viscosity,  $\eta$ , is visualized as a linear combination of the solvent viscosity ( $\eta_s$ ) and the polymer contribution to the solution viscosity ( $\eta_p$ ):

$$\eta = \eta_p + \eta_s \quad (5.2)$$

The retardation time,  $\lambda_2$ , is expressed in terms of the relaxation time and the solvent and solution viscosities using the following relation (Phan-Thien, 1983; Prilutski et al., 1983):

$$\lambda_2 = \lambda_1 (\eta_s / \eta) \quad (5.3)$$

The model parameters can be obtained from the measured dynamic viscosity,  $\eta'$ , and the storage modulus,  $G'$ , as a function of the frequency, using the following equations (Carreau et al., 1997):

$$\eta' = \frac{\eta(1 + \lambda_1 \lambda_2 \omega^2)}{(1 + \lambda_1^2 \omega^2)} \quad (5.4)$$

and

$$G' = \frac{\eta(\lambda_1 - \lambda_2)\omega^2}{(1 + \lambda_1^2 \omega^2)} \quad (5.5)$$

Thus, the Oldroyd-B model prediction for the first normal stress difference,  $N_1$ , could be obtained by the following relation (Carreau et al., 1997):

$$N_1 = \psi_1 \dot{\gamma}^2 = 2\eta(\lambda_1 - \lambda_2)\dot{\gamma}^2 \quad (5.6)$$

where  $\psi_1$  is the first normal stress coefficient. Table 5.2 shows the selected matrix and drop fluids to be used later in the numerical simulations, and their corresponding Oldroyd-B relaxation time,  $\lambda_1$ . To be coherent with our previously experimental study, the same designation as before was used for the selected fluids. It should be mentioned that the values of the interfacial tension, as measured using the spinning drop technique, were approximately constant at about  $22 \text{ mN/m}$  for all the matrix/drop combinations. This constant value of the interfacial tension will then be used for all the simulations.

Figures 5.1(a) and 5.2(a) compares the steady and dynamic shear viscosities for the drop fluid,  $D_1$ , and the matrix fluid,  $M_1$ , obtained at  $25^\circ\text{C}$ , with the predictions of the Oldroyd-B model. The results clearly show that the Oldroyd-B model well predicts the shear viscosity for Boger fluids. Figures 5.1(b) and 5.2(b) show the observed first normal stress difference,  $N_1$ , and the storage modulus,  $G'$ , for the drop and matrix fluids,  $D_1$  and  $M_1$  respectively, in comparison with the predicted results determined from the basic fluid parameters of the Oldroyd-B model. For low frequencies and shear rates, the storage modulus and the first normal stress difference are closely related ( $N_1(\dot{\gamma}) \approx 2G'(\omega)$ ). The agreement between the model predictions and the corresponding experimental data is relatively good for the first normal stress difference. For high frequencies, the Oldroyd-B model poorly predicts the storage modulus. The model prediction of  $G'$  holds with the experimental data only in the limit of low frequencies.

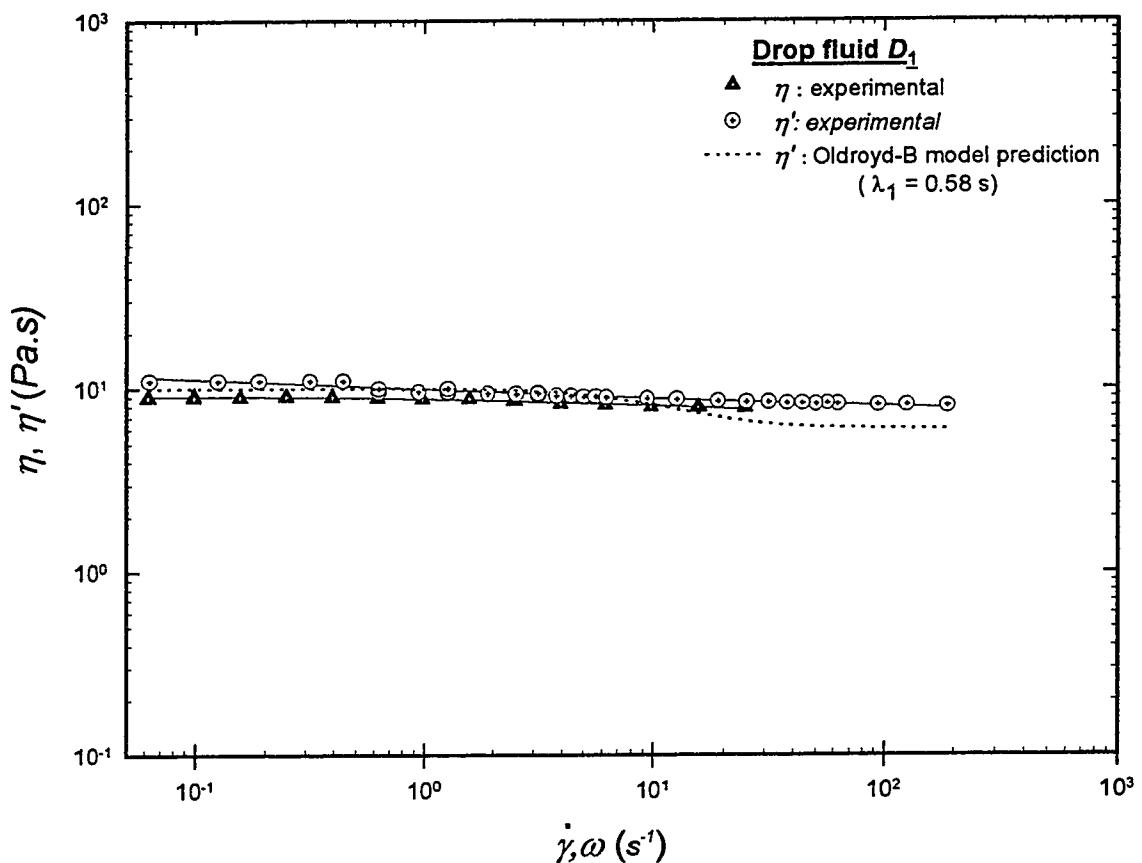
**Table 5.1:** Designation and composition of the elastic fluids used.

	<b>Designation</b>	<b>Formulation <sup>a)</sup></b>
Matrix fluids	$M_N$	0.00% PAA + 92.0% MS + 8.00% W.
	$M_1$	0.03% PAA + 92.0% MS + 7.97% W.
	$M_2$	0.06% PAA + 92.0% MS + 7.94% W.
	$M_3$	0.10% PAA + 92.0% MS + 7.90% W.
Drop fluids	$D_N$	0.000% PIB + 93.0% PB + 7.00% Ker.
	$D_1$	0.244% PIB + 92.8% PB + 6.98% Ker.
	$D_2$	0.600% PIB + 91.0% PB + 8.40% Ker.
	$D_3$	0.800% PIB + 93.0% PB + 6.20% Ker.
	$D_4$	1.200% PIB + 92.0% PB + 6.80% Ker.

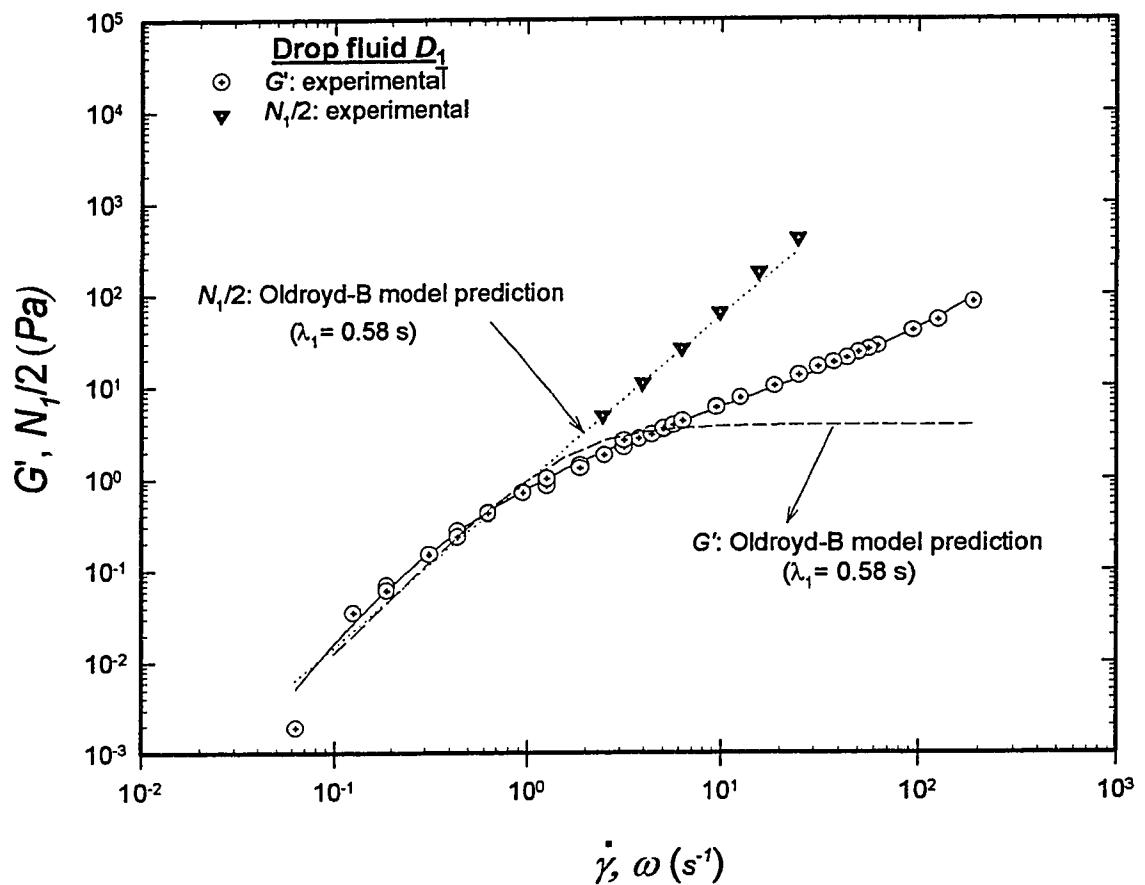
<sup>a)</sup> All percentages are in weight.

