



HAL
open science

Les Principes de base de la modélisation des procédés de Mise en Forme des Polymères

Jean-François Agassant

► To cite this version:

Jean-François Agassant. Les Principes de base de la modélisation des procédés de Mise en Forme des Polymères. *Rhéologie*, 2012, 22, pp.1-17. <hal-00836168>

HAL Id: hal-00836168

<https://minesparis-psl.hal.science/hal-00836168v1>

Submitted on 19 Mar 2014

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.



HAL Authorization

Les principes de base de la modélisation des procédés de mise en forme des polymères

J.F. Agassant

MINES ParisTech, CEMEF, UMR CNRS 7635, BP 20, Sophia-Antipolis, 06560 Valbonne

Résumé : *la modélisation des procédés de mise en forme des polymères est un outil couramment utilisé de nos jours pour optimiser la forme des filières, la localisation des points d'injection dans les moules ainsi que les paramètres du procédé. Dans le futur, la modélisation se donne également pour objectif de prévoir la structure des produits fabriqués et, partant, leurs propriétés. Cette modélisation requiert une bonne maîtrise de la rhéologie des polymères en phase fondue, des conditions aux limites cinématiques et thermiques mais aussi une bonne description physique des phénomènes intervenant au cours du procédé.*

Mots Clefs : *Procédés de mise en forme des polymères, Rhéologie, Modélisation*

[Abridged English version on last page]

1. Introduction

Dans le passé, le développement de nouveaux polymères était motivé par la recherche de nouvelles propriétés ou de propriétés améliorées. On stipulait que les procédés de mise en forme s'adaptent via quelques ajustements réalisés par une démarche d'essais-erreurs. Cela a fonctionné dans un certain nombre de cas mais, dans d'autres, on a découvert rapidement que ces nouveaux polymères, aux propriétés « merveilleuses », étaient très difficiles à mettre en œuvre, soit parce que les pressions ou les couples nécessaires étaient incompatibles avec les machines de mise en œuvre existantes, soit parce qu'ils présentaient des instabilités d'écoulement ou d'étirage à des vitesses de production incompatibles avec leur rentabilité économique. On se souvient à cet égard du développement des premiers polyéthylènes métallocènes qui présentaient des défauts d'extrusion à des taux de cisaillement de l'ordre de quelques secondes réciproques.

Plus récemment, les producteurs de polymères ont intégré le procédé dans le développement de leurs nouveaux matériaux, en utilisant dès les premiers stades de leur développement des mini-machines de transformation (extrudeuses ou presses à injecter) qui permettent de discerner d'éventuels problèmes de mise en œuvre avec quelques centaines de grammes de polymère. Malheureusement, l'extrapolation à des machines de taille industrielle s'est révélée parfois hasardeuse, en particulier du fait que la « mise à l'échelle » n'obéit pas à la même homothétie selon que l'on considère les phénomènes mécaniques ou thermiques.

C'est la raison pour laquelle la modélisation numérique, utilisée essentiellement dans le domaine de la conception des moules d'injection il y a une vingtaine d'années, pénètre aujourd'hui les différents secteurs de la plasturgie. Mais cela n'a un sens que dans la mesure où les modèles numériques développés sont fondés sur une analyse physique pertinente des phénomènes rencontrés dans une machine ou un outillage de mise en œuvre. L'ambition de cet article est de donner quelques règles qui permettent d'adapter le modèle aux contraintes du procédé de mise en œuvre et aux questions auxquelles l'on souhaite apporter une réponse, avant de les illustrer sur quelques exemples. Mais, tout d'abord, nous dressons un « état de l'art » rapide des procédés.

2. Un état de l'art des procédés de mise en forme des polymères

Nous nous intéressons aux procédés de transformation des polymères thermoplastiques, renforcés ou non de charges ou de fibres discontinues, c'est-à-dire à des matériaux auxquels on peut appliquer, à l'échelle macroscopique, les concepts de la mécanique des milieux continus. Echappent donc à cette analyse les polymères thermodurcissables et les élastomères, même si une partie des approches que nous développons leur est applicable.

Force est de constater que la plupart des procédés de transformation existant aujourd'hui (extrusion monovis ou bisis, injection, soufflage de corps creux, extrusion soufflage de films, calandrage...) sont nés après le deuxième conflit mondial, en même temps que se développaient les grands polymères de commodité. Certaines de ces techniques étaient, il

est vrai, elles mêmes issues de secteurs industriels parents (industrie agroalimentaire ou transformation des caoutchoucs)

Dans ces domaines, on a assisté depuis les années 1950 à un développement continu des procédés, ce qui a débouché sur des progrès spectaculaires :

- en extrusion monovis, ces améliorations incrémentales ont débouché sur un doublement des débits d'extrusion tous les 5 à 10 ans. Le brevet Maillefer [1] permet de séparer physiquement le lit solide de la zone fondue pendant le processus de plastification, ce qui permet d'augmenter le « taux de plastification » et la stabilité du procédé. Les embouts de malaxage permettent d'améliorer à la fois le mélange distributif et le mélange dispersif. Les fourreaux rainurés au niveau de la zone d'alimentation de la machine permettent d'améliorer le convoyage des granulés solides et la mise en pression du polymère. Les extrudeuses à deux étages permettent d'assurer un dégazage efficace à débit élevé.

- en extrusion bivis, les progrès les plus marquants concernent les extrudeuses corotatives : une combinaison optimisée d'éléments de vis à pas direct, à pas inverse et d'éléments malaxeurs permet d'en faire des outils efficaces de mélange et de gérer des réactions chimiques [2].

- les lignes d'extrusion ont connu également des progrès significatifs. Dans le cas du soufflage de gaine, des anneaux de soufflage double flux permettent de gouverner la forme de la bulle indépendamment du comportement rhéologique du polymère ; couplés à des dispositifs de refroidissement interne, ils permettent de mieux contrôler les propriétés finales du film (isotropie des modules, transparence, résistance à l'impact).

- en injection, on peut citer l'utilisation de canaux chauds, mais aussi les dispositifs périphériques automatisés qui permettent l'extraction des pièces injectées et leur contrôle dimensionnel en continu.

Il est difficile de faire la distinction entre ces développements incrémentaux et de véritables « sauts technologiques ». On peut citer au risque de ne pas être exhaustif :

- les extrudeuses bivis à très haute vitesse de rotation (>1500 tr/min) et très haut débit (jusqu'à 100 tonnes/heure) ;

- les blocs de coextrusion qui permettent l'alimentation d'une seule filière par un nombre de polymères considérable pour réaliser des films ou

des corps creux multicouches (jusqu'à treize couches !)

- le développement des presses à injecter électriques, qui permettent des gains d'énergie considérables, un procédé plus stable, mais surtout la réalisation d'opération en « salle blanche » pour les pièces électroniques ou médicales ;

- le développement de procédés d'injection non conventionnels comme l'injection assistée gaz [3] (ou assistée eau), qui permettent d'éviter les retassures, tout en réduisant et le temps de cycle et le poids des pièces, sans altérer les propriétés mécaniques finales. Dans le même domaine, on peut citer la micro-injection de pièces dont le poids peut être de quelques milligrammes (pour l'horlogerie, la mécanique de précision ou le domaine médical), ce qui requiert un usinage particulier des empreintes, des unités de plastification de très petite dimension, des vitesses d'injection très rapides et des dispositifs de préhension des pièces adaptés (comment récupérer et contrôler une pièce de quelques milligrammes ?) ;

- le développement du procédé d'injection-soufflage-biétirage qui permet aujourd'hui de réaliser la quasi-totalité des bouteilles pour boissons, gazeuses ou non.

La plupart de ces développements (incrémentaux ou sauts technologiques) ont été le fait de techniciens (au sens le plus noble du terme) qui ont osé sortir de « sentiers battus » mais, une fois les premières pièces réalisées, c'est grâce au travail des chercheurs, à l'analyse précise des phénomènes physiques mis en jeu, puis aux modèles qui en ont résulté, qu'il a été possible d'optimiser les procédés, d'élargir les « fenêtres de processabilité » pour qu'ils soient utilisables dans un contexte industriel.

3. Les bases d'une modélisation thermomécanique pertinente

Les procédés de transformation des matières thermoplastiques sont essentiellement thermomécaniques ; ils comportent trois étapes (Fig. 1) :

- la fusion, c'est-à-dire le passage de l'état de solide, en poudre ou en granulés, à un état fondu, suffisamment homogène et fluide. Ce terme de fusion recouvre plusieurs phénomènes physiques différents, suivant que le polymère est semi-cristallin ou amorphe ;

- la mise en forme à l'état fondu, par écoulement sous pression à travers une filière ou dans un moule ;

- la conformation et le refroidissement, avec éventuellement des opérations d'étirage, bi-étirage, soufflage...

Les propriétés de l'objet fabriqué dépendent, bien entendu, du polymère choisi, mais également de ce « chemin thermomécanique » qu'il a suivi pour déboucher sur cet objet.

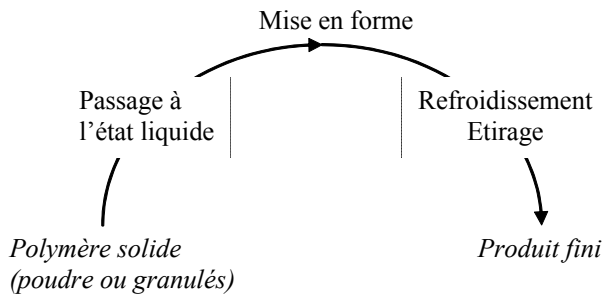


Figure 1. Processus général de mise en œuvre des polymères

A la lumière de la Figure 1, on peut imaginer que la mise en œuvre des polymères est un simple problème de mécanique des fluides couplé au transfert thermique. En réalité, c'est plus compliqué du fait des caractéristiques physiques communes à l'ensemble des polymères thermoplastiques.

