

Simulation directe 2D et 3D de la dispersion d'agglomérats sous cisaillement dans une matrice polymère

M. Leboeuf^{1,2}, T. Coupez¹, N. Ghamri², B. Brulé², B. Vergnes¹

1) CEMEF, Ecole des Mines de Paris, UMR CNRS 7635, BP 207, 06904 Sophia-Antipolis, France

2) Cerdato, Arkema, 27470, Serquigny, France
mathilde.leboeuf@ensmp.fr

Résumé :

Nous avons développé une méthode de simulation directe de la dispersion de charges sphériques dans une matrice polymère soumise à un cisaillement. L'agglomérat est immergé dans un fluide newtonien et incompressible. Il est considéré comme un assemblage de sphères liées entre elles par une énergie de cohésion, modélisée par une viscosité de cohésion. Les paramètres de ce modèle sont la contrainte hydrodynamique et la longueur caractéristique de la zone d'influence des sphères. Ce modèle simple permet une première approche du phénomène de dispersion dans un écoulement de cisaillement. Les tendances observées lors des simulations menées en 2D et 3D montrent qu'une augmentation du taux de cisaillement entraîne une érosion plus rapide de la charge.

Abstract :

In this study, we present a direct numerical simulation of shear induced dispersion of spherical filler in polymer matrix. The agglomerate, immersed in an incompressible Newtonian fluid, is modelled by spherical particles linked together by cohesive energy. The numerical models computed both in 2D and 3D allow obtaining qualitative results of the agglomerate behaviour. Those results are in agreement with the experimentals in the literature.

Mots-clefs :

Dispersion, Agglomérat, Simulation numérique directe

1 Introduction

L'addition de charges dans une matrice thermoplastique est utilisée pour donner de nouvelles propriétés aux polymères. Pendant le mélangeage, la dispersion de la charge est guidée par une compétition entre les forces hydrodynamiques générées par l'écoulement et les forces de cohésion de l'agglomérat.

Les charges sont dispersées grâce à deux phénomènes principaux : l'érosion, qui est un mécanisme lent, pendant lequel de petites particules se détachent de la périphérie de l'agglomérat, et la rupture, qui est un mécanisme rapide et brutal, où l'agglomérat se casse en quelques gros fragments. Il existe des lois de comportement microscopiques qui décrivent ces deux phénomènes [Kao *et al.* (1976), Manas-Zloczower *et al.* (1982), Bohin *et al.* (1996)]. Elles ont été établies à partir de résultats expérimentaux. Ces modèles comportent souvent des paramètres que l'on doit ajuster par l'expérience, ce qui les rend difficilement utilisables pour réaliser des simulations numériques [Diaz-Goano *et al.* (2003)].

Notre objectif est de modéliser la dispersion d'un agglomérat par simulation numérique directe. Cette approche consiste à calculer l'écoulement réel du fluide et des particules à l'échelle microscopique. La charge modélisée est un agglomérat formé d'un assemblage de sphères rigides, liées entre elles par des forces visqueuses. Il est immergé dans un fluide newtonien incompressible, soumis à un écoulement de cisaillement simple.

Après avoir décrit le problème à résoudre, nous exposerons les méthodes numériques utilisées. Nous présenterons ensuite les simulations de la dispersion d'un agglomérat en 2D.

Pour ce cas, nous étudierons l'influence des paramètres de la loi visqueuse et du taux de cisaillement sur la dispersion, et nous discuterons les résultats obtenus. Enfin, nous présenterons l'application du modèle dans un cas 3D.

2 Le modèle global

On considère un domaine spatial Ω , constitué de deux sous-domaines : Ω_f , sous-domaine fluide, et Ω_s , sous-domaine solide. Le sous-domaine Ω_s est la réunion de domaines solides sphériques i représentant les particules. L'ensemble de ces particules constitue l'agglomérat à disperser. Il est tel que :

$$\Omega_s = \bigcup_{i=1}^n \Omega_s^i \quad (1)$$

La charge est immergée dans un fluide supposé newtonien et incompressible. On néglige les forces de gravité et d'inertie dans le fluide. On peut donc décrire le mouvement du domaine Ω_f par les équations de Stokes.