**Table 5.2:** Fluid systems and corresponding Oldroyd-B relaxation times.

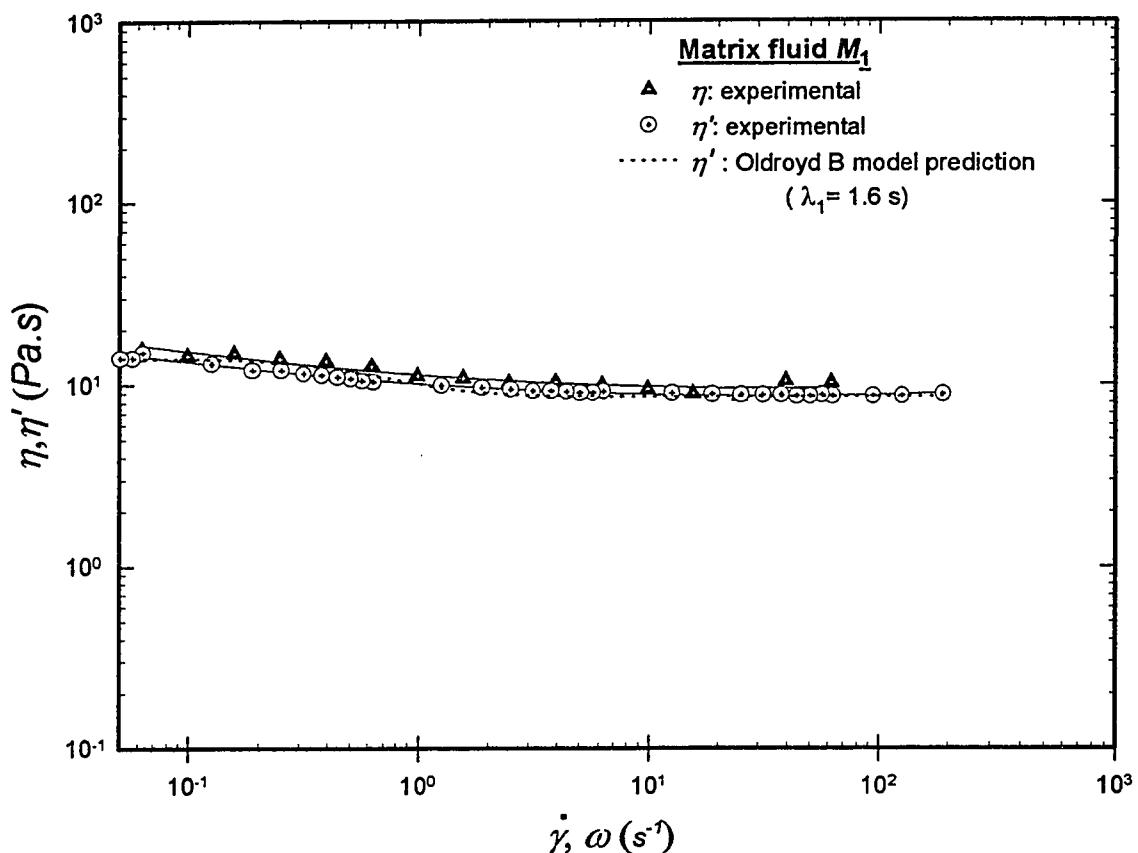
	<b>Oldroyd-B</b>	
	<b>Designation</b>	<b>relaxation time</b>
		$\lambda_1$ (s)
Matrix fluids	$M_N$	0.00
	$M_1$	1.60
	$M_2$	3.60
	$M_3$	6.10
Drop fluids	$D_N$	0.00
	$D_1$	0.58
	$D_2$	1.98
	$D_3$	3.55
	$D_4$	6.50



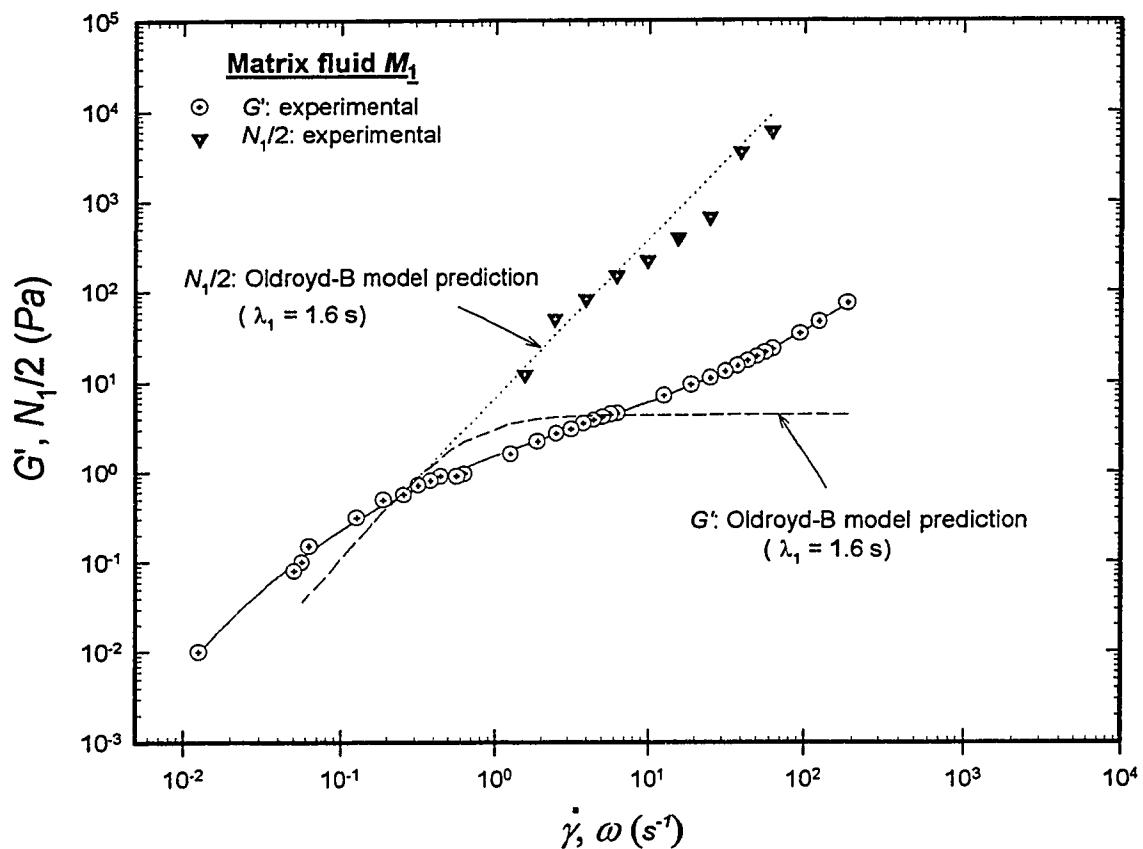
**Figure 5.1(a):** Drop fluid  $D_1$ : Steady-state and dynamic shear viscosity,  $\eta$  and  $\eta'$  respectively: Comparison with the Oldroyd-B model predictions.



**Figure 5.1(b):** Drop fluid  $D_1$ : First normal stress difference,  $N_1$ , and storage modulus,  $G'$ , together with the Oldroyd-B model predictions.



**Figure 5.2(a):** Matrix fluid  $M_1$ : Steady-state and dynamic shear viscosity,  $\eta$  and  $\eta'$  respectively: Comparison with the Oldroyd-B model predictions.



**Figure 5.2(b):** Matrix fluid  $M_1$ : First normal stress difference,  $N_1$ , and storage modulus,  $G'$ , together with the Oldroyd-B model predictions.

### 5.3 THEORETICAL FORMULATION OF THE PROBLEM

This section presents the momentum and mass conservation equations together with the equilibrium and non-miscibility conditions on the interface between drop and matrix phases. We consider the case of a two-dimensional domain,  $\Omega$ , occupied by two viscoelastic incompressible and immiscible fluids, the matrix and the drop phases respectively. Inertia terms in the momentum equations have been neglected, since most applications to polymers involve small Reynolds numbers. We denote  $\Omega_i$  ( $i = 1, 2$ ) the domain occupied by the matrix or drop of viscosity  $\eta_i$  respectively, and  $\Gamma$  the interface between the drop and matrix fluids.

#### 5.3.1 Governing equations

The conservation of momentum equation is then given by

$$\nabla \cdot \underline{\underline{\sigma}}_i = 0 \quad \forall \vec{x} \in \Omega_i \quad (i = 1, 2) \quad (5.7)$$

and, with neglecting compressibility effect, the mass conservation equation is classically written as:

$$\nabla \cdot \vec{v} = 0 \quad \forall \vec{x} \in \Omega_i \quad (i = 1, 2) \quad (5.8)$$

In both equations,  $\vec{v} = \vec{v}(\vec{x}, t)$  is the velocity field,  $\vec{x} = (x_1, x_2)$  is the position in the domain, and  $\underline{\underline{\sigma}}_i$  is the Cauchy stress tensor given by

$$\underline{\underline{\sigma}}_i = \underline{\underline{\tau}}_i - p_i \underline{\underline{I}} \quad \forall \vec{x} \in \Omega_i \quad (i = 1, 2) \quad (5.9)$$

in which  $p_i(\vec{x}, t)$  corresponds to the pressure field, and  $\underline{\underline{I}}$  the unity tensor.

The problem is completely defined when the appropriate rheological constitutive equation is substituted for the extra-stress field,  $\underline{\underline{\tau}}_i$ . For the Newtonian case, the relation between the stress field and the rate of deformation tensor,  $\dot{\underline{\underline{\gamma}}}$ , is given by

$$\underline{\underline{\tau}}_i = \eta_i \dot{\underline{\underline{\gamma}}} \quad (5.10)$$

Substitution of  $\underline{\underline{\tau}}_i = \eta_i \dot{\underline{\underline{\gamma}}}$  in Eqs. 5.9 and 5.7 respectively yields to standard Stokes equation.

The above system of equations has to be satisfied everywhere in the domain  $\Omega$ , i.e., in the matrix and drop phases respectively.

### 5.3.2 The non-miscibility equation

The first condition on the interface,  $\Gamma$ , is the non-miscibility of the matrix and drop fluids.

If the interface is in implicit form:

$$F(\vec{x}, t) = c \quad (5.11)$$

where  $t$  is the time and  $c$  is a constant, the function  $F$ , so-called pseudo-concentration function, must verify the following relation (Thompson, 1986; Thompson et al., 1988; Lafaurie et al., 1994):

$$\frac{\partial}{\partial t} F(\vec{x}, t) + (\vec{v} \cdot \nabla) F(\vec{x}, t) = 0 \quad \forall \vec{x} \in \Gamma \quad (5.12)$$

Equation 5.12 means that the function  $F$  is constant along the streamlines at the interface,  $\Gamma$ , i.e., a particle of fluid situated on  $\Gamma$  always remains on  $\Gamma$ . This can be generalized to

the whole domain, i. e., a particle of fluid situated in the domain  $\Omega_i$  always remains in  $\Omega_i$ . Equation 5.12 is then valid for the whole domain  $\Omega$ .