3.1 Leur très forte viscosité

Les polymères fondus, aux températures de mise en œuvre, ont des viscosités de l'ordre de 10^3 Pa.s, soit un million de fois plus grandes que celle de l'eau. Cette propriété a trois conséquences pratiques :

- d'une part, le nombre de Reynolds ($Re = \frac{\rho U h}{\eta}$, où ρ est la masse volumique, U une vitesse moyenne, η la viscosité et h une dimension caractéristique de l'écoulement, par exemple l'entrefer dans le cas de l'écoulement en filière), qui caractérise le poids des termes d'inertie par rapport aux termes de viscosité, est faible : il n'y aura jamais d'écoulement de polymère fondu turbulent et, mieux, les termes d'inertie seront généralement négligés devant les termes de viscosité. Toutefois, ce nombre de Reynolds pourra devenir de l'ordre de l'unité et devra donc être pris en compte dans des écoulements à très forte accélération comme dans certains seuils d'injection ou les opérations de filage textile à grande vitesse.

-d'autre part, le nombre de Stokes ($St = \frac{\eta U}{\rho g L h}$,

où g est l'accélération de la pesanteur et L est la hauteur de l'écoulement) est négligeable dans la plupart des écoulements confinés. Il peut devenir

important dans les procédés à surface libre : soufflage de gaine, filage textile, extrusion soufflage de grands corps creux.

-enfin, l'échauffement du polymère par dissipation visqueuse est facile à obtenir et il est exploité dans les systèmes de fusion. Dans les conditions les plus courantes de fonctionnement en extrusion, les énergies apportées au polymère par chauffage et par dissipation visqueuse sont du même ordre de grandeur.

- finalement, les fortes viscosités impliquent des pressions élevées pour assurer les écoulements dans les filières et dans les moules à des débits importants, typiquement 100 MPa ou plus comme pression d'injection et de 5 à 50 MPa en tête des extrudeuses, pour assurer l'écoulement dans les filières.

Cette pression est obtenue par deux méthodes principales. En injection, la vis, après arrêt de sa rotation dans la phase de fusion, agit comme un piston mu par un vérin pendant les phases de remplissage et post-remplissage de la cavité. En extrusion, le système vis-fourreau joue un rôle de pompe ; la pression engendrée en tête d'extrudeuse résulte de l'équilibre des pressions et des débits entre les écoulements dans le canal de la vis d'une part et dans la filière d'autre part.

3.2 Leur comportement non-linéaire et thermo-dépendant

Sous ce vocable se cachent deux phénomènes qui sont liés au comportement des macromolécules en écoulement :

3.2.1 Le comportement rhéofluidifiant (ou pseudo-plastique)

Typiquement, la viscosité d'un polymère fondu peut diminuer d'un facteur 5 quand on multiplie le taux de cisaillement par 10 et diminuer d'un facteur 2 quand on augmente la température de 20°C. Si la viscosité des polymères était constante, le doublement du débit aboutirait à doubler la pression nécessaire à l'écoulement. La forte sensibilité de la viscosité à la vitesse de déformation et à la température autorise des variations importantes des paramètres de fonctionnement en conservant des pressions en tête de filière ou des pressions d'injection du même ordre de grandeur. Pour rendre compte de ce phénomène, on utilise des lois de comportement de type « loi puissance » ou d'Oswald-de Waele :

$$\sigma = -p \mathbf{I} + \mathbf{s} \text{ avec } \mathbf{s} = 2K \dot{\gamma}^{m-1} \dot{\epsilon} \quad (1)$$

où $\boldsymbol{\sigma}$ est le tenseur des contraintes, \mathbf{s} le déviateur des contraintes, $\dot{\boldsymbol{\varepsilon}}$ le tenseur des vitesses de déformation, \mathbf{I} le tenseur identité, $\dot{\gamma}$ le taux de cisaillement généralisé ($\dot{\gamma} = \sqrt{2 \sum_{ij} \dot{\varepsilon}_{ij}^2}$), K la consistance du polymère, m le coefficient de sensibilité à la vitesse de déformation. Cette loi autorise des résolutions analytiques dans un certain nombre de situations d'écoulement simples, mais elle présente l'inconvénient de ne pas rendre compte de l'existence d'un palier newtonien à faible vitesse de déformation. Pour cette raison, il est préférable d'utiliser une loi de Carreau [4] ou de Carreau-Yasuda [5] :

$$\mathbf{s} = 2\eta_0 \left[1 + (\lambda \dot{\gamma})^a \right]^{\frac{m-1}{a}} \dot{\boldsymbol{\varepsilon}} \quad (2)$$

où η_0 est la viscosité au palier newtonien, λ un temps de relaxation moyen et a un paramètre qui permet d'ajuster la transition entre le palier newtonien et la zone où la viscosité du polymère est sensible à la vitesse de déformation.

Ces différents paramètres sont aisément accessibles en utilisant des rhéomètres rotatifs en mode dynamique ou des rhéomètres capillaires.

3.2.2 Le comportement viscoélastique

La viscoélasticité joue un rôle plus subtil. Elle stabilise l'étirage ou le bi-étirage des polymères fondus. C'est elle qui facilite le filage des polymères à forte vitesse de déformation, le soufflage et le thermoformage en homogénéisant l'épaisseur des pièces obtenues. En revanche, les écoulements de cisaillement sont limités en débit par l'apparition d'instabilités, parfois d'origine viscoélastique, qui se traduisent par des défauts : « peau de requin » ou défauts volumiques en extrusion [6], instabilités d'interface en coextrusion [7]... Enfin, la viscoélasticité est responsable du gonflement à la sortie des filières, qui complique singulièrement la conception de ces outillages. On dispose aujourd'hui d'une palette impressionnante de lois de comportement viscoélastiques, certaines basées sur des approches phénoménologiques (combinaison de ressorts et d'amortisseurs), dont la plus simple est la loi de Maxwell :

$$\boldsymbol{\sigma} = \boldsymbol{\sigma}' - p' \mathbf{I} \quad (3)$$

$$\boldsymbol{\sigma}' + \lambda \frac{\delta \boldsymbol{\sigma}'}{\delta t} = 2\eta \dot{\boldsymbol{\varepsilon}} \quad (4)$$

$$\frac{\delta \boldsymbol{\sigma}'}{\delta t} = \frac{d\boldsymbol{\sigma}'}{dt} - \nabla \mathbf{u} \cdot \boldsymbol{\sigma}' - \boldsymbol{\sigma}' \cdot (\nabla \mathbf{u})^t \quad (5)$$

où $\boldsymbol{\sigma}'$ est le tenseur des extra-contraintes, p' une pression arbitraire et $\nabla \mathbf{u}$ est le tenseur gradient de vitesse. Cette loi a été généralisée pour tenir compte de la sensibilité de la viscosité et du temps de relaxation à la vitesse de déformation (White-Metzner [8]) ou pour limiter la croissance de la viscosité élongationnelle (Phan-Thien Tanner [9]). Par ailleurs, cette loi peut être utilisée sous une forme multimodes :

$$\boldsymbol{\sigma} = -p' \mathbf{I} + \sum_i \boldsymbol{\sigma}'_i \quad (6)$$

chaque $\boldsymbol{\sigma}'_i$ obéissant à une loi de type Maxwell (η_i , λ_i correspondant au spectre de temps de relaxation).

En se basant sur une analyse physique, il est possible de bâtir des lois qui prennent en compte le comportement microscopique local du milieu macromoléculaire. On peut citer par exemple la loi de Marrucci et Ianiruberto [10] qui s'écrit pour un seul mode :

$$\boldsymbol{\sigma}' = 3Gf \left(\mathbf{C} - \frac{1}{3} \mathbf{I} \right) \quad (7)$$

$$\dot{\mathbf{C}} = \nabla \mathbf{u} \mathbf{C} + \mathbf{C} \nabla' \mathbf{u} - \frac{f}{\lambda^*} \left(\mathbf{C} - \frac{1}{3} I_C \mathbf{I} \right) - \frac{1}{3\lambda_r} (f I_C - 1) \mathbf{I} \quad (8)$$

$$\frac{1}{\lambda^*} = \frac{1}{\lambda} + \left(\frac{1}{\lambda_r} - \frac{1}{\lambda} \right) \frac{\beta (f I_C - 1)}{1 + \beta (f I_C - 1)} \quad (9)$$

$$f = \frac{b-1}{b-I_C} \quad (10)$$

où G est le module, \mathbf{C} le tenseur d'orientation, I_C la trace de \mathbf{C} , b un paramètre qui rend compte de la déformation maximale de la macromolécule, λ_r le temps de relaxation de l'orientation et β est un paramètre qui tient compte des contraintes topologiques imposées par les macromolécules environnantes (en anglais, CCR pour Convective Constraint Release).

Il est évident que ces paramètres sont difficilement accessibles par des mesures rhéologiques simples (cisaillement dynamique ou capillaire, élongation simple). Des mesures de vitesse (anémométrie laser Doppler, Fig. 2) et de contraintes (biréfringence d'écoulement, Fig. 3) sur une filière convergente transparente permettent, par méthode inverse, d'identifier ces différents paramètres [11] (Fig. 4).

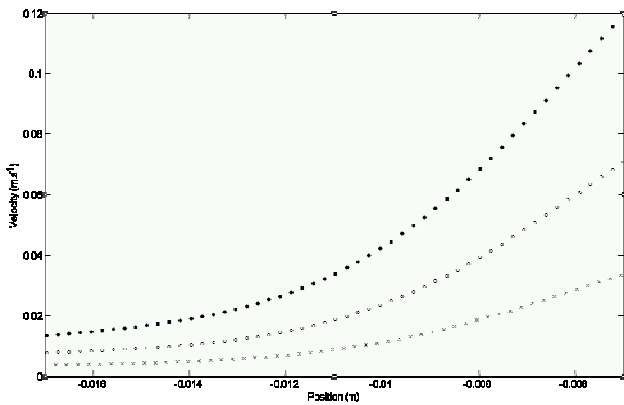


Figure 2. Mesure de vitesse le long de l'axe de symétrie pour trois débits différents ; de bas en haut, $0,25 \text{ cm}^3/\text{s}$; $0,45 \text{ cm}^3/\text{s}$; $0,70 \text{ cm}^3/\text{s}$.

