

Etude numérique de la coextrusion de polyester : Effet de la régulation thermique et de la géométrie de la filière sur la stabilisation des instabilités interfaciales

O MAHDAOUI ^a, J-F AGASSANT ^a, P.LAURE ^{a,b}, R.VALETTE ^a, L.SILVA ^a

^a Ecole Nationale Supérieure des Mines de Paris (ENSMP)- centre de mise en forme des matériaux (CEMEF), UMR CNRS 7635, Rue Claude Daunesse BP 207 06904 Sophia Antipolis

^b Laboratoire Jean-Alexandre Dieudonné, UMR 6621 CNRS, Université de Nice, Parc Valrose Nice
E-Mail : Omar.Mahdaoui@ensmp.fr, Jean-Francois.Agassant@ensmp.fr,

Patrice.Laure@ensmp.fr, Rudy.Valette@ensmp.fr, Luisa.Silva@ensmp.fr web: <http://www-cemef.cma.fr>

Résumé :

La fabrication d'un film multicouche peut être réalisée de manière économique par l'utilisation de la technique de coextrusion. Des instabilités peuvent apparaître à l'interface entre les deux polymères ce qui rend le produit inexploitable. L'objectif de cette étude est d'étudier numériquement l'influence du procédé et des paramètres rhéologiques sur les instabilités.

Abstract:

The polymer coextrusion process is a method of multilayer film production. It may exhibit flow instabilities at the interface between the two polymer layers. The objective of this study is to check the influence of processing and rheology parameters on the instabilities. Finite elements numerical simulations of the coextrusion allow investigating various stable and instable flow configurations.

Mots-clefs : Coextrusion ; instabilités ; polyester

1 Introduction

Le procédé de coextrusion consiste à extruder plusieurs polymères à l'état liquide à travers une filière pour obtenir un produit multicouche qui pourra être utilisé dans de multiples applications (film polymère, revêtement d'un substrat...). La superposition des couches permet de conférer au produit des propriétés complémentaires (adhésion, résistance mécanique, aptitude à l'impression...). Dans certaines conditions opératoires, on observe des instabilités à l'interface entre les deux couches qui vont nuire aux qualités du produit obtenu (Valette *et al.* (2004) ou Han *et al.* (1984)) (FIG. 1).

Il existe très peu d'études expérimentales concernant les instabilités en coextrusion avec des polymères commerciaux et des filières complexes (Han *et al.* (1984) ou Schrenk *et al.* (1978)). Ces études montrent que plusieurs paramètres peuvent être la cause de ces instabilités : les températures des produits et de la filière, les débits de chaque polymère, la différence de leur viscosité et de leur élasticité (Valette *et al.* (2001) Ganpule *et al.* (1999)). Les études numériques sont réalisées généralement avec des géométries simples. Les différents modèles étudient l'influence du nombre de Reynolds et du nombre de Weissenberg sur l'évolution de l'interface (Yamaguchi *et al.* (1999) ou Zatloukal *et al.* (2001)).

Dans ce papier, nous avons développé un modèle numérique permettant de saisir l'influence de la géométrie de la filière, du rapport des débits, de la température de la filière et de la rhéologie des polymères sur les instabilités interfaciales. Dans un premier temps, nous effectuons un calcul éléments finis 3D sur l'ensemble de la filière (avec seulement une couche) ce qui permet de montrer que l'écoulement est 2D dans la zone d'entrée et la zone de sortie de la filière. Par la suite nous développons des calculs 2D bicouches isothermes et non isothermes dans ces deux zones pour étudier la propagation de la perturbation imposée à l'entrée et nous analysons les instabilités d'interface à la sortie de filière.

2 Géométrie et matériaux

Nous considérons la géométrie de la filière plate dite en « porte-manteau » (FIG. 2(a)). Elle est composée de trois zones : la première zone est un canal d'alimentation avec une faible largeur et une forte épaisseur, la deuxième zone sous forme de porte manteau assure une répartition homogène des polymères sur toute la largeur de la filière ; elle se termine par une troisième zone qui est beaucoup plus large et plus mince et qui comporte un convergent à sa sortie (FIG. 2(b)).