For the pseudo-concentration method, the immiscibility condition is automatically satisfied. Indeed, defining the pseudo-concentration function,  $F$ , as equal to 0 on the domain  $\Omega_1$  occupied by the matrix fluid and 1 on the domain  $\Omega_2$  occupied by the drop fluid. The interface can then be recovered as the isovalue 0.5 of the function  $F$  (see Beliveau et al., 1998, for more details).

### **5.3.3 The equilibrium equation at the interface**

The second condition on the interface merely states that the interface is at equilibrium and can be written as:

$$\underline{\underline{\sigma}}_I \cdot \vec{n} = \underline{\underline{\sigma}}_2 \cdot \vec{n} + \frac{\alpha}{R} \vec{n} \quad \forall \vec{x} \in \Gamma \quad (5.13)$$

where the subscripts  $I$  and 2 refer to the matrix and drop fluids respectively.  $R$  is the curvature of the interface,  $\vec{n}$  the normal vector to  $\Gamma$  at  $\vec{x}$ , and  $\alpha$  is the interfacial tension.

### **5.3.4 The variational formulation of the governing equations using the pseudo-concentration function, $F$ .**

The pseudo-concentration method allows us to consider the whole matrix/drop domain, avoiding the subdivision of  $\Omega$  into two separate subdomains. To achieve this, the governing equations are rewritten as follows:

$$\nabla \cdot \underline{\underline{\sigma}} + \frac{\alpha}{R} \bar{n} \delta_{\Gamma} = 0 \quad \forall \bar{x} \in \Omega \quad (5.14)$$

$$\nabla \cdot \vec{v} = 0 \quad \forall \bar{x} \in \Omega \quad (5.15)$$

$$\frac{\partial F}{\partial t} + (\vec{v} \cdot \nabla) F = 0 \quad \forall \bar{x} \in \Omega \quad (5.16)$$

with appropriate boundary conditions. Here  $\delta_{\Gamma}$  is the Dirac distribution on  $\Gamma$ . If the interface is smooth, which is the case for immiscible matrix/drop fluids, the pseudo-concentration function,  $F$ , is related to the Dirac distribution by

$$\nabla F = \bar{n} \delta_{\Gamma} \quad (5.17)$$

which is valid in the entire domain  $\Omega$  and in the particular on the interface  $\Gamma$  (See Beliveau, 1997; and Beliveau et al., 1998, for more details).

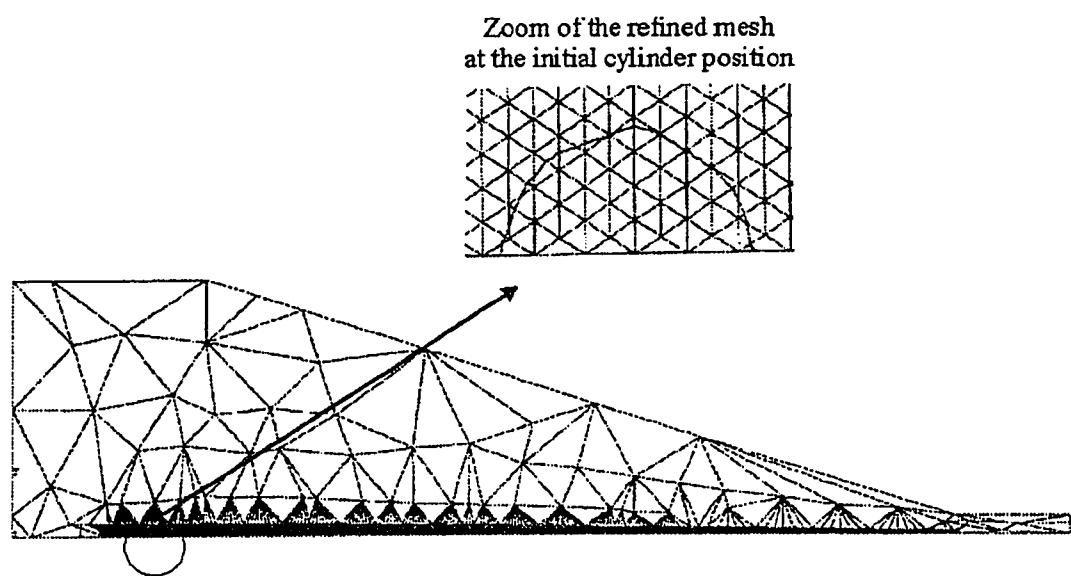
### 5.3.5 Discretization

The above system of equations is solved by a two-dimensional finite element method. For a given value of  $F$ , the system of equations 5.14 and 5.15 is discretized. The resulting discretized system is then solved by the Uzawa algorithm as described by Fortin et al. (1985). The transport equation 5.12 is solved by a modified Lesaint-Raviart method also known as the discontinuous Galerkin method (Beliveau, 1997). Finally, the global system of equations 5.14, 5.15 and 5.16 is coupled via a Newtonian-Krylov (Generalized Residual Method: GMRES).

#### 5.4 RESULTS AND DISCUSSION

This section presents some results of numerical simulation of planar drop deformation in elongational flow. The accuracy of the numerical method, using the pseudo-concentration function,  $F$ , to recover the drop shape, will be tested by comparison with experimental results on drop deformation, previously obtained for an axisymmetric converging section (Mighri et al., 1997). We will examine if the obtained two-dimensional simulated results are at least in qualitative agreement with the data from our earlier study.

The simulated flow channel was composed of two short rectangular channel sections, situated on each side of the convergent channel [Fig. 5.3]. The main reason for this was to impose boundary conditions (velocity and stress profiles) far away from the concerned (convergent) flow section. The depth of channel was supposed to be small, compared to its width, in order to neglect side effects and to suppose a two-dimensional flow field. The drop was simulated by a long cylinder of the same diameter, placed perpendicular to the flow and undergoing deformation along the flow axis. In order to save computational time and for reason of symmetry, we considered only one half of the flow domain, as depicted in Fig. 5.3. The figure shows the typical mesh used during computations. The used mesh had 2394 elements and was refined in all the region crossed by the simulated drop in order to get more precision at the interface region between the drop and the matrix fluids. The time step of the calculation,  $\Delta t = 0.3$  s, was assumed to be enough to obtain a good precision for the time evolution of the drop shape.



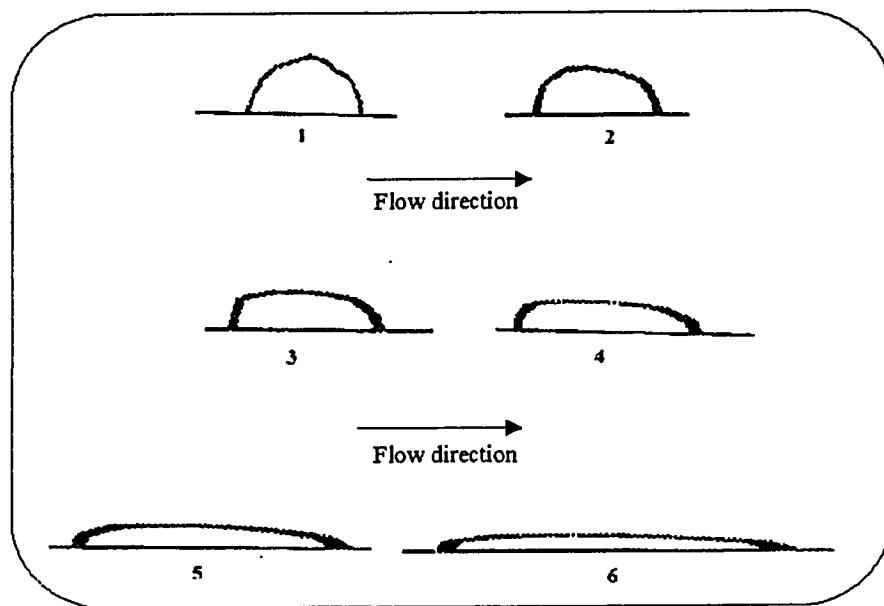
**Figure 5.3:** convergent flow channel and typical mesh used for numerical simulation.

Many authors have shown the existence of a transition zone at the end of the rectangular section in which the flow is transformed slowly to a convergent flow. It is obvious to see that simulated drop deformation at the entrance of the converging section was slightly higher than unity since drop elongation began, not exactly at the entrance, but slightly before. Due to experimental limitations, we were not able to measure this small deformation. In their study, Van Der Reijden-Stolk et al. (1986) used a shifted coordinate system to take into account the transition zone and to locate exactly the beginning of the convergent flow in the cylindrical section.

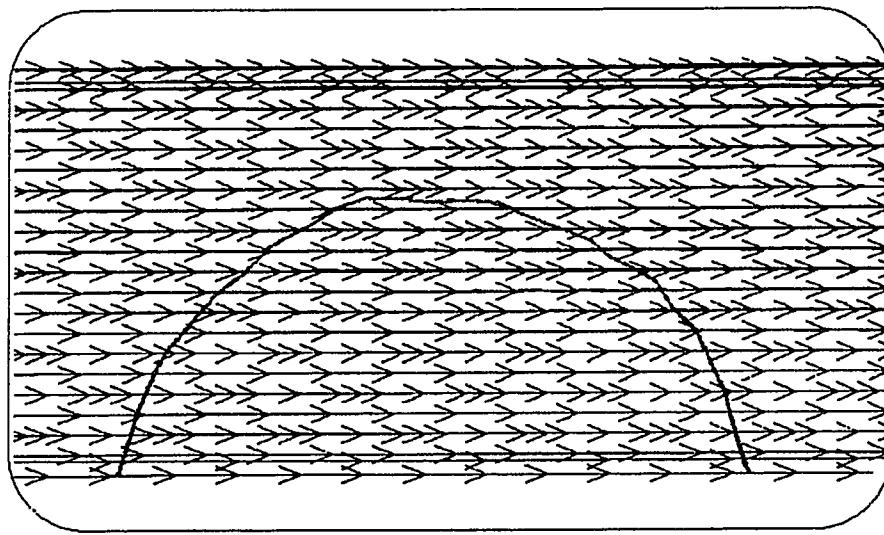
Figure 5.4 shows typical evolution of simulated drop shape for the elastic drop  $D_4$  in the matrix  $M_1$ , undergoing elongation at various positions along the flow axis. A drop of circular shape of initial diameter equal to  $1\text{ mm}$  was initially placed in the rectangular section, exactly  $4\text{ mm}$  from the entrance of the converging section. At time  $t = 0$ , the drop was subjected to the motion of the matrix fluid and the simulation proceeded in time from the given initial boundary condition. At each time step, the drop proceeded further in the cone and the numerical simulation gave the position of the interface between the drop and the matrix. As mentioned in Section 5.3 and as explained by Beliveau et al. (1998), the interface was recovered as the isovalue  $0.5$  of the pseudo-concentration function,  $F$ . Due to small numerical diffusion at the interface, basically due to the adopted mesh, it was impossible to reproduce with high precision the nonuniform drop shape as observed experimentally for viscoelastic drops of diameters higher than  $1.2\text{ mm}$ . Nevertheless, a drop diameter of  $1\text{ mm}$  was used for all the simulations. This diameter was approximately

the highest diameter, used in our experimental study (Mighri et al., 1997), for which we didn't observe any significant effects of the initial drop size on drop deformation. The numerical method well conserves the mass of the drop fluid, especially for drop deformation less than 4. For higher deformation, a small decrease of the drop volume was detected. We believe that this was basically due to the number of elements inside the drop which became insufficient (to make accurate calculations) at the end of the convergence, where the drop was highly elongated. A better mesh refinement of the domain crossed by the drop will lead to better results, but storage problems forced us to adopt the actual mesh.