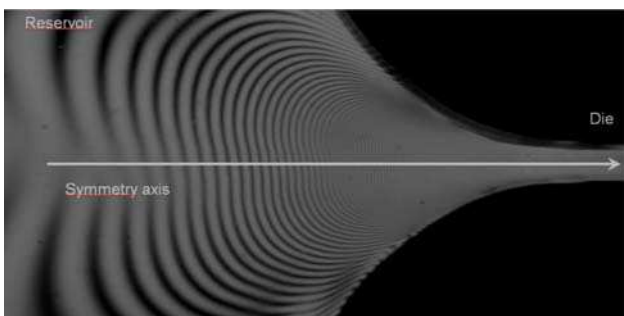


Figure 3. Cliché de biréfringence : débit de $0,25 \text{ cm}^3/\text{s}$

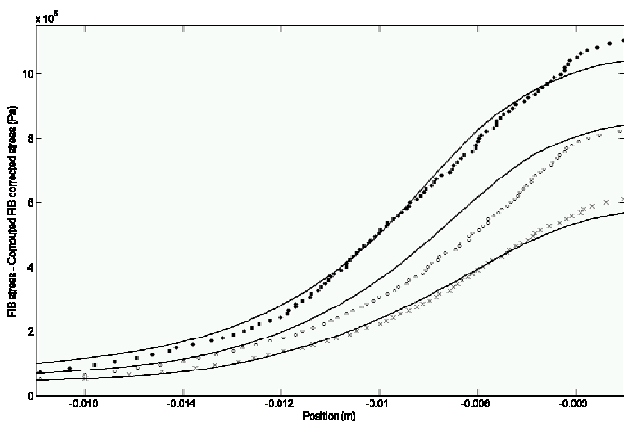


Figure 4. Comparaison entre la biréfringence calculée sur l'axe (à partir des mesures de vitesse de la Figure 2) et mesurée sur la Figure 3, à trois débits différents.

3.2.3 Quelle loi de comportement choisir ?

La loi de comportement la plus sophistiquée n'est pas nécessairement la plus pertinente. Le choix dépend de la question posée, du type d'écoulement auquel on est confronté, des moyens informatiques dont on dispose et, bien évidemment, des moyens de mesure rhéologique dont on dispose.

Si l'on cherche à connaître l'état de contraintes, l'orientation des macromolécules ou de fibres de renfort, il est nécessaire d'introduire une loi de comportement viscoélastique. Si, en revanche on

s'intéresse à la relation entre la pression et le débit (donc le champ de vitesse), le choix dépendra de la nature de l'écoulement :

- dans un écoulement confiné de cisaillement simple ou à cisaillement dominant (ce qui signifie que l'on peut y appliquer les approximations de la lubrification hydrodynamique ou de Hele-Shaw, qui seront présentées au paragraphe suivant), il est nécessaire de prendre en compte avec précision l'évolution de la viscosité avec le taux de cisaillement et la température. En revanche, la viscoélasticité ne modifie qu'à la marge le champ de vitesse et la contrainte normale à la paroi (que l'on appelle abusivement la pression).

- dans un écoulement élongationnel à surface libre, il est indispensable d'utiliser une loi viscoélastique, car seul ce type de comportement est à même de rendre compte de l'augmentation de la viscosité élongationnelle avec le taux d'élongation.

- dans les écoulements mixtes (ou coexistent des termes de cisaillement et d'élongation), des nombres sans dimension permettent de jauger l'ordre de grandeur des phénomènes viscoélastiques : si le nombre de Deborah ($De = \lambda L/U$), qui pondère un temps caractéristique du polymère λ par un temps caractéristique du procédé L/U , est petit devant un, nous pouvons considérer que l'écoulement est établi, c'est-à-dire que les phénomènes transitoires peuvent être négligés. Le problème est de définir le temps caractéristique du polymère dans la distribution de temps de relaxation ; si le nombre de Weissenberg ($We = N_1/2\tau$), qui pondère la première différence des contraintes normales N_1 par la contrainte de cisaillement τ , est petit devant un, nous pouvons négliger les contraintes d'origine élastique devant celles d'origine visqueuse ; si les nombres de Weissenberg et de Deborah sont grands, il faut avoir recours à un calcul viscoélastique, mais ce n'est pas une tâche triviale du fait des singularités d'écoulement (les angles rentrant dans une filière, la sortie de la filière) et des termes de transport dans les lois de comportement viscoélastiques qui vont « transporter », voire amplifier, ces singularités de contraintes [12].

3.3 La faible conductivité thermique

La conductivité thermique des polymères est de l'ordre de $0,2 \text{ W}\cdot\text{m}^{-1}\cdot\text{C}^{-1}$, soit mille fois moindre que celle du cuivre. Dans ces conditions, il faut environ :

- 17 min pour qu'un échauffement ou un refroidissement superficiel atteigne une profondeur de 1 cm ;

- 10 s pour une profondeur de 1 mm ;
- 0,1 s pour une profondeur de 0,1 mm.

Ceci montre que la fusion du polymère par simple conduction de chaleur dans un pot chauffant nécessiterait des temps de séjour très longs et des débits inadmissibles. C'est pourquoi tous les procédés de fusion nécessitent un apport important d'énergie mécanique, souvent bien supérieur à celui de la simple énergie thermique.

La faible conductivité thermique implique aussi que la majorité des produits en matière plastique ont une épaisseur inférieure à quelques millimètres, pour minimiser le temps de refroidissement et avoir des cadences de production élevées.

Par ailleurs, l'échauffement par dissipation visqueuse est souvent localisé. La faible conductivité thermique favorise alors l'existence de gradients thermiques élevés. Compte tenu des risques de dégradation due à l'échauffement, ceci limite la quantité d'énergie qui peut être apportée par dissipation visqueuse, ou les débits que l'on peut appliquer.

D'autre part, la forte viscosité, associée à la faible conductivité, permet de concevoir le trajet dans l'air d'un extrudat encore à l'état fondu, avant son passage dans un conformateur ou dans un système d'étirage. Cette propriété a permis le développement de nombreux procédés en aval de l'extrusion : le filage, le soufflage, en discontinu, des bouteilles et autres corps creux, le soufflage, en continu, des gaines, l'étirage et le bi-étirage des films.

Dans ce domaine également, des nombres sans dimension permettent d'évaluer rapidement l'ordre de grandeur des phénomènes et donc de décider, a priori, si un couplage entre la résolution des problèmes mécaniques et thermiques est nécessaire :

- le nombre de Cameron $Ca = a L/U h^2$, a étant la diffusivité thermique, permet de pondérer les termes de convection dans la direction de l'écoulement devant les termes de conduction dans la direction transverse (vers les parois de la filière ou du moule) ; si ce nombre est inférieur à 10^{-2} , l'écoulement peut être considéré comme adiabatique et l'échauffement moyen du polymère est proportionnel à la variation de pression le long de l'écoulement ($\Delta T = \Delta p/\rho c$, c étant la capacité calorifique massique) ; si le nombre de Cameron est supérieur à 1, le régime thermique peut être considéré comme établi, c'est-à-dire que le profil de température ne va plus évoluer le long de l'écoulement. L'écart de température entre la paroi et le centre de l'écoulement sera de l'ordre de $\Delta T = \eta U^2/k$, k étant la conductivité

thermique du polymère. Entre ces deux valeurs, l'évaluation de la variation de température sera plus délicate.

- le nombre de Brinkman $Br = \eta U^2/k (T - T_p)$ pondère, lui, la dissipation visqueuse à la conduction vers les parois régularisées à la température T_p . Si ce nombre est supérieur à 1, c'est la dissipation visqueuse qui va gouverner l'évolution de la température du polymère et une régulation thermique précise de l'outillage n'est pas indispensable. Si, au contraire, ce nombre est inférieur à 1, c'est la température de régulation de l'outillage qui va contrôler la température du polymère, ce qui légitime une régulation thermique efficace.

- le nombre de Nahme $Na = \eta E U^2 / kR$ (où E est l'énergie d'activation de la viscosité et R la constante des gaz parfaits) pondère la sensibilité de la viscosité par rapport à la température et l'échauffement engendré par la dissipation visqueuse. Si ce nombre est inférieur à 1, les calculs mécaniques et thermiques peuvent être découplés.

3.4 Des conditions aux limites appropriées

3.4.1 Concernant la cinématique

Dans les écoulements confinés (filières d'extrusion, moules d'injection...), on suppose généralement que le polymère adhère à l'outillage. Cette condition aux limites simple peut être mise en défaut dans le cas de polymères chargés ou formulés. Le problème est alors de définir une loi de glissement réaliste. Cela donne lieu, aujourd'hui encore, à débats scientifiques ; on suppose généralement que la vitesse de glissement V_g ne dépend que de la contrainte de cisaillement à la paroi τ_p , soit par exemple :

$$V_g = \alpha(\tau_p)^n \quad (11)$$

où α et n sont deux paramètres que l'on déterminera par des mesures expérimentales. On peut rencontrer également du glissement dans des écoulements à débit élevé ; le glissement est alors généralement associé à l'existence de défauts d'extrusion.

Dans les écoulements à surface libre stationnaires (filage textile, soufflage de gaine, par exemple), on impose une vitesse en surface libre tangente à cette surface et une contrainte normale nulle, soit :

$$\mathbf{u} \cdot \mathbf{n} = 0 \quad \text{et} \quad \boldsymbol{\sigma} \cdot \mathbf{n} = 0 \quad (12)$$

où \mathbf{n} est le vecteur normal à la surface.

Dans les écoulements à surface libre instationnaires (remplissage des moules d'injection, mais aussi soufflage de corps creux), la contrainte normale à la surface est toujours nulle, mais maintenant on impo-

se au contraire que la surface libre se propage selon sa normale, soit :

$$\mathbf{u} \wedge \mathbf{n} = 0 \quad (13)$$

3.4.2 Concernant le transfert thermique

On distingue les écoulements confinés et les écoulements à surface libre.

Dans les écoulements confinés, il est de tradition d'imposer la température de la paroi que l'on prend égale à la température de l'outillage (mesurée par un thermocouple), à la température des fluides des circuits de chauffage ou de refroidissement, ou encore à la température des colliers chauffants. Il peut être plus judicieux d'imposer la température d'interface ou encore d'imposer un coefficient de transfert thermique. Cependant, la température d'interface polymère/métal reste proche de la température du métal, compte tenu des effusivités respectives des deux matériaux, ce qui légitime la condition aux limites traditionnelle, encore largement utilisée aujourd'hui. Les approches les plus précises consistent à résoudre en même temps l'écoulement et la thermique du polymère et le régime thermique dans l'outillage, ce qui permet d'imposer des conditions aux limites là où elles sont mesurables (par exemple à la périphérie de l'outillage) et entraînent une sensibilité moindre sur le résultat du calcul.