Dans le cas des particules, le champ de vitesse est calculé en utilisant une méthode dite monolithique, c'est-à-dire que l'on calcule un champ de vitesse continu entre le fluide et l'agglomérat, et l'on impose un contact collant entre les deux domaines. Il est donc nécessaire d'imposer une grande rigidité dans le domaine solide par une méthode de pénalisation [Glowinski *et al.* (1999)]. Pour cela, on applique une grande viscosité (de l'ordre de 10^3 fois celle du fluide) dans les sous-domaines solides composant l'agglomérat.

L'assemblage de particules sphériques forme l'agglomérat à disperser. Leur liaison est assurée par une viscosité artificielle de cohésion η_c , qui évolue linéairement sur une bande de recouvrement autour des sphères, entre le rayon de la sphère R_p et un rayon d'interaction R_i (Fig. 1).

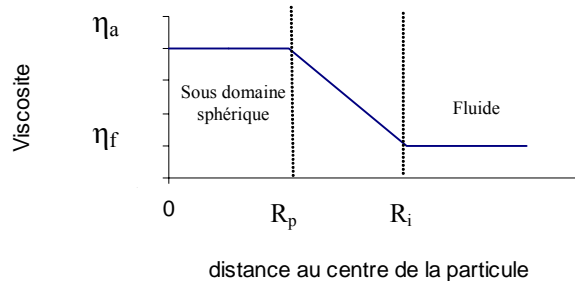


FIG. 1 - Représentation de la viscosité dans le cas d'un sous-domaine sphérique immergé dans un fluide (R_p rayon de la particule, R_i rayon de la zone d'interaction).

Ceci permet d'avoir un modèle de fluide unique hétérogène dans tout le domaine Ω :

$$\left\{ \begin{array}{l} \nabla \cdot \vec{u} = 0 \text{ dans } \Omega \quad (2) \\ \nabla \cdot (-p\mathbf{I}) + \nabla \cdot (2\eta \underline{\underline{\dot{u}}}) = 0 \text{ dans } \Omega \text{ avec } \eta = \eta(x) \quad (3) \end{array} \right.$$

avec

$$\begin{cases} \eta = \eta_f & \text{dans le fluide} \\ \eta = \eta_a & \text{dans les sous - domaines sphériques composant l'agglomérat} \\ \eta = \eta_f(x) & \text{dans la zone d'interaction} \end{cases}$$

La valeur de la viscosité aux nœuds dépend donc du domaine (solide, fluide, zone d'interaction) dans lequel ils se trouvent. Par conséquent, il est nécessaire de repérer le domaine solide et le domaine fluide. Pour cela, on calcule une fonction distance signée, qui sera positive dans les particules, négative dans le fluide et nulle à la frontière entre le solide et le fluide.

Les calculs sont réalisés à partir d'une méthode éléments finis mixtes. La position de chaque sphère est réactualisée par une méthode particulière.

3 Méthode numérique

La méthode repose sur une approche eulérienne pour le fluide, et une approche particulière pour l'agglomérat, ce qui nous permet d'utiliser la librairie Cimlib [Laure *et al.* (2007), Beaume *et al.* (2006)].

Le maillage eulérien n'est pas remaillé au cours du calcul. C'est sur ce maillage que l'on calcule le champ de vitesse. Le second maillage est constitué uniquement de nœuds (sans élément). Chaque nœud représente une particule constituant l'agglomérat. Leur position est actualisée à chaque pas de temps.

Le calcul du champ de vitesse sur le maillage de fond nécessite de connaître le champ de viscosité, qui dépend lui-même de la position des particules sur ce maillage. On calcule alors, pour chaque nœud du maillage de fond, la fonction distance.