Figure 5.5 shows the velocity field (represented by vectors), inside and outside the drop  $D_4$ , during deformation in the matrix  $M_1$ . The flow seems to be not perturbed by the presence of the drop. Also, the velocity field inside the zone crossed by the drop are approximately parallel to the flow axis and are of the same magnitude. This confirms that the velocity profile is approximately constant near the flow axis, and the flow is highly elongational in that region, as mentioned in our previous work (Mighri et al., 1997).



**Figure 5.4:** Typical evolution of a simulated drop shape at six different positions along the flow axis (matrix/drop combination:  $M_1/D_4$ )



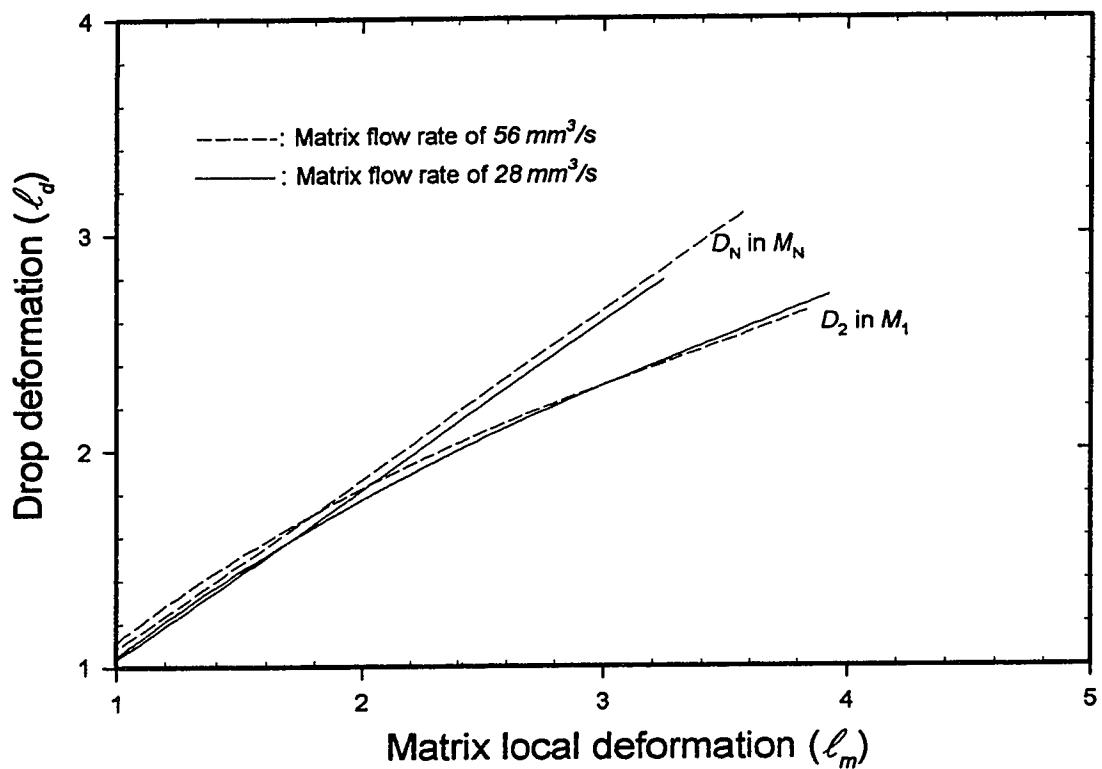
**Figure 5.5:** The velocity field inside and outside the drop (matrix/drop combination:  $M_1/D_4$ )

As in the experimental study (Mighri et al., 1997), the aspect ratio,  $\ell_d = L/D$ , was also used as the measure of drop deformation because it is a sensitive measure for highly elongated drops (Milliken and Leal, 1991).  $L$  is the major axis of the deformed drop and  $D$  is its initial diameter. The Henkey strain,  $\varepsilon_m$ , was also used for the matrix strain measure and the corresponding stretch ratio was  $\ell_m = e^{\varepsilon_m}$ . In the experimental study, drop deformation was presented as a function of the matrix deformation because a linear relationship was observed between the drop and matrix deformations. The drop deformation was then a function of the matrix total strain,  $\varepsilon_m = \dot{\varepsilon}t$ , the product of the elongational rate,  $\dot{\varepsilon}$ , and time of deformation,  $t$ . We also found it of interest to test numerically if the drop deformation is affected by the elongational rate. We simulated the drop deformation, under two different matrix flow rates, for the Newtonian combination,  $M_N/D_N$ , and the elastic combination,  $M_1/D_2$ . Figure 6.6 shows that, doubling the matrix flow rate from  $28 \text{ mm}^3/\text{s}$  to  $56 \text{ mm}^3/\text{s}$  had no significant effect on drop deformation for both the Newtonian and elastic combinations. Thus it appears that the drop deformation is uniformly related to the matrix deformation (a slow deformation during a long time gives approximately the same result as a fast deformation during a short time, provided that the total elongation remains approximately constant). To facilitate the comparison between the simulated and experimental results, simulated drop deformation was then presented as a function of the matrix local deformation along the flow axis, with the same manner as in the experimental study.

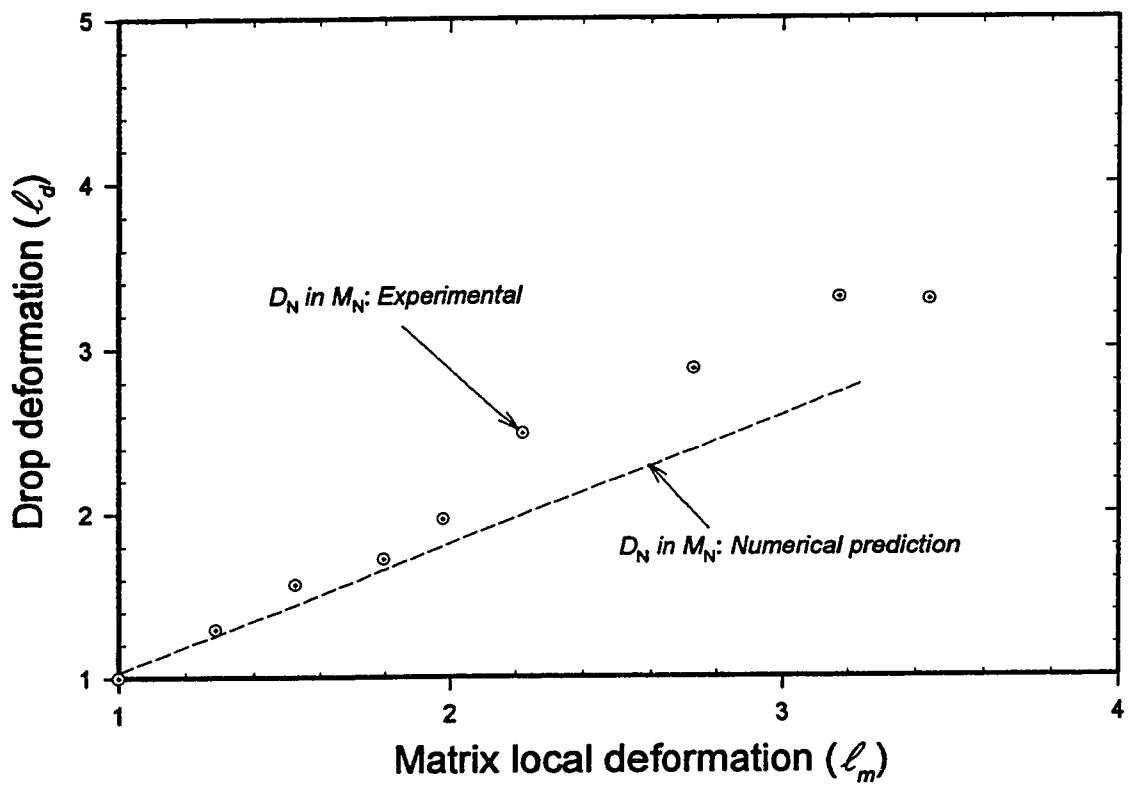
Figure 6.7 shows the two-dimensional simulated drop deformation (dashed line) for the Newtonian matrix/drop combination ( $M_N/D_N$ ), together with the corresponding experimental results (open circles), obtained for the axisymmetric converging flow. The simulation predicts a linear relationship between the drop and matrix deformations, which was also observed experimentally. Good agreement was observed between the numerical prediction and the experiment for matrix deformation up to 2. For higher matrix deformation, the predicted drop deformation is lower than that observed experimentally. A maximum deviation of approximately 10% was observed for a matrix deformation of about 3.2. We believe that the difference is basically due to the two-dimensional calculations. The predicted drop deformation is then supposed to be lower than the experimental deformation obtained for an axisymmetric converging flow, for which stresses are higher than in the simulated situation.

To examine how the effect of drop and matrix elasticities on drop deformation can be simulated by the developed numerical technique, two simulations were firstly done for two elastic matrix/drop combinations ( $M_1/D_2$  and  $M_1D_4$ ). As mentioned before in Section 5.2, the drop and matrix elasticities were expressed in terms of the Oldroyd-B relaxation times. Figures 5.8(a) and 5.8(b) show the predicted drop deformations (dashed lines), together with the experimental results (open circles) obtained for the same matrix/drop combinations. In both figures, we note a satisfactory agreement between the simulations and the experiments for a matrix deformation up to 5. Although linearity between the drop and matrix deformations was observed for matrix deformations up to 3, a small non-

linearity is predicted for higher matrix deformation. Considering that we used a two-dimensional simulation, the prediction of the elasticity effects on drop deformation seems to be quantitatively acceptable for matrix local deformation up to 4.