Dans les écoulements à surface libre, on impose toujours un coefficient de transfert thermique, résultant de la convection libre, forcée ou (et) du rayonnement. Le calcul du coefficient de transfert thermique, quand il y a combinaison de plusieurs de ces phénomènes, demeure un problème largement ouvert.

3.5 Un modèle physique pertinent

Ayant choisi une loi de comportement adaptée, évalué l'importance des phénomènes thermiques et défini des conditions aux limites réalistes, il nous est possible de résoudre bon nombre de problèmes de mise en forme, par exemple l'écoulement dans des filières d'extrusion. Toutefois, dès que l'on est confronté à un problème de changement de phase, il est nécessaire de disposer d'une représentation physique pertinente de la réalité, avant d'être à même de la décrire par un système d'équations.

On s'intéresse par exemple au processus de fusion du polymère dans une extrudeuse monovis. On pourrait penser a priori que la fusion du polymère dans l'extrudeuse s'effectue de façon tout à fait désordonnée, en se développant progressivement aux interfaces entre les différents granules et aux interfaces entre le polymère solide et les pièces

métalliques. Des expériences systématiques montrent au contraire que la fusion se développe en général de manière ordonnée [13]. Ces expériences consistent à arrêter l'extrusion alors en régime permanent, à refroidir la machine aussi rapidement que possible, puis à prélever le polymère contenu entre la vis et le fourreau. Le polymère qui était encore solide et celui qui était déjà fondu se distinguent alors très facilement (Fig. 5a). En schématisant ces observations (Fig. 5b), Tadmor et Klein [14] ont proposé un modèle fondé sur de simples équations de bilan de masse et de température qui peuvent être résolues analytiquement et qui fournissent des résultats qualitatifs qui ont motivé les développements technologiques pendant des décennies. Depuis, des modèles plus sophistiqués ont été développés, tenant compte en particulier de la compressibilité des granules. Ils permettent d'obtenir une description plus qualitative de la réalité, mais ils restent fondés sur l'observation initiale de Maddock [13] et la description des phénomènes proposée par Tadmor et Klein [14].

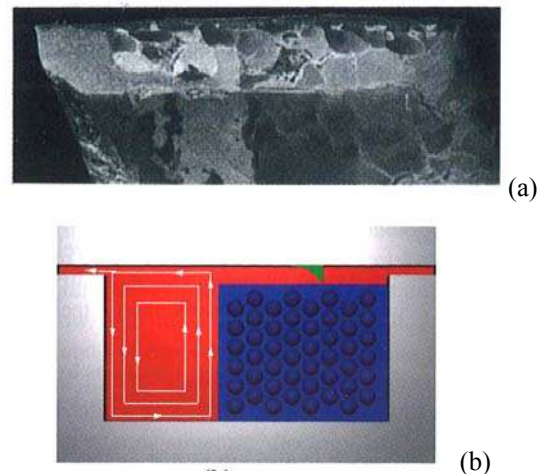


Figure 5. Observation du processus de plastification en extrusion monovis (a) et schématisation proposée par Tadmor et Klein (b)

4. Résolution directe ou méthodes d'approximations

4.1 Les équations d'un problème de mise en forme des polymères

La mise en forme des polymères s'effectue généralement dans des outillages de forme complexe (filières d'extrusion, moules d'injection). Dans la plupart des cas, l'écoulement peut être considéré de prime abord comme tridimensionnel (Fig. 6).

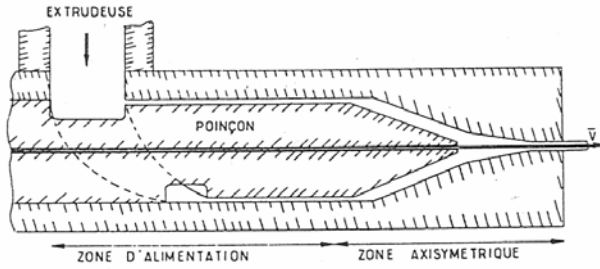


Figure 6. Exemple de géométrie d'écoulement :
filière de gainage de câble (d'après [15])

On cherche à connaître en tout point de l'écoulement le champ de vitesse $\mathbf{u}(u, v, w)$, le champ des contraintes $\boldsymbol{\sigma}$ (6 composantes) et la température T . Dans certains cas, on peut par ailleurs chercher à connaître la masse volumique ρ (écoulement compressible), l'évolution de différentes espèces chimiques (écoulement réactif), l'orientation de fibres courtes ou l'état de dispersion d'une charge (polymères renforcés). Dans ce qui suit, nous considérerons simplement l'écoulement d'un polymère incompressible, homogène et non évolutif.

Les équations que l'on peut écrire sont :

- une équation de bilan de masse :

$$\nabla \cdot \mathbf{u} = 0 \quad (14)$$

- trois équations de bilan de force :

$$\nabla \cdot \boldsymbol{\sigma} + \mathbf{F} - \rho \boldsymbol{\gamma} = 0 \quad (15)$$

Nous avons vu précédemment qu'il était souvent possible de négliger les forces de masse \mathbf{F} et les forces d'inertie $\rho \boldsymbol{\gamma}$. L'équation précédente devient alors :

$$\nabla \cdot \boldsymbol{\sigma} = 0 \quad (16)$$

- cinq équations issues de la loi de comportement, qui s'écrivent de façon très générale :

$$f(\boldsymbol{\sigma}', \dot{\boldsymbol{\varepsilon}}) = 0 \quad (17)$$

- une équation de bilan thermique. En l'absence de changement de phase et pour un matériau incompressible, elle s'écrit :

$$\rho c \frac{\partial T}{\partial t} + \rho c (\mathbf{u} \cdot \nabla T) = \nabla \cdot (k \nabla T) + \dot{W} \quad (18)$$

4.2 Le choix de la méthode de calcul

On obtient donc, dans un écoulement tridimensionnel quelconque comme celui présenté à la Figure 6, un système de dix équations qui donnent accès aux dix inconnues évoquées précédemment. Plusieurs méthodes sont envisageables pour calculer l'écoulement des polymères dans ce type de géométrie :

- des méthodes « directes », qui consistent, à partir d'une définition de l'outillage (filière ou moule par exemple), puis de son maillage, à résoudre l'ensemble des équations sur le volume de l'écoulement par des méthodes de type éléments finis, volumes finis ou différences finies.

- dans bien des cas cependant, les géométries des outillages sont telles que l'on peut proposer des approximations géométriques et cinématiques. Par ailleurs, les nombres sans dimension proposés précédemment donnent souvent un bon ordre de grandeur des phénomènes thermiques.

Le choix entre méthodes directes et méthodes d'approximation n'est pas évident :

- les méthodes directes sont délicates à mettre en œuvre et coûteuses en temps de calcul et en espace mémoire, ce qui rend fastidieuses les études paramétriques que nécessite une optimisation des outillages. Par ailleurs, n'oublions pas que la précision du résultat dépend de la précision du maillage (Fig. 7). Dans le cas d'écoulements tridimensionnels, le raffinement des maillages jusqu'à l'obtention d'une solution stabilisée n'est pas toujours possible.

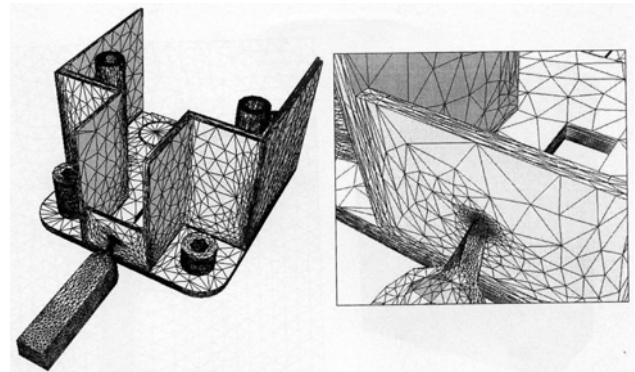


Figure 7. Exemple de maillage d'une cavité de moule ; on remarque le raffinement du maillage au voisinage du seuil d'injection

- les méthodes d'approximations sont évidemment beaucoup plus rapides, mais les résultats obtenus sont tributaires de la validité des approximations effectuées. Ces calculs rapides permettent néanmoins une optimisation paramétrique plus aisée.

4.3. Les méthodes d'approximation

4.3.1 Approximations géométriques

Elles consistent par exemple à dérouler la géométrie d'un écoulement. C'est ce que l'on réalise classiquement dans la zone d'alimentation de la filière de câblerie (Fig. 6) ou pour analyser l'écoulement entre la vis et le fourreau d'une extrudeuse monovis.

Elles peuvent consister également à décomposer un écoulement complexe en plusieurs écoulements simples entre lesquels on établira des bilans locaux de débits et de pression. La géométrie d'une filière de soufflage de gaine est complexe (Fig. 8a) et l'utilisation d'une méthode de résolution directe demanderait un maillage raffiné entre le carter de la filière et le sommet des restrictions entre deux chenaux hélicoïdaux successifs. On peut obtenir une résolution beaucoup plus simple en déroulant la géométrie de l'écoulement entre le poinçon et le carter, en schématisant l'écoulement dans les chenaux hélicoïdaux par des écoulements de Poiseuille tube et les écoulements au dessus des restrictions par des écoulements de Poiseuille plan, puis en écrivant sur des volumes finis des bilans de débit et de pression (Fig. 8b)

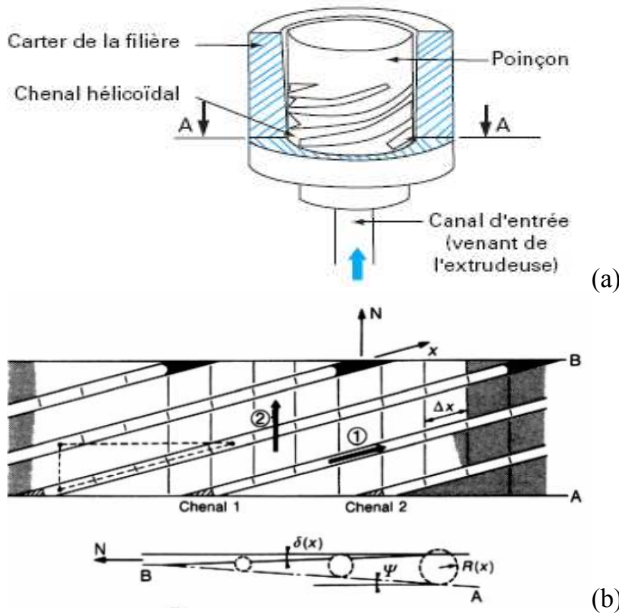


Figure 8. (a) Géométrie d'une filière de soufflage de gaine (b) géométrie de calcul équivalente (d'après [15])

4.3.2 Approximations de la lubrification hydrodynamique ou de Hele-Shaw [16]

Dans bon nombre de géométries d'outillages, la dimension transversale de l'écoulement est faible devant les autres dimensions et varie peu dans la direction de l'écoulement (Fig. 9).