La rhéologie des deux polyesters coextrudés (PET1 et PET2) est très différente. La figure 3 présente les courbes de viscosité et d'élasticité en fonction du taux de cisaillement à 260°C. Le polyester PET1 a un comportement élasto viscoplastique alors que le polyester PET2 pourra être considéré comme newtonien. Par la suite, on procède à un ajustement des courbes expérimentales de viscosité avec la loi de Carreau-Yasuda. Elle s'écrit :

$$\eta(\dot{\gamma}, T) = \eta_0 a_T \left[1 + (\lambda \dot{\gamma})^a \right]^{(m-1)/a} \quad (1)$$

Où a_T est le facteur de glissement thermodépendant (il suit une loi d'Arrhénius où E est l'énergie d'activation de la viscosité, R la constante des gaz parfaits et T_0 la température de référence), $\dot{\gamma}$ est le taux de cisaillement, η_0 est la viscosité du palier newtonien et λ est un temps caractéristique. Le paramètre a permet d'ajuster la transition plus ou moins rapide entre le plateau newtonien et le reste de la courbe d'écoulement ; m est l'indice de pseudoplasticité.

$$a_T(T) = \exp \left[\frac{E}{R} \left(\frac{1}{T} - \frac{1}{T_0} \right) \right] \quad (2)$$

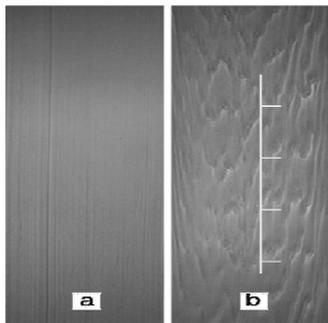


FIG. 1 – interfaces (a) stable, (b) instable

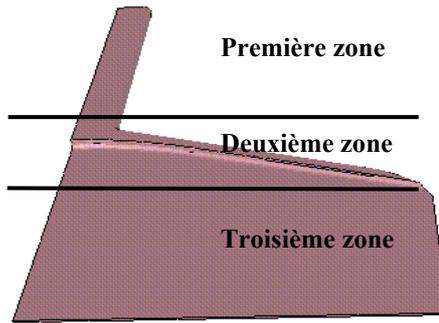


FIG. 2(a) – 1/2 de la géométrie de la filière dite en “porte manteau”

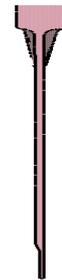
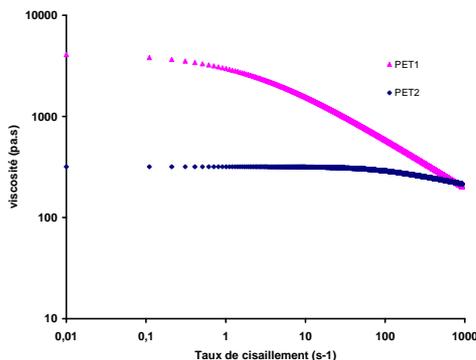
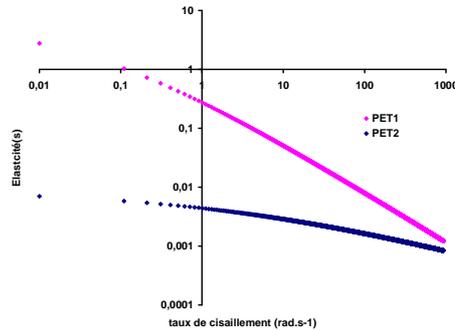


FIG. 2(b) – évolution de l'épaisseur suivant l'axe de symétrie



A



B

FIG. 3 – courbe de viscosité à 260°C en fonction du taux de cisaillement (A); courbe d'élasticité à 260°C en fonction du taux de cisaillement (B).

3 Calcul monocouche 3D non-isotherme

Nous réalisons tout d'abord un calcul 3D sur l'ensemble de la filière (avec une seule couche) sur le logiciel Rem3D®. C'est un logiciel éléments finis développé au Cemef. Il est dédié à la mise en forme des matériaux à l'état fluide. Nous utilisons un maillage anisotrope avec 55739 nœuds et 315314 éléments (FIG. 4) : le maillage est raffiné suivant l'épaisseur et grossier suivant les deux autres directions. Le débit imposé en entrée est de 46kg/h. La température d'entrée du polymère de 281°C avec une régulation thermique de la filière de 260°C.