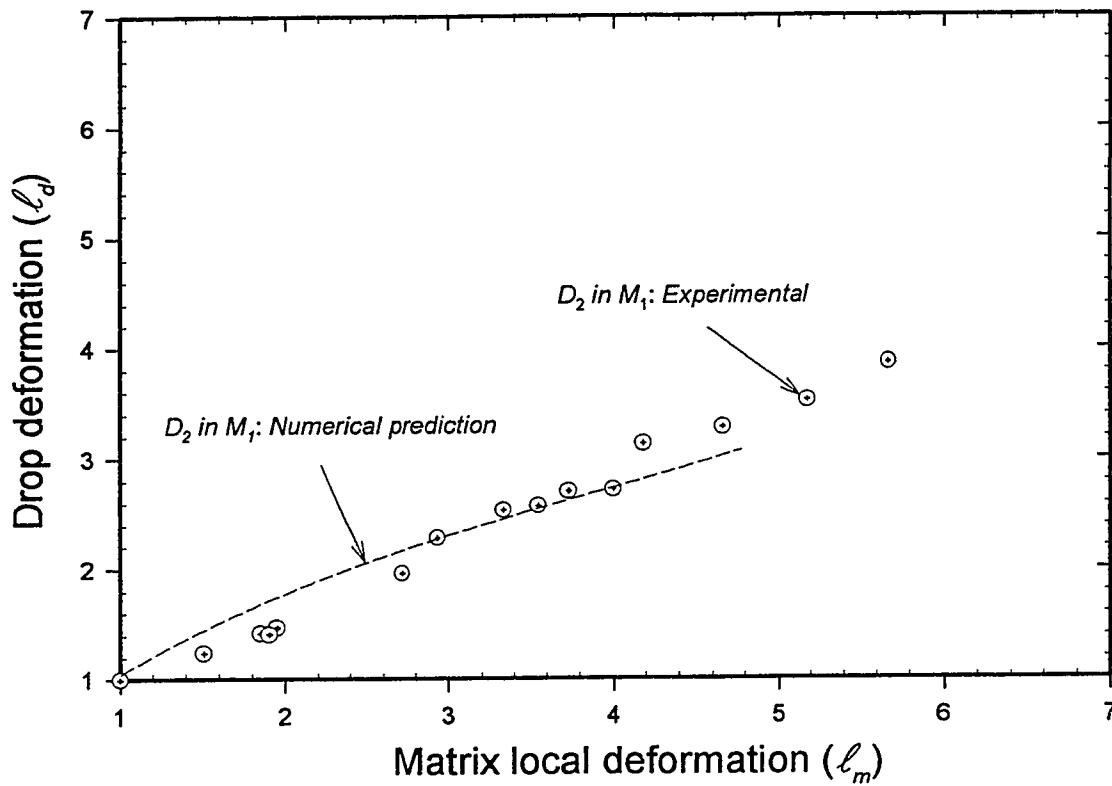
**Figure 5.6:** Effect of the matrix flow rate on drop deformation for the matrix/drop combinations  $M_N/D_N$  and  $M_I/D_2$ .



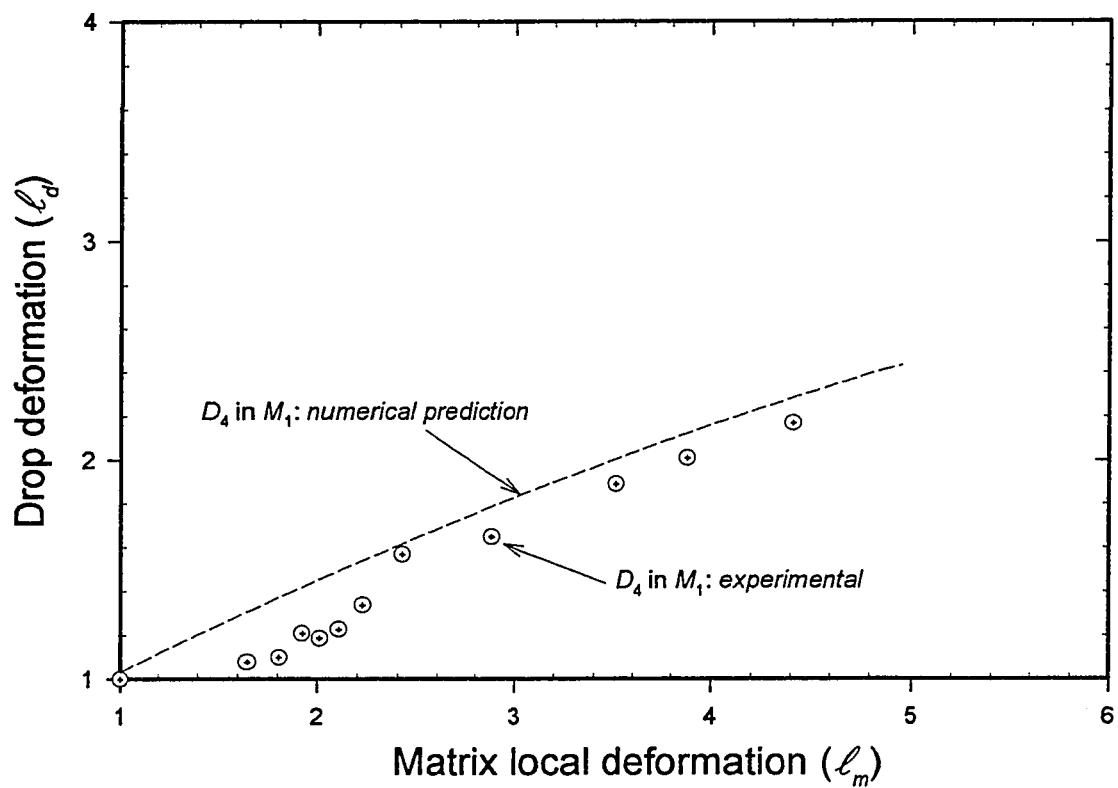
**Figure 5.7:** Numerical prediction of drop elongation,  $\ell_d$ , as a function of the matrix elongation,  $\ell_m$ , for the Newtonian system  $M_N/D_N$  (comparison with experimental results).

We shall now use the numerical method to predict the effect of drop and matrix elasticities on drop deformation. The predicted results are reported in Fig. 5.9 for different matrix/drop combinations of different elasticities, together with the prediction for the Newtonian combination  $M_N/D_N$ . The figure shows that the numerical simulation predicts well the effects of both drop and matrix elasticities on drop deformation, i. e., the matrix elasticity helps to deform the drop, whereas the drop elasticity resists to the drop deformation. As observed experimentally, for the same matrix  $M_1$ , the predicted drop deformation is lower for the drop  $D_4$  than for the drop  $D_2$  since the first is more elastic than the latter (the values of the Oldroyd-B relaxation times,  $\lambda_I$ , are 6.55 s for  $D_4$  and 1.98 s for  $D_2$ ). For the same Newtonian matrix  $M_N$ , the elastic drop  $D_3$  ( $\lambda_I = 3.55$  s) deforms less than the Newtonian drop  $D_N$ . This was also observed in our experimental study and that of Milliken and Leal (1991) who studied the behavior of viscoelastic drops in a Newtonian matrix under two-dimensional elongational flow. They found that viscoelastic drops with viscosity ratios  $k < 1$  (which is our case) have a smaller deformation than Newtonian drops of the same viscosity ratio and interfacial tension. Fig. 5.9 also shows the predicted drop deformation for another particular case where the drop is Newtonian (drop,  $D_N$ ) and the matrix is elastic (matrix,  $M_2$ ). For matrix deformation up to 2.8, the Newtonian drop  $D_N$  deforms more in the elastic matrix  $M_2$  than in the Newtonian matrix  $M_N$ . For higher matrix deformation strangely enough the contrary is observed; this is probably due to the non-linear effects associated with slightly

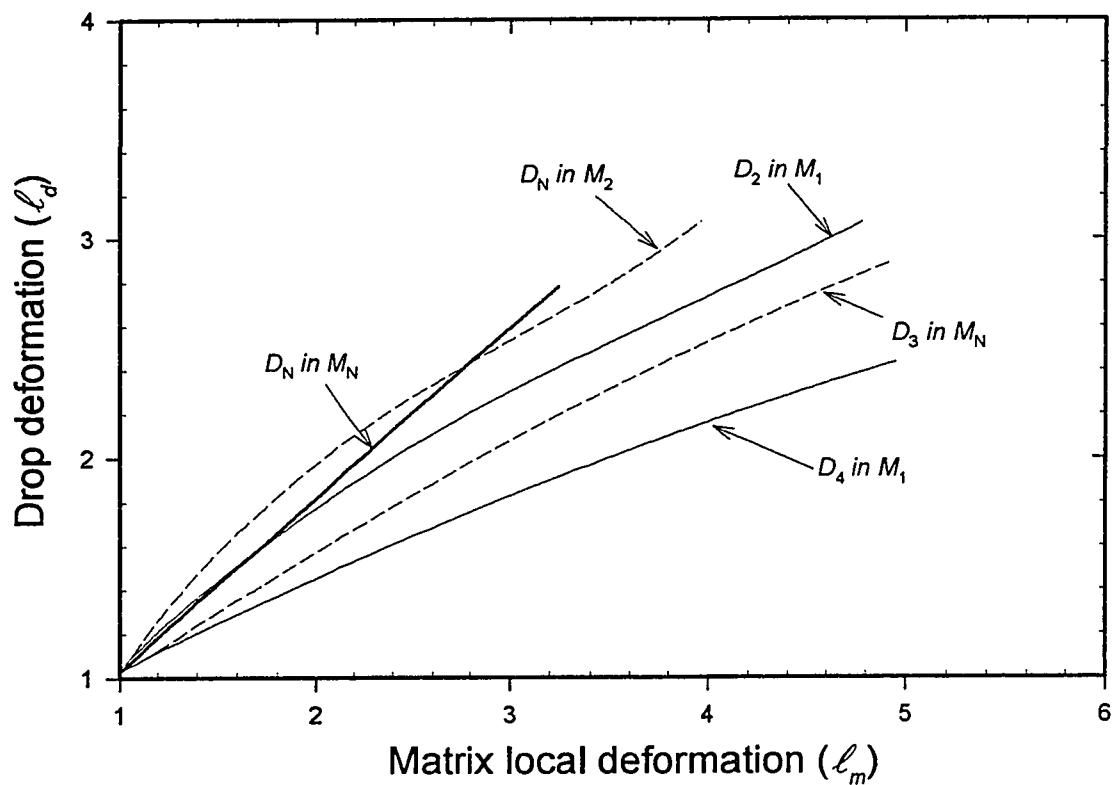
elastic systems for high deformation. This special case, however, needs to be confirmed experimentally.