Dans le cas d'un comportement newtonien isotherme, cela permet de ramener la résolution d'un problème de 4 équations (bilan de force et bilan de masse) à 4 inconnues (les 3 composantes de vitesse et la pression) à une seule équation dont la pression est la seule inconnue, sur laquelle il est naturel d'imposer des conditions aux limites (pression imposée à l'entrée et à la sortie de l'écoulement, gradient de pression nul à la périphérie de l'écou-

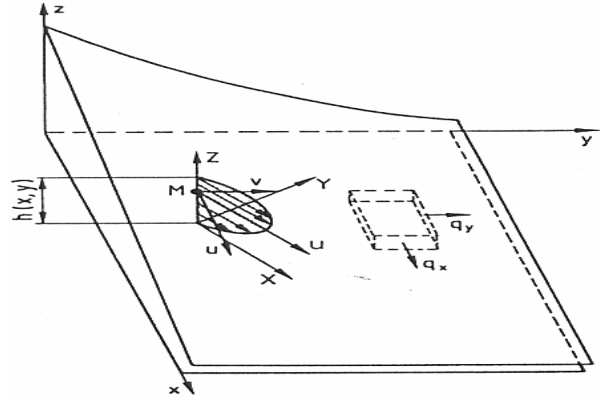


Figure 9. Géométrie typique d'un écoulement de Hele-Shaw

ment). Cela revient en réalité à négliger la composante de vitesse perpendiculaire à la direction de l'écoulement et à privilégier les termes de cisaillement dans l'épaisseur devant les termes d'élongation et les termes de cisaillement dans le plan moyen.

$$\frac{dp}{dx} = \eta \left(\frac{\partial^2 u}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 u}{\partial y^2} + \frac{\partial^2 u}{\partial z^2} \right)$$

$$\frac{dp}{dy} = \eta \left(\frac{\partial^2 v}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 v}{\partial y^2} + \frac{\partial^2 v}{\partial z^2} \right) \tag{19}$$

$$\frac{dp}{dz} = \eta \left(\frac{\partial^2 w}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 w}{\partial y^2} + \frac{\partial^2 w}{\partial z^2} \right)$$

$$h\Delta p + 3 \left(\frac{\partial p}{\partial x} \frac{\partial h}{\partial x} + \frac{\partial p}{\partial y} \frac{\partial h}{\partial y} \right) = 0 \tag{20}$$

$$\frac{\partial u}{\partial x} + \frac{\partial v}{\partial y} + \frac{\partial w}{\partial z} = 0 \tag{21}$$

Cette équation peut être généralisée à des comportements visqueux thermodépendants plus généraux.

4.3.3 Approximation du fil ou du film mince

On considère par exemple l'étirage d'un filament fluide en continu (Fig. 10). Le champ de vitesse peut s'écrire, en supposant que l'écoulement est axisymétrique et que la composante de vitesse selon la direction d'étirage z est uniforme dans chaque section : $\mathbf{u} = (u(r, z), 0, w(z))$.

L'équation de continuité permet d'exprimer de façon simple la composante de vitesse radiale $u(r, z)$ en fonction de $w(z)$:

$$u(r, z) = -\frac{r}{2} \frac{dw}{dz} \tag{22}$$

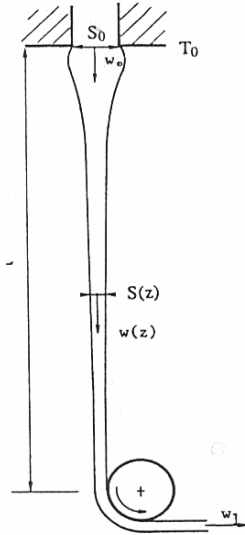


Figure 10. Schématisation de l'étirage d'un filament liquide

L'approximation du fil mince consiste cette fois-ci à négliger les termes de cisaillement devant les termes d'élongation. En supposant que le fluide a un comportement newtonien et que l'air ambiant n'exerce aucune contrainte sur la paroi du filament on retrouve la formule de Trouton [17] :

$$\sigma_{zz} = 3\eta \frac{dw}{dz} \quad (23)$$

Si, par ailleurs, on néglige les termes d'inertie et de gravité, la force d'étirage est constante, ce qui s'écrit, en tenant compte de la continuité du débit Q :

$$\frac{d}{dz} \left(3\eta \frac{Q}{w(z)} \frac{dw}{dz} \right) = 0 \quad (24)$$

Ces approximations permettent de réduire le problème à la résolution d'une seule équation dont la seule inconnue est le champ de vitesse, sur lequel il est naturel d'imposer des conditions aux limites.

4.3.4 Approximation en température moyenne

Dans la géométrie en couche mince de la Figure 9, nous pouvons écrire un bilan thermique pour un « parallélépipède » de matière de volume $h \, dx \, dy$ en un point M de coordonnées (x, y) :

$$\begin{aligned} \bar{u}(x, y) h(x, y) \left[\frac{\partial \bar{T}}{\partial x} + \frac{1}{\rho c} \frac{\partial p}{\partial x} \right] + \\ \bar{v}(x, y) h(x, y) \left[\frac{\partial \bar{T}}{\partial y} + \frac{1}{\rho c} \frac{\partial p}{\partial y} \right] = \frac{2k}{\rho c} Nu \frac{T_p - \bar{T}}{h(x, y)} \end{aligned} \quad (25)$$

\bar{u} et \bar{v} étant les composantes selon x et y de la vitesse moyenne au point M. Le nombre de Nusselt

Nu représente une adimensionnalisation du coefficient de transfert thermique h_T :

$$Nu = h_T \frac{h}{k} \quad (26)$$

Connaissant le champ de pression et le champ de vitesse grâce aux approximations de Hele-Shaw, la résolution de cette équation nous donne rapidement l'ordre de grandeur des phénomènes thermiques. La validité de cette approche en température moyenne va dépendre de la précision de l'estimation du transfert thermique (donc du nombre de Nusselt Nu) et de l'importance de l'écart de température entre la paroi de l'outillage T_p et le polymère \bar{T} . Si cet écart est faible (comme c'est le cas, en général, pour l'écoulement dans les filières d'extrusion ou entre les cylindres d'une calandre), la précision de ces approximations pourra être suffisante. Elle sera en revanche douteuse dans le cas où cet écart est important (cas des moules d'injection, par exemple).

5. Exemples d'applications

Nous allons considérer plusieurs exemples pour lesquels nous appliquerons soit les méthodes d'approximation que nous venons d'évoquer, soit des méthodes de résolution directe.

5.1 Optimisation d'une filière de gaine [18]

La filière de gaine doit répartir le débit et la température de la façon la plus régulière possible sur la circonférence de la filière. Des hétérogénéités d'épaisseur et de température ne pourraient être qu'exacerbées lors du soufflage ultérieur du film. Le nombre de paramètres géométriques que l'on peut faire varier est impressionnant (voir Fig. 8a) et le calcul dans la géométrie équivalente de la Figure 8b, réalisé en découplant l'écoulement selon l'axe des canaux et l'écoulement entre deux canaux successifs, nous permet de tester rapidement l'influence des paramètres géométriques de la filière sur la distribution de débit en sortie. La Figure 11 montre par exemple l'influence, sur la répartition de matière en sortie, de la modification de la longueur d'écoulement initial sans fuite l ou de la profondeur initiale du chenal H_0 .

Les phénomènes thermiques jouent un rôle important dans la distribution de matière. La difficulté est de définir les conditions aux limites les plus réalistes. Le calcul est fait ici en température moyenne, en supposant le poinçon adiabatique et la filière isotherme. Le couplage entre résolution mécanique et thermique s'effectue de manière itérative sur l'ensemble de l'écoulement.

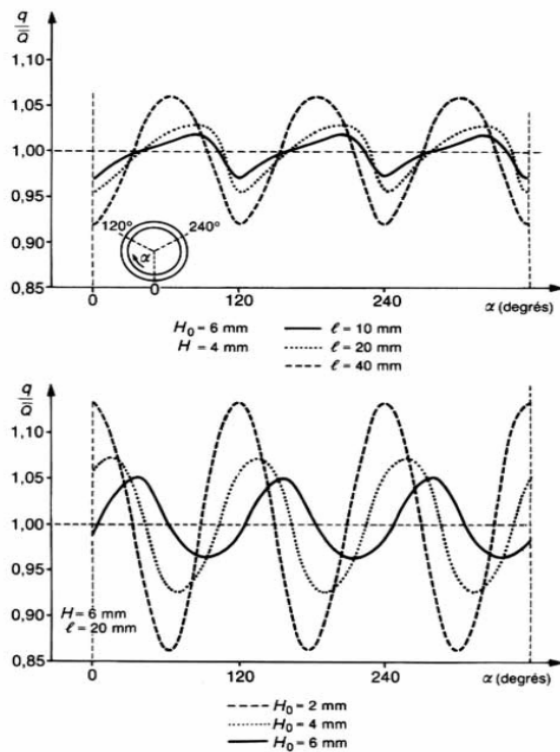


Figure 11 : Influence de certains paramètres géométriques sur la répartition de matière. a) longueur initiale sans jeu, b) profondeur initiale du chenal (d'après [15])