3.1 Calcul de la fonction distance

La fonction distance est notée $\alpha(X_i)$. Elle est telle que :

$$\alpha(X_i) = R_p - \text{Min}(d(X_i, X_p)) \quad (4)$$

où X_i est un nœud appartenant au maillage de fond et X_p un nœud appartenant au maillage de particules. $d(X_i, X_p)$ représente la distance minimale du nœud X_i du maillage de fond aux nœuds X_p représentant les particules. On retranche la valeur du rayon de la particule à $d(X_i, X_p)$ afin d'obtenir une fonction signée telle que :

$$\alpha(X_i) < 0 \text{ pour } R > R_p \quad (5)$$

$$\alpha(X_i) > 0 \text{ pour } R < R_p \quad (6)$$

$$\alpha(X_i) = 0 \text{ pour } R = R_p \quad (7)$$

A partir de la fonction signée $\alpha(X_i)$, on calcule le champ de viscosité, puis le champ de vitesse sur le maillage de fond à l'aide des équations (2) et (3). Connaissant le champ de vitesse sur le maillage de fond, on le transporte sur le maillage de particules afin de déterminer la vitesse des nœuds représentant les particules. Puis on calcule leur nouvelle position, et enfin on déplace les particules.

4 Résultats

4.1 Dispersion d'un agglomérat - Résultats 2D

Les simulations menées sont réalisées en 2D. Les calculs sont effectués sur un domaine spatial rectangulaire. On applique un cisaillement simple, avec une vitesse positive sur la paroi supérieure et une vitesse identique négative sur la paroi inférieure (Fig. 2).

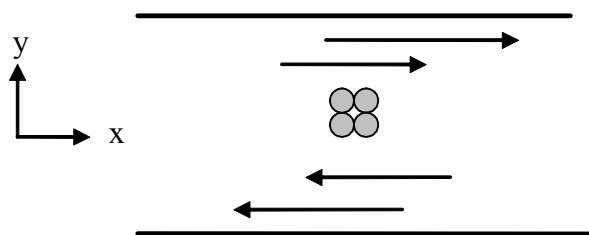


FIG. 2 - Représentation de l'agglomérat dans l'écoulement de cisaillement simple.

La Figure 3 présente un résultat typique pour un agglomérat constitué de 178 sphères. Au départ, la cohésion entre les sphères empêche leur détachement et l'on observe simplement une rotation de l'agglomérat sur lui-même. Dès que les interactions entre sphères deviennent plus faibles, elles peuvent se séparer et l'on observe un mécanisme de dispersion proche de l'érosion.

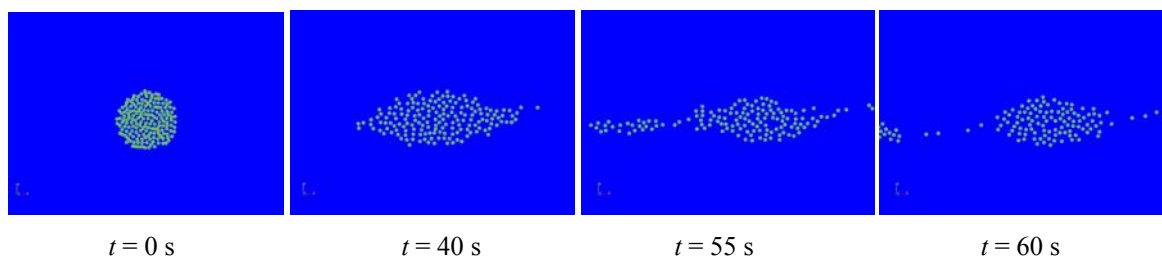


FIG. 3 - Dispersion au cours du temps d'un assemblage de 178 sous-domaines sphériques

Nous avons commencé par étudier l'influence de la longueur caractéristique de la zone d'interaction [Leboeuf *et al.* (2006)]. Ce travail a montré que la représentation de l'énergie de cohésion par une viscosité permet bien une première approche de la cohésion des particules.

Une seconde étude a porté sur l'influence du taux de cisaillement appliqué sur la dispersion. Cette étude est réalisée à partir d'un agglomérat de 0,15 mm de diamètre, constitué de 88 particules. Il est immergé dans un fluide soumis à un écoulement de cisaillement, avec un entrefer de 0,5 mm. Trois taux de cisaillement sont étudiés : 5 s^{-1} , 10 s^{-1} et 15 s^{-1} . L'exploitation des simulations est faite en comptant le nombre de particules qui se détachent de l'agglomérat en fonction du temps. On trace le cumul du nombre de particules érodées en fonction de la déformation pour les trois taux de cisaillement étudiés.