**Figure 5.8(a):** Numerical prediction of drop elongation,  $\ell_d$ , as a function of the matrix elongation,  $\ell_m$ , for the elastic system  $M_1/D_2$  (comparison with experimental results).



**Figure 8(b):** Numerical prediction of drop elongation,  $\ell_d$ , as a function of the matrix elongation,  $\ell_m$ , for the elastic system  $M_1/D_4$  (comparison with experimental results).



**Figure 5.9:** Numerical prediction of drop elongation,  $\ell_d$ , as a function of the matrix elongation,  $\ell_m$ : effect of the matrix and drop elasticity.

## 5.5 CONCLUSION

Drop deformation in uniaxial elongational flow of Newtonian and elastic fluids has been simulated numerically using two-dimensional finite element method. The numerical method was developed for two-dimensional time-dependent free-surface or interface problems where surface tension and elastic effects were taken into account. The Oldroyd-B constitutive equation, used in the simulation program, predicted well the elastic effects for constant viscosity elastic (Boger) fluids. The simulated drop deformation, obtained for different drop/matrix combinations, was compared to experimental results obtained for an axisymmetric converging flow using the same experimental conditions. There was an acceptable agreement between the simulated results and the experiments. The simulation predicted the same effects of elasticity on drop deformation as observed experimentally. However, there is a need for further work to generalize the numerical method to axisymmetric and three-dimensional flows.

## APPENDIX: NOMENCLATURE

$R$ :	Drop radius, $m$ .
$G'$ :	Storage modulus, $Pa$ .
$\underline{\underline{I}}$ :	Unity tensor.
$k$ :	Viscosity ratio ( $k = \eta_d / \eta_m$ ).
$L$ :	Drop length after elongation, $m$ .
$\ell_d, \ell_m$ :	Drop and matrix deformations.
$N_1$ :	Primary normal stress difference, $Pa$ .
$P$ :	Pressure, $Pa$ .
$\alpha$ :	Interfacial tension, $mN/m$ .
$\dot{\gamma}$ :	Steady state shear rate, $s^{-1}$ .

$\underline{\dot{\gamma}}$ :	Rate of deformation tensor.
$\underline{\sigma}$ :	Cauchy strain tensor.
$\eta$ :	Total viscosity, Pa.s.
$\eta_s$ :	Viscosity of the solvent, Pa.s.
$\eta_p$ :	Polymer contribution to the total viscosity, Pa.s.
$\lambda$ :	Maxwell relaxation time, ( $\lambda = N_1/2\eta\dot{\gamma}^2$ ), s.
$\lambda_1$ :	Oldroyd-B relaxation Tim, s.
$\lambda_2$ :	Oldroyd-B retardation time, s.
$\omega$ :	Frequency, rad/s or $s^{-1}$ .
$\underline{\tau}$ :	Stress tensor.
$\psi_1$ :	First normal stress coefficient.

## References

- Beliveau, A., A. Fortin and Y. Demay, "A numerical methode for the deformation of two-dimensional drops with surface tension," Int. J. Computational fluid dynamics, in press (1998).
- Beliveau, A., "Méthodes de Lesaint-Raviart modifiées: applications au calcul des surfaces libres," Thèse de doctorat, École Polytechnique de Montréal (1997).
- Boger, D. V., "Course document: The influence of elasticity in flows," Advanced mineral products research center, and department of chemical engineering, University of Melbourne (February, 1994).
- Boger, D. V., "A highly elastic constant-viscosity fluid," J. Non-Newt. Fluid Mech. **3**, 87-91 (1977).
- Carreau, P. J., D. De Kee, and R. P. Chabra, "Rheology of polymeric systems: principles and applications," Vol. 1 (Hanser, Munich, 1997).
- Delaby, I., B. Ernst, and R. Muller, "Droplet deformation in polymer blends during uniaxial elongational flow: Influence of viscosity ratio for large capillary numbers," J. Rheol. **38**, 1705-1720 (1994).

- Fortin, A. and A. Zine, "An improved generalized residual method (GMRESS) for solving viscoelastic fluid problems," *J. Non-Newt. Fluid Mech.*, **42**, 1-18 (1992).
- Fortin, M. and A. Fortin, "A generalization of Uzawa's algorithm for the solution of the Navier-Stokes equations," *Comm. Applied Num. Meth.*, **5**, 205-208 (1985).
- Lafaurie, B., C. Nardone, R. Scardovelli, S. Zaleski, and G. Zanetti, "Modelling, merging and fragmentation in multiphase flows with SURFER," *J. Comp. Phys.*, **113**, 134-147 (1994).
- Mighri, F., A. Ajji, and P. J. Carreau, "Influence of elastic properties on drop deformation in elongational flow," *J. Rheol.*, **41**, 1183-1201 (1997).
- Milliken, W. J. and L. G. Leal, "Deformation and breakup of viscoelastic drops in planar extensional flows," *J. Non-Newt. Fluid Mech.* **40**, 355-379 (1990).
- Milliken, W. J. and L. G. Leal, "Deformation and breakup of viscoelastic drops in planar extensional flows," *J. Non-Newt. Fluid Mech.* **40**, 355-379 (1990).
- Phan-Thien, N., "Coaxial-disk flow of an Oldroyd-B fluid: Exact solution and stability," *J. Non-Newt. Fluid Mech.* **13**, 325-340 (1983).
- Prilutski, G., R. K. Gupta, T. Sridhar, and M. E. Ryan, "Model viscoelastic liquids," *J. Non-Newt. Fluid Mech.*, **12**, 233-241 (1983).
- Shen, S. F., "Grappling with the simulation of non-Newtonian flows in polymer processing," *Int. J. Numer. Meth. Eng.*, **34**, 701-723 (1992).
- Thompson, E., "Use of pseudo-concentrations to follow creeping viscous flows during transient analysis," *Int. J. Numer. Meth. Fluids*, **6**, 749-761 (1986).
- Thompson, E. and R. E. Smelser, "Transient analysis of forging operations by the pseudo-concentration method," *Int. J. Numer. Meth. Eng.*, **25**, 177-189 (1988).
- Van Der Reijden-Stolk, C. and A. Sara, "A study on polymer blending microrheology Part 3: Deformation of Newtonian drops submerged in another Newtonian fluid flowing through a converging cone," *Polym. Eng. Sci.* **26**, 1229-1239 (1986).

## CHAPITRE VI

### CONCLUSIONS ET RECOMMANDATIONS

Malgré que les mécanismes de dispersion des gouttes de la phase mineure dans les mélanges binaires de polymères immiscibles ont fait l'objet d'un nombre important de publications dans le passé, il n'y a pas eu vraiment de travaux qui ont réussi à mettre en évidence l'influence de l'élasticité sur ces mécanismes de dispersion. Les études effectuées sur des fluides newtoniens sont en effet très insuffisantes pour caractériser les morphologies dans les mélanges de polymères. Il n'est donc pas réaliste de négliger l'élasticité des différents composants du mélange si on souhaite atteindre un niveau de compréhension suffisant pour contrôler les morphologies lors des opérations de malaxage et de mise en œuvre.

Le travail présenté dans cette thèse apporte une contribution originale pour mettre en évidence l'influence de l'élasticité sur la déformation et les mécanismes de rupture de la goutte, dans le but d'élucider les mécanismes de dispersion dans les mélanges de polymères. L'approche adoptée est en effet une approche locale qui consiste à visualiser le comportement d'une goutte isolée de la phase dispersée, suspendue dans une matrice, dans deux écoulements bien caractérisés, soient l'écoulement élongationnel et le cisaillement. En effet, les écoulements dans les mélangeurs internes, les extrudeuses, ou les moules d'injection sont une combinaison de cisaillement et d'élongation. Les travaux ont porté sur des systèmes de fluides modèles, appelés fluides de Boger, qui possèdent à

la fois une viscosité relativement constante et un niveau d'élasticité élevé. Les fluides de la matrice sont des solutions formées par de faibles quantités de polyacrylamide à haute masse moléculaire dissoutes dans un mélange de sirop de maltose et de l'eau distillée, alors que les fluides de la goutte sont constitués de faibles quantités de polyisobutylène à haute masse moléculaire dissoutes dans un mélange de polybutène newtonien et de kérósène. Le choix de ces fluides a été dicté par le fait que les différentes combinaisons goutte/matrice devraient être complètement immiscibles.

Dans un premier temps, la caractérisation rhéologique des différents fluides modèles a été effectuée. Il a été prouvé que ces fluides sont très adéquats pour dissocier l'influence des propriétés rhéologiques (telles que la viscosité, l'élasticité et tension interfaciale) sur les mécanismes de déformation et de rupture de gouttes dans une matrice en écoulement. Les résultats des mesures de la tension interfaciale ont confirmé que l'ajout de faibles quantités de polymère à haute masse moléculaire, pour varier l'élasticité des fluides, n'avait pas d'influence significative sur la tension interfaciale des différentes combinaisons goutte/matrice. Une valeur moyenne de la tension interfaciale a été utilisée pour toutes les combinaisons de fluides préparées. Les rapports de viscosité mesurée pour les différentes combinaisons variaient entre 0.5 et 1.1, alors que les rapports d'élasticité étaient compris entre 0.0 et 6.0. Il a été vérifié que la faible variation du rapport de viscosité n'avait pas d'influence significative sur la déformation de la goutte, comparativement à celle des rapports d'élasticité.

Pour générer les deux types d'écoulement, soient l'écoulement élongationnel et le cisaillement, deux montages en acrylique ont été conçus afin de visualiser en temps réel la déformation et la rupture des gouttes. Le premier montage, de type convergent-divergent, a été installé sur un rhéomètre Instron pour pousser le fluide de la matrice dans le convergent, alors que le second, formé de deux plateaux parallèles, a été installé sur un rhéogoniomètre Weissenberg. Les gouttes de la phase dispersée sont injectées dans la matrice, au niveau de l'axe central du convergent (cas du premier montage) ou entre les deux plateaux parallèles (cas du deuxième montage), à l'aide de microseringue.