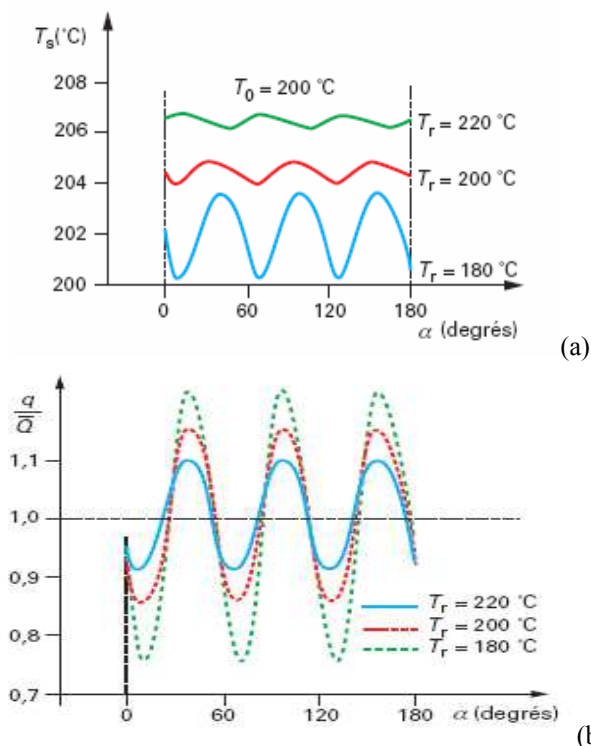


Figure 12 : Influence de la température de régulation sur les distributions de température moyenne (a) et de débit (b) en sortie de filière (d'après [15])

La Figure 12 montre que, suivant que la température de régulation est inférieure, égale ou supérieure à la température d'entrée du polymère (ici, 200°C), la

température de sortie T_s sera plus ou moins élevée et surtout plus ou moins homogène. Une température de régulation plus élevée donnera une meilleure homogénéité finale, ce qui se traduira par une meilleure distribution d'épaisseur. En revanche, une température trop élevée pourra rendre le soufflage ultérieur de la gaine difficile.

5.2 Optimisation d'une filière plate [19]

Les filières plates permettent de réaliser des feuilles ou des plaques. Elles ont le plus souvent une géométrie dite en « porte manteau » (une moitié de la géométrie est représentée à la Figure 13) : le polymère fondu provenant de l'extrudeuse s'écoule dans un canal de section variable, le « porte-manteau » (a), qui va permettre une distribution la plus uniforme possible sur toute la largeur de l'outillage. Une barre d'étranglement (c), réglable en épaisseur, suivie d'une zone de relaxation d'entrefer plus large (d), permet de corriger d'éventuelles imperfections de distribution. L'épaisseur finale est fixée par le réglage des lèvres flexibles (e).

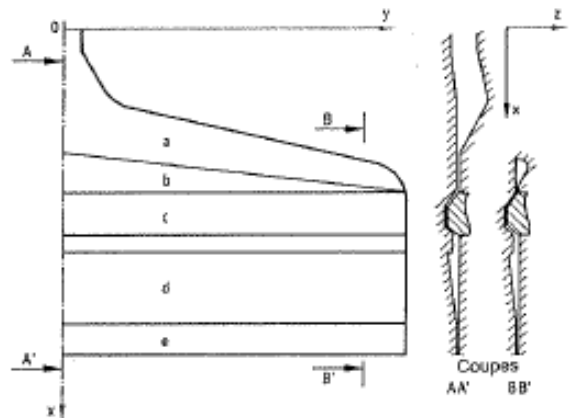


Figure 13. Schéma d'une filière plate en porte-manteau (par raison de symétrie, seule la moitié est représentée)

En supposant que la filière plate peut être assimilée à une « couche mince », les équations du problème (Hele-Shaw, température moyenne), présentées au paragraphe précédent, sont résolues de manière itérative, par des méthodes de différences finies ou d'éléments finis.

La Figure 14 indique le tracé des lignes de courant et des isobares pour un comportement rhéologique en loi puissance (indice de pseudoplasticité de 0,35).

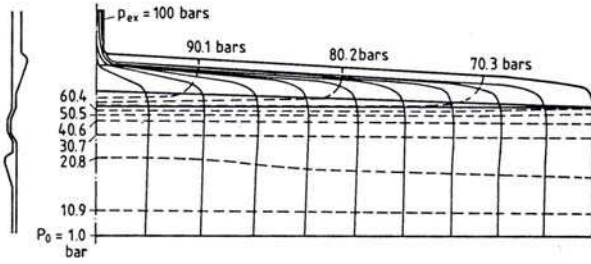


Figure 14. Distribution de pression et lignes de courant dans une filière plate (d'après [19])

La perte de charge totale est de 10 MPa et l'on observe que la pression diminue rapidement (isobares rapprochées) au niveau de la barre d'étranglement. Les lignes de courant montrent que le polymère fondu suit le canal de répartition, en passant progressivement dans la zone de lèvres. Les lignes de courant sont pratiquement équidistantes, ce qui traduit une très bonne répartition du matériau en sortie.

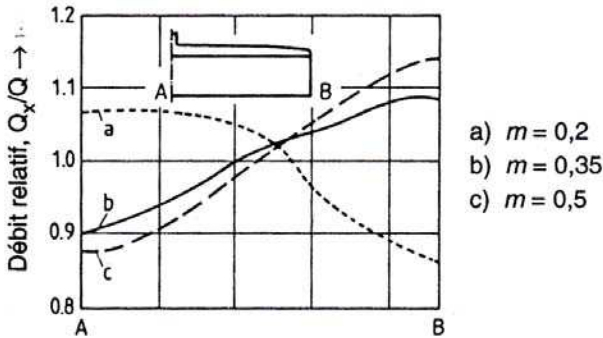


Figure 15 : influence de l'indice de pseudoplasticité sur la répartition de débit (d'après [19])

Ceci est confirmé sur la Figure 15, où l'on a tracé, sur la largeur de la filière, le rapport débit local/débit moyen pour différentes valeurs de l'indice de pseudoplasticité. Pour $m = 0,35$, cette distribution est uniforme à $\pm 10 \%$, ce qui peut être considéré comme satisfaisant, sachant que la plaque est ensuite calandree en sortie de filière. On remarquera que la distribution est fortement fonction de l'indice de pseudoplasticité du polymère utilisé : pour $m = 0,2$ les débits locaux les plus importants sont enregistrés au centre de la filière, alors que l'on observe le phénomène inverse pour des indices plus importants. Les approches trop simplifiées qui consistent à optimiser la géométrie d'une filière dans le cas d'un comportement newtonien sont donc dangereuses.

La Figure 16 indique le tracé des isothermes dans le cas où la température d'entrée du produit et la régulation thermique de la filière sont identiques et égales à 200°C.

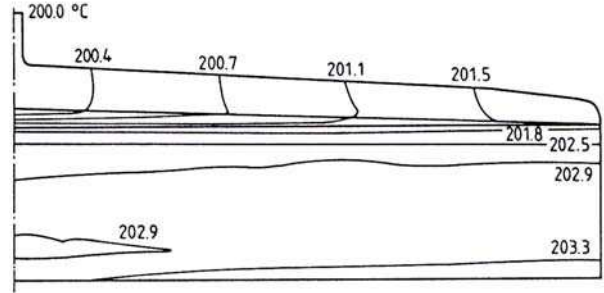


Figure 16. Evolution de la température moyenne dans la filière plate (température initiale = température de régulation de la filière = 200°C) (d'après [19])

On constate une très faible évolution de la température moyenne le long de l'écoulement et une très bonne homogénéité de température à la sortie de l'outillage. Dans les conditions choisies, l'écoulement est faiblement dissipatif et les échanges thermiques sont contrôlés par la conduction depuis les parois de la filière. On est donc ici dans des conditions d'écoulement quasi-isotherme, ce qui se traduit par une faible valeur du nombre de Brinkman.

Il est donc intéressant de calculer le changement qu'apporterait, toutes choses égales par ailleurs, une modification de la température de régulation de la filière (Figure 17).

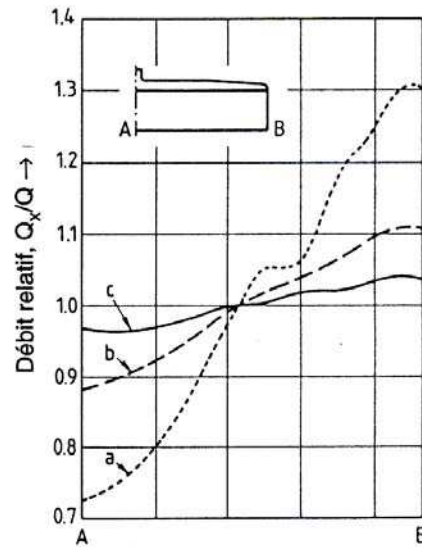


Figure 17 : influence de la température de régulation (a, 180°C, b, 200°C, c, 220°C) sur la répartition de débit (d'après [19])

On constate une nette amélioration de la distribution à 220°C et une aggravation très sensible à 180°C. Cet exemple illustre le couplage fort entre la mécanique et la thermique de l'écoulement et montre qu'il est préférable d'imposer une température de

l'outillage égale ou supérieure à la température d'entrée du polymère.

5.3 Optimisation d'une filière de profilé [20, 21]

La conception d'une filière de profilé est un problème délicat, en raison de la complexité des géométries utilisées. L'objectif majeur est d'assurer une vitesse de sortie (et une température) uniforme de toutes les zones du profilé, pour que celui-ci ne se déforme pas et respecte les côtes prédéterminées. C'est ce que l'on appelle l'« équilibrage » du profilé. La modélisation est délicate, en particulier parce que l'écoulement n'est pas aisément simplifiable et qu'une approche tridimensionnelle semble dans bien des cas inévitable. L'utilisation d'une méthode d'éléments finis tridimensionnelle requiert un maillage pertinent de la géométrie (Figure 18).