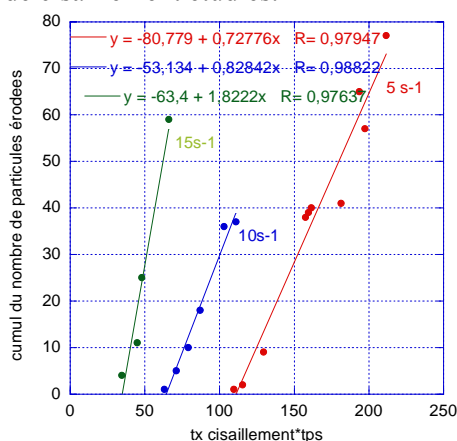


FIG 4 - Cumul du nombre de particules érodées pour un agglomérat de 0,15 mm de rayon soumis à un écoulement de cisaillement simple dans un entrefer de 0,5 mm. Simulation numérique réalisée à trois taux de cisaillement différents 5, 10 et 15 s^{-1} .

On constate que l'évolution est linéaire, mais que les droites ne passent pas par l'origine, ce qui indique qu'il faut atteindre une déformation seuil pour débiter le mécanisme d'érosion des particules. Cette déformation seuil correspond à la déformation nécessaire pour que les particules ne soient plus sous l'influence de l'énergie de cohésion de leurs voisines. En effet, les particules doivent préalablement avoir atteint un degré de liberté suffisant pour pouvoir "sortir" de l'agglomérat.

Une fois le seuil de déformation dépassé, le nombre de particules détachées évolue linéairement avec la déformation pour un taux de cisaillement donné. De plus, plus le taux de cisaillement augmente, plus l'érosion est rapide. Ces résultats sont qualitativement en accord avec les résultats expérimentaux obtenus sur l'influence du taux de cisaillement sur la dispersion [Scurati *et al.* (2002), Collin (2004)].

Suite à ces premiers résultats en 2D, des calculs 3D de la dispersion d'agglomérats sous l'effet d'un cisaillement ont été réalisés.

4.2 Dispersion d'un agglomérat - Résultats 3D

Les calculs sont réalisés dans un domaine spatial parallélépipédique. On impose une vitesse positive sur la paroi supérieure et une vitesse négative sur la paroi inférieure, des conditions de symétrie sur les parois latérales, et des conditions de surfaces libres sur les plans d'entrée et de sortie (Figure 5). La hauteur de la cavité est de 1 mm, le rayon de l'agglomérat est de 0,17 mm et la vitesse imposée est de 7 mm/s.

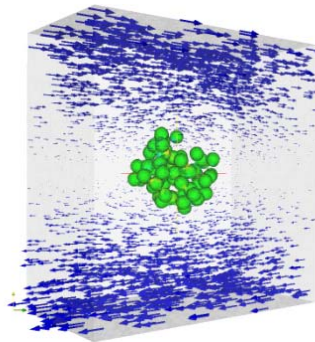


FIG 5 – Champ de vitesse appliqué pour la simulation numérique de la dispersion au cours du temps d'un assemblage de 64 sous-domaines sphériques. Vue cavalière.

Le cas présenté Figure 6 est réalisé avec un maillage de 265 000 nœuds. L'agglomérat est constitué de 64 sous-domaines solides. Le calcul a été réalisé en parallèle sur 8 processeurs pendant 8 jours.

Au départ, l'agglomérat effectue des rotations sur lui-même. Progressivement, les particules se détachent de l'agglomérat par un mécanisme proche de l'érosion, jusqu'à sa dispersion totale.

Afin de dégager des tendances réalistes à partir des calculs en 3D, il semble important de réaliser ces calculs sur des agglomérats constitués d'un plus grand nombre de sous domaines sphériques. Cependant, ceci implique d'utiliser un maillage de fond constitué d'un nombre de nœuds plus important, ce qui augmente les temps de calculs, et peut même entraîner une incapacité à résoudre les équations de la mécanique si les puissances de calculs disponibles sont insuffisantes.