Malgré plusieurs limitations expérimentales, les montages conçus ont pu être utilisés efficacement pour mettre en évidence l'influence de l'élasticité sur la déformation et la rupture de gouttes. En effet, il a été observé que l'élasticité des deux phases (goutte et matrice) avait une influence visible sur la déformation de la goutte ainsi que sur les conditions critiques de rupture. L'influence de l'élasticité goutte/matrice sur la déformation et sur les conditions critiques de rupture de la goutte a été mesurée en comparant les résultats obtenus pour des combinaisons élastiques avec ceux obtenus pour des systèmes newtoniens ayant le même rapport de viscosité et la même tension interfaciale.

Avant d'aborder l'étude sur la déformation de gouttes en écoulement élongationnel, l'influence de l'élasticité de la matrice sur la vitesse élongationnelle le long de l'axe central du convergent a été étudiée. Il a été prouvé expérimentalement que la vitesse élongationnelle le long de l'axe du convergent est plus faible pour un fluide élastique que

pour un fluide newtonien de même viscosité. Cette vitesse diminue avec l'augmentation de l'élasticité de la matrice, ce qui est en parfait accord avec les résultats de la littérature.

Les résultats de déformation de gouttes en écoulement élongationnel montrent que, pour toutes les combinaisons goutte/matrice étudiées, la déformation de la goutte varie linéairement en fonction de celle de la matrice. L'élasticité de la goutte ainsi que celle de la matrice ont un effet inverse sur la déformation de la goutte: l'élasticité de la matrice déforme la goutte davantage, alors que celle de la goutte résiste à la déformation et rend la goutte de plus en plus rigide. Pour un rapport d'élasticité goutte/matrice inférieur à 0.2, il s'est avéré que les forces élastiques engendrées par la matrice avaient plus de contrôle sur la déformation de la goutte que les forces élastiques engendrées par la goutte elle-même. Pour des rapports d'élasticité supérieurs à 0.2, ce sont les forces élastiques engendrées par la goutte qui prédominent. Une relation empirique reliant la déformation de la matrice avec celle de la goutte a été développée en fonction d'un paramètre relié directement au rapport d'élasticité goutte/matrice.

Le montage conçu pour l'étude des mécanismes de déformation et de rupture de gouttes en cisaillement nous a permis d'effectuer des essais de déformation de gouttes en régime permanent ainsi que des essais de déformation et de rupture sous cisaillement critique. Dans les deux cas, il y avait une nette différence entre les systèmes viscoélastiques et les systèmes newtoniens. Comme dans le cas de l'écoulement élongationnel, l'élasticité de la matrice aide la goutte à se déformer davantage, alors que celle de la goutte résiste à la déformation. Les résultats de déformation en régime permanent ont été présentés en fonction du nombre capillaire,  $Ca$ . Pour des valeurs de  $Ca \leq 1.10$ , la déformation en

régime permanent de la goutte varie linéairement en fonction du nombre capillaire et ce pour toutes les combinaisons goutte/matrice étudiées. Une relation empirique est proposée pour relier la déformation de la goutte au nombre capillaire, en fonction d'un paramètre relié au rapport d'élasticité goutte/matrice.

Les résultats obtenus sous cisaillement critique montrent que le nombre capillaire critique augmente avec l'augmentation du rapport d'élasticité et atteint une valeur maximale d'environ 1.75, pour des rapports d'élasticité supérieurs à 4. Cette valeur représente la contribution maximale de l'élasticité sur le nombre capillaire critique. Les résultats montrent que le temps nécessaire pour briser la goutte sous cisaillement critique augmente aussi avec l'augmentation du rapport d'élasticité et plafonne pour des rapports d'élasticité élevés. Pour des rapports d'élasticité très faibles ( $k' \ll 1$ ), les valeurs du nombre capillaire critique ainsi que celles du temps de bris de la goutte sont presque identiques aux valeurs obtenues pour des systèmes newtoniens de même rapport de viscosité et même tension interfaciale.

Malgré la limitation du code de calcul aux cas simples d'écoulements bidimensionnels, les résultats de simulation de la déformation de gouttes en écoulement élongationnel le long de l'axe d'une section convergente semblent être acceptables comparativement aux résultats expérimentaux obtenus pour un écoulement convergent axisymétrique. La méthode de simulation a mis en évidence, d'une manière quasi-quantitative, l'influence de l'élasticité sur la déformation de gouttes. L'avantage de cette méthode réside dans le fait qu'elle tient compte de la tension interfaciale, en plus du caractère viscoélastique des

deux phases (matrice/goutte). En plus, elle ne nécessite pas de remaillage pour calculer la position de l'interface goutte/matrice durant l'écoulement. Un seul maillage de départ, plus raffiné dans la partie traversée par la goutte, est nécessaire. Le modèle d'Oldroyd-B utilisé dans le code de calcul décrit bien le comportement viscoélastique des fluides de Boger. La simulation numérique a permis de vérifier deux hypothèses déjà utilisées dans l'étude expérimentale pour l'écoulement élongationnel. En effet, on a pu vérifier, à l'aide de la simulation du champ de vitesses, que la présence d'une petite goutte dans la matrice ne perturbe pas l'écoulement autour de la goutte. On a pu aussi vérifier, en faisant varier le débit du fluide de la matrice, que la vitesse élongationnelle le long de l'axe central du convergent n'a pas d'influence significative sur la déformation de la goutte. Cette dernière est étroitement reliée à la déformation totale de la matrice et non au taux de déformation. Une simulation tridimensionnelle de l'écoulement permettrait d'obtenir des résultats plus proches de la réalité, mais nécessiterait des moyens informatiques plus importants et une formulation du problème plus complexe. Néanmoins, un grand effort est effectué actuellement par le groupe de recherche en éléments finis du département de mathématiques appliquées pour étudier des cas d'écoulements plus réalistes, commençant par le cas des écoulements axisymétriques.

Comme recommandations pour des travaux futurs, il s'avèreraut intéressant d'étudier les points suivants:

- Vérifier si la tension interfaciale a un effet significatif sur les résultats obtenus concernant la contribution de l'élasticité sur la déformation de gouttes pour les deux types d'écoulements étudiés. Il est suggéré de préparer des fluides modèles dont les

rapports de viscosité et d'élasticité sont identiques à ceux des fluides utilisés dans ce travail, mais de tension interfaciale différente.

- Améliorer le montage de cisaillement pour pouvoir mesurer l'aplatissement de la goutte due aux contraintes normales de la matrice. On pourrait s'inspirer par exemple du montage expérimental de Levitt et Macosko (1997).
- Étendre l'étude sur des polymères industriels et dans des situations réelles d'écoulement, en mettant en place un montage expérimental de visualisation en temps réel qui pourra être monté directement sur une extrudeuse.

## LISTE DES RÉFÉRENCES

- ACRIVOS, A. et LO, T. S. (1978). Deformation and breakup of a single slender drop in an extensional flow. J. Fluid Mech., 86, 641-672.
- AIT-KADI, A., GRMELA, M. et CARREAU, P.J. (1988). A rheological equation of state for dilute polymer solutions with applications to polyelectrolytes. Rheol. Acta, 27, 241-254.
- BARTOK, W. et MASON, S. G. (1959). Particle motions in sheared suspensions. VIII. Singlets and doublets of fluid spheres. J. Colloid Sci., 14, 13-26.
- BARTHÉS-BIESEL, D. et ACRIVOS, D. (1973). The rheology of suspensions and its relation to phenomenological theories for non-Newtonian fluids. Int. J. Multiphase Flow, 1, 1-24.
- BÉLIVEAU, A., FORTIN, A. et DEMAY, Y. (1998). A numerical method for the deformation of two-dimensional drops with surface tension. Int. J. Computational fluid dynamics, in press.
- BÉLIVEAU, A. (1997). Méthodes de Lesaint-Raviart modifiées: applications au calcul des surfaces libres. Thèse de doctorat, École polytechnique de Montréal, Canada.
- BENTLEY, B. J. et LEAL, L. G. (1986). A computer-controlled four-roll mill for investigation of particle and drop dynamics in two-dimensional linear shear flows. J. Fluid Mech., 167, 219-240.
- BIRD, R. B. et CARREAU, P. J. (1968). A nonlinear viscoelastic model for polymer solutions and melts. Chem. Eng. Sci., 23, 427-434.
- BOGER, D. V. (Février, 1994). Document de cours: The influence of elasticity in flows. Advanced mineral products research center, and department of chemical engineering, University of Melbourne.

- BOGER, D. V. et BINNINGTON, R. J. (1977). Separation of elastic and shear thinning effects in the capillary rheometer. Trans. Soc. Rheol., 21, 515-534.
- CARREAU, P. J., DE KEE, D. E. et CHABRA, R. P. (1997). Rheology of polymeric systems: principles and applications, Vol.1, Hanser Publishers, Munich-Vienna, New York
- CHIN, H. B. et HAN, C. D. (1979). Studies on droplet deformation and breakup: Droplet deformation in Extensional flow. J. Rheol., 23, 557-590.
- CHOI, S. J. et SHOWALTER, W. R. (1975). Rheological properties of nondilute suspensions of deformable particles. Phys. Fluids, 18, 420-427.
- COX, R. G. (1969). The deformation of a drop in a general time dependent flow. J. Fluid Mech., 37, 601-623.
- DE BRUIJN, R. A. (1989). Deformation and breakup of drops in simple shear flows. Thèse de doctorat, Université de technologie d'Eindhoven, Pays Bas.
- DELABY, I., ERNST, B. et MULLER, R. (1994). Droplet deformation in polymer blends during uniaxial elongational flow: Influence of viscosity ratio for large capillary numbers. J. Rheol., 38, 1705-1720.
- DELABY, I., ERNST, B. et MULLER, R. (1995). Drop deformation during elongational flow in blends of viscoelastic fluids: Small deformation theory and comparison with experimental results. Rheol. Acta, 34, 525-533.
- ELMENDORP, J. J. et De VOS, G. (1986). Measurement of interfacial tensions of molten polymer systems by means of the spinning drop method. Polym. Eng. Sci., 26, 415-417.
- ELMENDORP, J. J. et MAALCKEE, R. J. (1985). A study on polymer blending microrheology: Part 1. Polym. Eng. Sci., 25, 1041-1047.
- FLUMERFELT, R. W. (1972). Drop breakup in simple shear fields of viscoelastic fluids. Ind. Eng. Chem. Fundam., 11, 312-318.