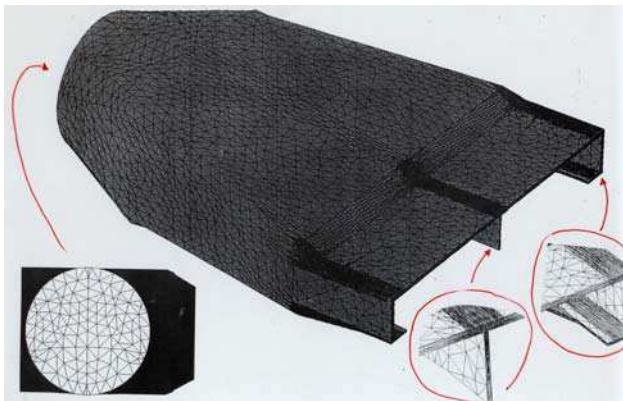


Figure 18. Maillage anisotrope d'une filière de profilé (d'après [20])

Compte tenu des réductions de section importantes entre l'entrée et la sortie de la filière (un facteur 100) et de la nécessité d'avoir un nombre de mailles suffisant dans l'épaisseur de l'écoulement final, un maillage homogène du volume de l'écoulement engendrerait des temps de calcul prohibitifs pour résoudre des systèmes d'équations possédant quelques dizaines de millions d'inconnues. L'utilisation de maillages anisotropes (raffinés dans l'épaisseur de l'écoulement et « déraffinés » dans les autres dimensions), couplée à une adaptation de la taille de maille en fonction des dimensions locales de l'écoulement et à des méthodes numériques optimisées permet d'obtenir des résultats intéressants dans des temps de calcul raisonnables [22]. La Figure 19 nous montre les phases successives d'optimisation de la géométrie de la filière pour obtenir en sortie le champ de vitesse le plus homogène possible.

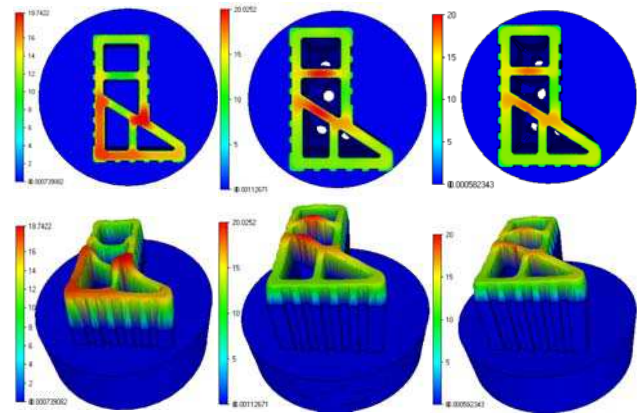


Figure 19. Exemple de calcul 3D dans une filière de profilé ; équilibrage du champ de vitesse par modification géométrique des zones amonts ; (a) géométrie initiale, (b) premier essai, (c) deuxième essai ; (haut) champ de vitesse dans la section finale ; (bas) vue en perspective ; comportement en loi puissance de viscosité (d'après [15])

5.4 Etude d'un moule d'injection

C'est dans ce domaine qu'ont été développés les premiers logiciels de simulation numérique dès le milieu des années 1980. L'objectif n'est pas, comme dans les exemples précédents, d'optimiser la forme de la pièce qui est définie par l'utilisateur, mais de tester, avant usinage du moule, s'il est possible de la réaliser avec un polymère défini et sur une presse à injecter donnée. Si tel est le cas, il importe alors d'optimiser la localisation du ou des seuils d'injection et des événements (points par lesquels on va faire sortir l'air contenu dans le moule). L'objectif est d'obtenir un remplissage le plus homogène possible (c'est-à-dire tel que les extrémités de la cavité du moule soient atteintes à des temps de remplissage équivalents) à une température la plus constante possible (c'est-à-dire dans des conditions où la dissipation d'énergie visqueuse est à peu près équilibrée par la conduction vers les parois, donc avec un nombre de Brinkman local égal à l'unité). Un problème clef est la localisation des lignes de ressoudure de flux quand la cavité comporte des obstacles dans des zones de la pièce qui sont peu visibles de l'extérieur et qui sont peu sollicitées mécaniquement. Ce problème d'optimisation du remplissage d'une cavité dans des conditions fortement anisothermes est aujourd'hui correctement résolu par bon nombre de logiciels 3D, en utilisant des lois de comportement purement visqueuses.

Les logiciels les plus répandus assimilent le moule à une « couche mince » et utilisent alors les approximations de Hele-Shaw [15]. L'approximation en température moyenne n'est pas légitime compte tenu du gradient de température très important entre le

polymère fondu et le moule, ce qui nécessite de coupler en chaque point la résolution des équations mécaniques et thermiques. On parle alors de méthode 2,5D. Ce type d'approche a été introduit par Kamal et al. [22], Hieber et Shen [23], Wang et al. [24], Willien [25]. Dans bon nombre de cas, cependant, la géométrie du moule n'est pas réductible à une couche mince et une modélisation directe 3D est requise [26]. La Figure 20 présente les phases successives du remplissage de la cavité dont le maillage a été présenté à la Figure 7.

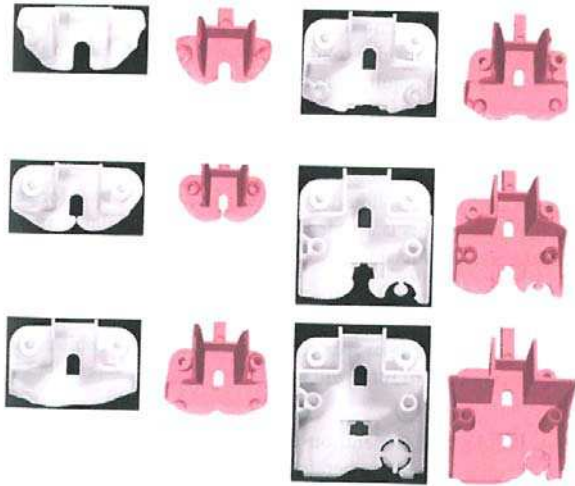


Figure 20. Evolution de la zone remplie dans la cavité de la Figure 7, observée à gauche, et calculée à droite ; le polymère est un polystyrène (d'après [26])

Mais la maîtrise du procédé d'injection nécessite de contrôler le devenir de la pièce après le remplissage de la cavité, c'est-à-dire :

- la phase de compactage, qui consiste à nourrir la cavité déjà remplie par du polymère fondu pour compenser la variation de volume spécifique sous l'effet de la température et de la pression. Cela requiert d'introduire la compressibilité dans les équations de bilan (masse, mécanique et thermique) et d'accéder à des données pertinentes sur la dépendance de la masse volumique en fonction de la température et de la pression.

- la phase de solidification de la pièce, qui débute bien entendu dès la phase de remplissage et qui se poursuit au cours de la phase de compactage, ce qui, pour les polymères semi-cristallins, nécessite de connaître la température de cristallisation en fonction de la contrainte d'écoulement et de la vitesse de descente en température. C'est au cours de cette phase que vont se construire les contraintes résiduelles, qui vont aboutir à une déformation de la pièce à l'ouverture du moule et donc à des dimensions finales différentes de celles de la cavité.

La Figure 21 compare, dans la pièce présentée à la Figure 7, l'évolution de la pression calculée et de la pression mesurée dans le moule à deux débits différents.

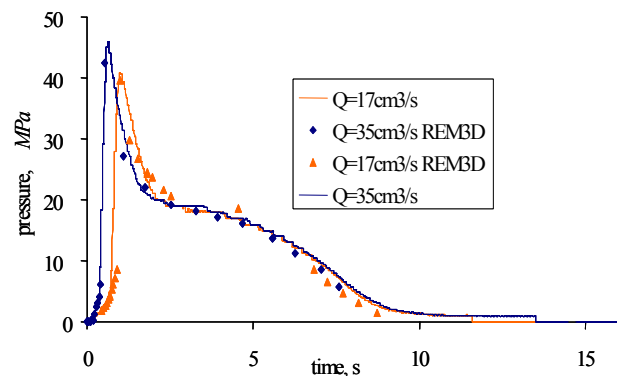


Figure 21. Evolution de la pression dans la cavité de la Figure 7 au cours de l'ensemble du cycle d'injection pour deux débits ; le polymère est un polystyrène (d'après [26])

Le calcul des contraintes résiduelles et des déformées qui en résultent à l'ouverture du moule reste un problème scientifique ouvert.

5.5. Etude du soufflage d'un corps creux

Le procédé consiste à extruder un tube vertical, la paraison, à le pincer à sa base à l'intérieur d'un moule refroidi, puis à souffler de l'air pour étirer la paroi du tube chaud le long du moule froid (Fig. 22). Le corps creux se refroidit, puis le moule s'ouvre, la pièce tombe et une nouvelle opération peut débuter.

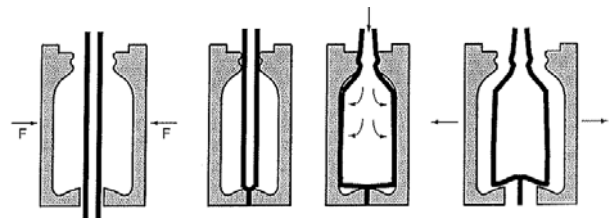


Figure 22. Extrusion-soufflage d'un corps creux (d'après [28])

Dans le cas de la fabrication de petits corps creux (essentiellement en polyéthylène), ces opérations sont effectuées à grande vitesse dans un moule à plusieurs postes, tournant en dessous de la filière de tube. Dans d'autres cas (fabrication de réservoirs automobiles par exemple), l'extrudeuse remplit en continu un pot d'où la matière est expulsée à intervalles réguliers à travers une filière de tube ; l'opération de soufflage s'effectue alors plus lentement et dans un seul moule [27].

L'objectif est de contrôler l'épaisseur de la paroi du corps creux (pas nécessairement uniforme), mais aussi les contraintes engendrées dans sa paroi au

cours du plaquage le long du moule froid. Ces contraintes peuvent provoquer une déformation du corps creux lors de l'ouverture du moule.

On choisit une approche de type membrane et une loi de comportement viscoélastique, compte tenu du caractère dominant des déformations élongationnelles [29].