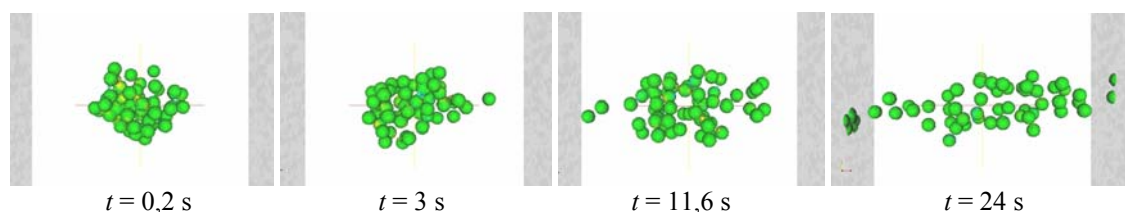


FIG 6 – Dispersion au cours du temps d'un assemblage de 64 sous domaines sphériques.
Vue de profil.

4 Conclusions

Une approche a été développée afin de simuler le comportement d'un agglomérat dans un écoulement de cisaillement simple. Ce modèle, qui est encore assez approximatif en ce qui concerne les forces d'interactions entre les particules, permet de mener des expériences de simulations représentatives des phénomènes de dispersion. Les premières simulations ont permis d'obtenir des résultats qualitatifs cohérents sur le comportement de l'agglomérat. En effet, les résultats de simulation montrent que la dispersion est plus rapide lorsque l'on augmente le taux de cisaillement, ce qui est en accord avec les observations expérimentales.

Des cas de dispersion 3D ont ensuite été réalisés. Ces calculs donnent également des résultats en accord avec les observations expérimentales, bien que les agglomérats dispersés comportent un nombre réduit de sous-domaines.

Les perspectives de ce travail sont de réaliser des cas 3D d'agglomérats comportant un plus grand nombre de particules, et d'implémenter dans le modèle des forces de cohésion plus réalistes.

Références

- Beaume, G., Laure, P., Coupez, T., Les méthodes numériques pour les écoulements de fluides chargés, *1er Colloque Interaction Fluide-Structure GDR CNRS 2902*, Sophia-Antipolis (2005).
- Bohin, F., Manas-Zloczower, I., Feke, D. L. 1996 Kinetics of dispersion for sparse agglomerates in simple flows: application to silica agglomerates in silicone polymers, *Chem. Eng. Sc.*, 51, 5193-5204
- Collin, V. 2004 Etude rhéo-optique des mécanismes de dispersion du noir de carbone dans des élastomères, *Thèse de Doctorat*, Ecole des Mines de Paris
- Diaz-Goano, C., Minev, P. D., Nandakumar, K. 2003 A fictitious domain/finite element method for particulate flows, *J. Comput. Phys.*, 192, 105-123
- Glowinski, R., Pan, T.-W., Hesla, T., Joseph, D. A distributed Lagrange multiplier/fictitious domain method for particulate flows. *Int. J. Multiphase Flow* 25, 755–794, (1999)
- Kao, S. V., Mason, S. G. 1975 Dispersion of particles by shear, *Nature*, 253, 619-621
- Laure, P., Beaume, G., Basset, O., Silva, L., Coupez, T., Numerical methods for solid particles in particulate flow simulations, *European Journal of Computational Mechanics* in press (2007)
- Leboeuf, M., Coupez, T., Ghamri, N., Vergnes, B., Brulé, B. 2006 Simulation directe de la dispersion d'agglomérat dans une matrice polymère sous l'effet d'un cisaillement, 41^{ème} Colloque Annuel du Groupe Français de Rhéologie, Cherbourg, CD Rom
- Manas-Zloczower, I., Nir, A., Tadmor, Z. 1982 Dispersive mixing in internal mixers. A theoretical model based on agglomerate rupture, *Rubber Chem. Tech.*, 55, 1250-1285
- Scurati, A., Feke, D. L., Manas-Zloczower, I. 2002 Model and analysis for kinetics of agglomerate erosion in simple shear flow. *ACS Rubber Division Meeting*, Savannah, Georgia