- FORTIN, A. et ZINE, A. (1992). An imoprooved generalized residual method (GMRES) for solving viscoelastic fluid problems. J. Non-Newt. Fluid Mech., 42, 1-18.
- FORTIN, M. et FORTIN, A. (1985). A generalization of Uzawa's alogrithm for the solution of the Navier-Stokes equations. Comm. Applied Num. Meth., 5, 205-208.
- GAUTHIER, F., GOLDSMITH, H. L. et MASON, S. G. (1971). Particle motions in non-Newtonian media. II : Poiseuille flow. Trans. Soc. Rheol., 15, 297-330.
- GRACE, H. P. (1971). Dispersion phenomena in high viscosity immiscible fluid systems and application of static mixers as dispersion devices in such systems. Eng. Found. Res. Conf. Mixing, 3rd. Andover, N. H. Republished 1982 in Chem. Eng. Commun., 14, 225-277.
- GRACE, H. P. (1982). Dispersion phenomena in high viscosity immiscible fluid systems and application of static mixers as dispersion devices in such systems. Chem. Eng. Commun., 14, 225-277.
- HAN, C. D. et FUNATSU, K. (1978). An experimental study of droplet deformation and breakup in pressure-driven flows through converging and diverging channels. J. Rheol., 22, 113-133.
- HAN, C. D. et CHUANG, H. K. (1985). Rheological compatibility of polymer blends. J. Appl. Polym. Sci., 30, 4431-4454.
- HINCH, E. J. et ACRIVOS, A. (1979). Steady long slender droplets in two-dimensional straining motion. J. Fluid Mech., 91, 401-414.
- HINCH, E. J. et ACRIVOS, A. (1980). Long slender drops in simple shear flow. J. Fluid Mech., 98, 305-328.
- JACKSON, K. P., WALTERS, K. et WILLIAMS, R. W. (1984). A rheometrical study of Boger fluids. J. Non-Newt. Fluid Mech., 14, 173-188.

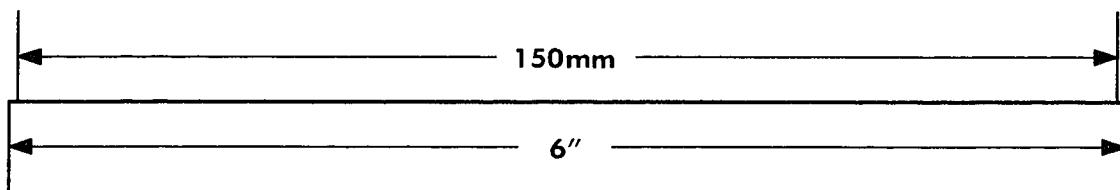
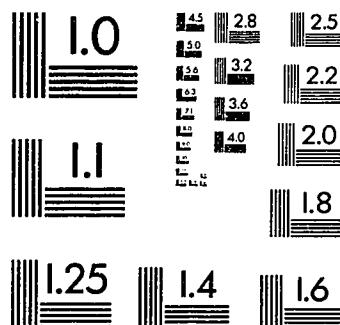
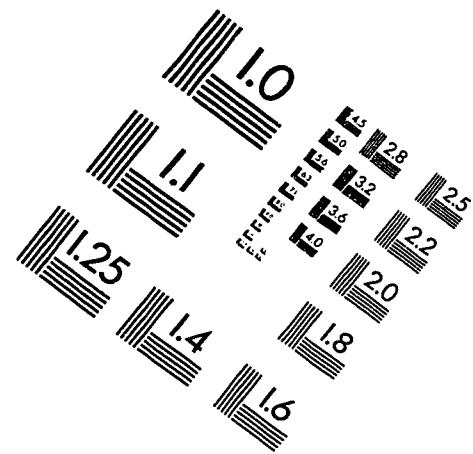
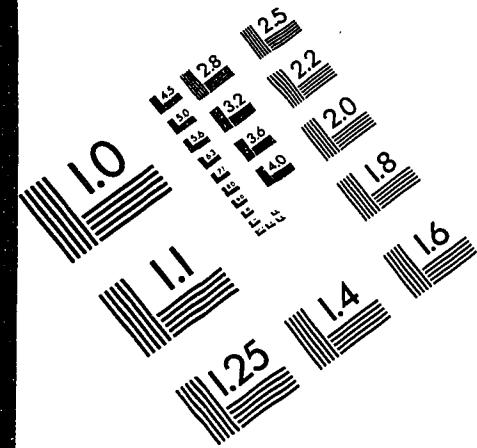
- JAMES, D.F., CHANDLER, G. M. et ARMOUR, S. J. (1990). A converging channel rheometer for the measurement of extensional viscosity. *J. Non-Newt. Fluid Mech.*, 35, 421-443.
- KALB, B., COX, G. et MANLEY, R. S. J. (1981). Hydrodynamically induced formation of cellulose fibers: II. Fiber formation by deformation of drops with zero interfacial tension. *J. Colloid Interface Sci.*, 82, 286-297.
- LAFAURIE, B., NARDONE, C., SCARDOVELLI, R., ZALESKI, S. et ZANETTI, G. (1994). Modelling, merging and fragmentation in multiphase flows with SURFER. *J. Comp. Phys.*, 113, 134-147.
- LEE, H. M. et PARK, O. O. (1994). Rheology and dynamics of immiscible polymer blends. *J. Rheol.*, 38, 1405-1425.
- LEVITT, L. et MACOSKO, C. W. (1997). Visualization of morphology development in polymer blends. *Soc. Plastic Eng.: Conf. Proc.*, 3, 3565-3570.
- LUCIANI, A. (1993). Mécanismes d'établissement des morphologies dans les mélanges de polymères incompatibles. Thèse de doctorat, Université Pierre et Marie Curie (Paris VI), France.
- MARKS, C., BIGIO, D. et CALABRESE, R. (1997). Transient dependent drop breakup mechanisms. *Soc. Plastic Eng.: Conf. Proc.*, 3, 3718-3723.
- MEIJER, H. E. et JANSSEN, J. M. (1993). In mixing and compounding: Theory and practical progress. *In Progress in Polymer Processing Series*, 4, Hanser Publishers, Munich.
- MIGHRI, F., AJJI, A. et CARREAU, P. J. (1997). Influence of elastic properties on drop deformation in elongational flow. *J. Rheol.*, 41, 1183-1201.

- MILLIKEN, W. J. et LEAL, L. G. (1991). Deformation and breakup of viscoelastic drops in planar extensional flows. J. Non-Newt. Fluid Mech., 40, 355-379.
- PHILIPPE, A. (1981). Contribution à l'étude des écoulements viscoélastiques dans les convergents. Thèse de doctorat ès Sciences, École supérieure des mines de Paris.
- PLOCHOKI, A. P. (1983). Melt rheology of polymer blends : The morphology feedback. Polym. Eng. Sci., 23, 618-626.
- PRILUTSKI, G., GUPTA, R. K., SRIDHAR, T. et RYAN, M. E. (1983). Model viscoelastic liquids. J. Non-Newt. Fluid Mech., 12, 233-241.
- RALLISON, J. M. (1981). A numerical study of the deformation and burst of a viscous drop in general shear flows. J. Fluid Mech., 109, 465-482.
- RALLISON, J. M. (1984). The deformation of small viscous drops in shear flows. Annu. Rev. Fluid Mech., 16, 45-66.
- RUMSCHEIDT, F. D. et MASON, S. G. (1961). Particle motions in sheared suspensions: Deformation and burst of fluid drops in shear and hyperbolic flow. J. Colloid Sci., 16, 238-261.
- SAKELLARIDES, S. L. et MCHUGH, A. J. (1987). Structure formation during polymer blend flows. Polym. Eng. Sci., 27, 1662-1674.
- SHANKER, R., SPRADLING, R. D., PHAM, H. T., NAMHATA, S. et BOSNYAK, C. P. (1996). Effect of viscoelasticity on transient drop dispersion. Soc. Plastic Eng.: Conf. Proc., 2, 2596-2600.
- SHEN, S. F. (1992). Grapplings with the simulation of non-newtonian flows in polymer processing. Int. J. Numer. Meth. Eng., 34, 701-723.
- SUBRAMANIAN, P. M. (1985). Permeability barriers by controlled morphology of polymer blends. Polym. Eng. Sci., 25, 483-513.

- TAVGAC, T. (1972). Drop deformation and breakup in simple shear fields. Thèse de doctorat, Université de Houston, Houston, Texas, USA.
- TAYLOR, G. I. (1932). The viscosity of a fluid containing small drops of another fluid. Proc. R. London, Ser. A 138, 41-48.
- TAYLOR, G. I. (1934). The deformation of emulsions in definable fields of flow. Proc. Roy. Soc. London, Ser. A 146, 501-523.
- THOMPSON, E. (1986). Use of pseudo-concentrations to follow creeping viscous flows during transient analysis. Int. J. Numer. Meth. Fluids, 6, 749-761.
- THOMPSON, E. et SMELSER, R. E. (1988). Transient analysis of forging operations by the pseudo-concentration method. Int. J. Numer. Meth. Eng., 25, 177-189.
- TORZA, S., COX, R. G. et MASON., S. G. (1972). Particle motion in sheared suspensions : XXVII : Transient and steady deformation and burst of liquid drops. J. Colloid Interface Sci., 38, 395-411.
- UTRACKI, L. A. (1989). Polymer alloys and blends : Thermodynamics and rheology. Hanser Publishers, Munich-Vienna, New York.
- VAN DER REIJDEN-STOLK, C. et SARA., A. (1986). A study on polymer blending microrheology. Part 3: Deformation of Newtonian drops submerged in another Newtonian fluid flowing through a converging cone. Polym. Eng. Sci., 26, 1229-1239.
- VAN OENE, H. (1972). Modes of dispersion of viscoelastic fluids in flow. Colloid interface Sc., 40, 448-467.
- VARANASI, P. P., RYAN, M. E. et STROEVE, P. (1994). Experimental study on the breakup of model viscoelastic drops in uniform shear flow. Ind. Eng. Chem. Res., 33, 1858-1866.

- WU, S. (1987). Formation of dispersed phase in incompatible polymer blend: Interfacial and rheological effects. Polym. Eng. Sc., 27, 335-343.
- WU, S. (1988). A generalized criterion for rubber toughening : The critical matrix lignement thickness. J. Appl. Polym. Sc., 35, 549-561.
- YOSHIDA, M., MA, J. J., MIN, K. et WHITE, J. L. (1990). Polyester-polystyrene block copolymers and their influence on phase morphology and mechanical properties in polymer blends. Polym. Eng. Sci., 30, 30-43.
- YOUNGREN, G. K. et ACRIVOS, A. (1976). On the shape of a gaz bubble in a viscous extensional flow. J. Fluid Mech., 76, 433-442.

# IMAGE EVALUATION TEST TARGET (QA-3)



APPLIED IMAGE, Inc.  
1653 East Main Street  
Rochester, NY 14609 USA  
Phone: 716/482-0300  
Fax: 716/288-5989

© 1993, Applied Image, Inc., All Rights Reserved