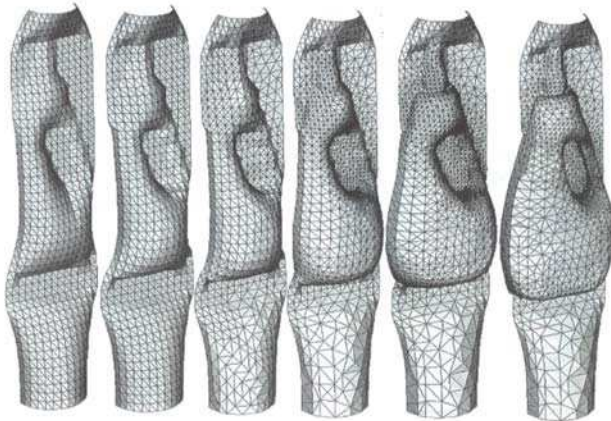


Figure 23. Simulation de l'extrusion-soufflage d'un flacon en polyéthylène : déformées successives avec remaillage automatique (d'après [30])

On observe Figure 23 les déformations successives de la paraison au cours de l'opération de soufflage, ainsi que les étapes de raffinement et de déraffinement du maillage surfacique qui permettent de contrôler le temps de calcul tout en ayant une bonne précision dans les zones qui sont fortement déformées ou (et) au voisinage du contact avec le moule.

La Figure 24 nous présente la distribution finale d'épaisseur

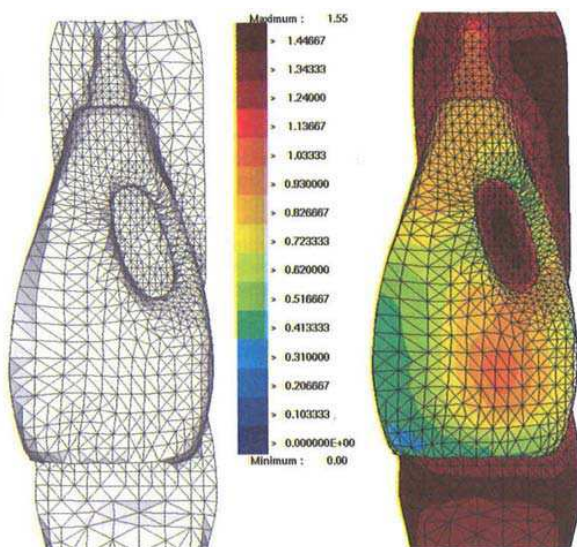


Figure 24. Maillage final (à gauche) et répartition d'épaisseur dans le flacon (à droite) (d'après [30])

6. Conclusions

Durant la dernière décennie, des progrès considérables ont été accomplis dans le domaine de la modélisation des procédés de mise en forme des polymères. Nous disposons aujourd'hui de modèles tridimensionnels compressibles, couplant les phénomènes mécaniques et thermiques, avec des lois constitutives qui rendent compte de manière réaliste du comportement des polymères dans des situations stationnaires et instationnaires.

Il reste cependant de nombreux défis à relever pour rendre ces méthodes complètement opérationnelles :

- réduire le « temps de préparation des calculs », ce qui requiert la mise en place de procédures de maillage automatique d'une forme complexe à partir des dimensions locales de l'écoulement ;
- réduire les temps de calcul, ce qui requiert le développement de méthodes de maillage adaptatif, de solveurs itératifs, de calcul parallèle ou de méthodes de résolution éléments finis « espace-temps » ;
- être capable de connaître a priori la précision d'un calcul, ce qui signifie développer des estimateurs d'erreurs appropriés et des procédures de remaillage pilotées par ces estimateurs.

Il est évident par ailleurs que ces modèles numériques n'ont de l'intérêt que s'ils sont basés sur des modèles physiques pertinents :

- des lois de comportement suffisamment précises, mais comportant des paramètres qui sont accessibles via des tests rhéologiques raisonnables ; nous avons vu que les modèles numériques pouvaient être mis à profit pour les dépouiller ;
- des conditions aux limites réalistes, tant en terme de cinématique que de conditions aux limites thermiques ;
- une représentation correcte des mécanismes de changement de phase, cristallisation ou solidification, fusion ou plastification.....

Le chaînage entre le comportement rhéologique du polymère, son aptitude au formage, la structure induite (dans le cas des polymères semi-cristallins) et les propriétés de l'objet fabriqué est maintenant envisageable. Le rêve serait d'être à même de « faire le chemin inverse », c'est-à-dire de partir des propriétés cibles de l'objet pour définir et l'architecture moléculaire du polymère (masse moléculaire moyenne, distribution de masse, longueur et distribution des branchements, taux de co-monomère, mélange) et le procédé de mise en forme adapté.

De nombreuses études seront nécessaires pour que ce rêve devienne réalité.

7. Références

- [1] Maillefer C. Boudineuses à vis, *Swiss Patent n° 363149* (1959).
- [2] Agassant J.F., Avenas P., Sergent J.Ph., Vergnes B., Vincent M., *La Mise en Forme des Matières Plastiques*, Tec et Doc (1996).
- [3] Dreyer J.L. Injection assistée par gaz. *Techniques de l'Ingénieur*, AM 3 693 (2012).
- [4] Carreau P.J. Rheological equations from molecular network theories, *Trans. Soc. Rheo.*, 16: 99-127 (1972).
- [5] Yasuda K.Y., Armstrong R.C., Cohen R.E. Shear flow properties of concentrated solutions of linear and star branched polystyrenes, *Rheol. Acta*, 20: 163-178 (1981).
- [6] Agassant J.F., Arda D., Combeaud C., Merten A., Münstedt H., Mackley M.R., Robert L., Vergnes B. Polymer processing extrusion instabilities and methods for their elimination or minimisation. *Intern. Polym. Proc.*, 21: 239-255 (2006).
- [7] Valette R., Laure P., Demay Y., Agassant J.F. Experimental investigation of the development of interfacial instabilities in two-layer coextrusion flow, *Intern. Polym. Proc.*, 19: 118-128 (2004).
- [8] White J.L., Metzner A.B. Development of constitutive equations for polymeric melts and solutions, *J. Appl. Polym. Sci.*, 7 :1867-1889 (1963).
- [9] Phan Thien N., Tanner R.I. A new constitutive equation derived from network theory, *J. Non-Newt. Fluid Mech.*, 2: 353-365 (1977).
- [10] Marrucci G., Ianniruberto G., Flow induced orientation and stretching of entangled polymers, *Phil. Trans. Royal Soc. London, Series A- Math. Phys. Eng. Series* 361: 677-687 (2003).
- [11] Boukellal G., Durin A., Valette R., Agassant J.F. Evaluation of a tube-based constitutive equation using conventional and planar elongation flow optical rheometers, *Rheol. Acta*, 50, 547-557 (2011).
- [12] Keunings R., Simulation of viscoelastic fluid flow. in: *Fundamentals of Computer Modeling for Polymer Processing*, C.L. Tucker III ed., Hanser, Munich, 402-470 (1989).
- [13] Maddock P.G., A visual analysis of flow and mixing in extruder screws, *Soc. Plast. Eng. J.*, 15, 383-389 (1959)
- [14] Tadmor Z., Klein I. *Engineering Principles of Plasticating Extrusion*, Van Nostrand Reinhold, New York (1970).
- [15] Vergnes B., Agassant J.F. Modélisation des écoulements dans les filières d'extrusion. *Techniques de l'Ingénieur*, AM 3 655, 1-19 (2008).
- [16] Hele-Shaw H.S. The motion of perfect fluid, *Notes on Proceedings of the Royal Institution of Great Britain*, 16: 49-64 (1899).
- [17] Trouton F.T. On the coefficient of viscous traction and its relation to that of viscosity, *Proc Roy Soc London*, A77: 426-440 (1906).
- [18] Saillard P., Agassant J.F. Polymer flow in a spiral mandrel die for tubular films. *Polym. Proc. Eng.*, 2, 37-52 (1984).
- [19] Vergnes B., Saillard P., Plantamura B. Berechnungsmethoden für Breitschlitz-Extrusionwerkzeuge. *Kunstst.*, 70, 750-752 (1980).
- [20] Gobeau J.F., *Etude expérimentale et simulation numérique 3D par éléments finis de l'écoulement dans les filières d'extrusion de profilés PVC*. Thèse de Doctorat, Ecole des Mines de Paris (1996).
- [21] Foudrinier E., *Etude numérique et expérimentale du procédé d'extrusion de pâtes argileuses*, Thèse de Doctorat, Ecole des Mines de Paris (2007)
- [22] Kamal M., Kuo Y., Doan P.H. The injection molding behavior of thermoplastics in thin rectangular cavities. *Polym. Eng. Sci.*, 15 : 863-868 (1975).
- [23] Hieber C.A., Shen S.F. A finite-element/finite-difference simulation of the injection-molding filling process. *J. Non-Newt. Fluid Mech.*, 7 : 1-32 (1980).
- [24] Wang V.W., Hieber C.A., Wang K.K. Dynamic simulation and graphics for the injection molding of three-dimensional thin parts. *J. Polym. Eng.*, 7, 21-45 (1986).
- [25] Willien J.L. *Modélisation surfacique du remplissage de moules en injection des thermoplastiques*. Thèse de Doctorat, Ecole des Mines de Paris (1992).
- [26] Silva L., Agassant J.F., Coupez T. Three dimensional injection molding simulation. In : Kamal MR, Isayev A, Liu SJ. *Injection molding. Technology and Fundamentals*. Hanser, Munich, 599-651 (2009).
- [27] Denis G., Extrusion-soufflage et injection-Soufflage avec ou sans biétirage, *Techniques de l'ingénieur*, A3700 (1989).
- [28] Agassant J.F., Haudin J.M., Mise en forme des polymères, dans : *Matériaux Polymères*, M. Carrega Ed., Dunod (2007).
- [29] Rodriguez-Villa A., Agassant J.F., Bellet M., Finite element simulation of the extrusion blow-molding process in : *Simulation of material processing, theory, methods and applications*, Shen S.D., Dawson P. (eds), Balkema, Amsterdam, 1053-1058 (1995)
- [30] Bellet M., Monasse B., Agassant J.F., Simulation numérique des procédés de soufflage, *Techniques de l'Ingénieur*, AM 3705 (2000)

[Abridged English version]

Basic Principles of Polymer Processing Modeling

Polymer processing modeling is now commonly used for die and mold conception and processing parameters optimization. In the next future, the objective is to predict also the structure of the polymer parts and so the resulting properties. Modeling requires mastering the rheological behaviour of molten polymers, the kinematic and heat transfer boundary conditions and a pertinent understanding of the various physical phenomena which govern the process.