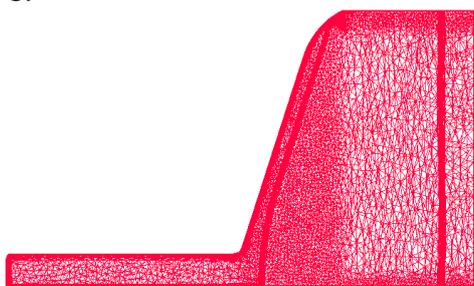


FIG. 4 – maillage

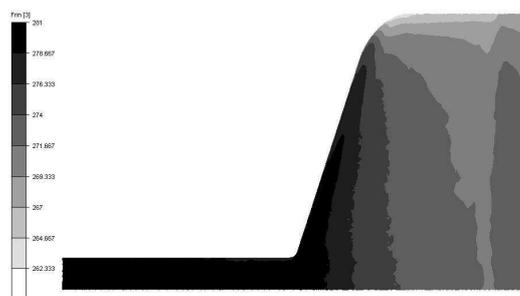


FIG. 5 – carte de température

La figure. 5 présente la carte des températures. Nous constatons qu'elle diminue progressivement suivant la direction de l'écoulement, principalement après la zone d'alimentation. En sortie de filière, la température sur la largeur est homogène et égal à 270°C.

La figure 6 présente la distribution des vitesses suivant la direction de l'écoulement. Les plus grandes vitesses sont localisées dans les zones d'entrée et de sortie. La figure 7 présente la composante de la vitesse dans le sens transverse dont la valeur est négligeable sauf dans la zone porte manteau ce qui montre clairement l'efficacité du porte manteau pour assurer une répartition homogène du polymère sur toute la largeur de la filière.

Ces calculs montrent que l'écoulement est monodimensionnel dans la zone d'alimentation et dans la zone située après le porte manteau. C'est pour cette raison que nous allons réaliser des analyses 2D en stabilité dynamique dans la première zone (A) et dans la zone finale de la filière (B).

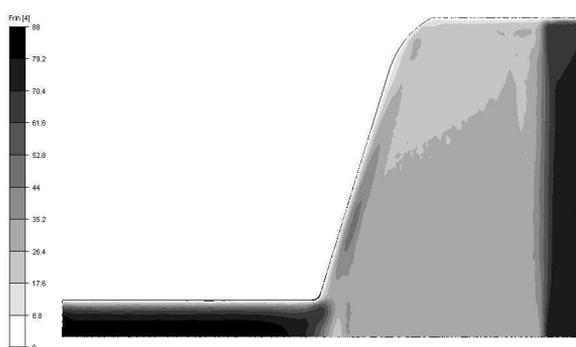


FIG. 6 – vitesse dans le sens de l'écoulement

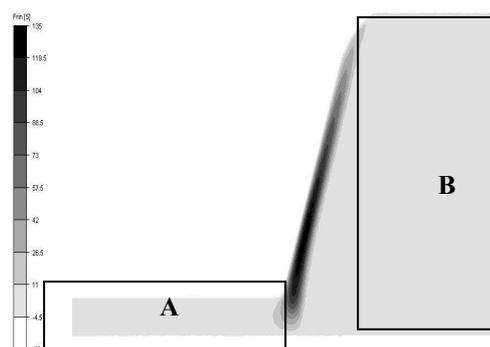


FIG. 7 – vitesse dans le sens transverse de l'écoulement

4. Analyse isotherme de stabilité dynamique en 2D

Dans un premier temps, nous analyserons successivement les zones A et B dans le cas isotherme avec des calculs purement visqueux. Dans ce cas de figure le moteur des instabilités est le nombre de Reynolds, mais sa valeur reste faible (environ 10^{-5}). Ce choix est discuté par la suite. Il s'écrit :

$$\text{Re} = \frac{\rho Q_i}{\eta_i W} \quad (3)$$

Où ρ est la densité du fluide (on suppose qu'elle est identique pour les deux fluides), Q_i est le débit imposé pour chaque fluide, η_i leur viscosité, W la largeur de la filière

Nous commençons pas déterminer la solution stationnaire (FIG. 8 pour la première zone et FIG. 9 pour deuxième la zone). Nous introduisons une perturbation périodique dans la première couche de la forme :

$$Q = Q_0 \left(1 + A \sin\left(\frac{2\pi}{T} t\right) \right) \quad (4)$$

On prend $A=0.1$ et T est la période de forçage. Nous observons l'évolution de l'interface en fonction du temps.



FIG. 8 – solution stationnaire dans la zone d'alimentation (Q PET1= 32 kg/h; Q PET 2= 80 kg/h)



FIG. 9 – solution stationnaire dans la zone finale de la filière (avec les mêmes débits).

Pour une meilleure analyse de l'interface en fonction du temps, un module a été implémenté dans Rem3D® afin de déterminer la position d'interface à partir d'une solution éléments finis. Par la suite, nous pouvons réaliser des analyses spatio-temporelles du déplacement de cette interface.

L'analyse spatiale dans la zone A (FIG. 10) avec un forçage de 3.6 Hz montre que la perturbation engendre un défaut sous forme d'onde progressive dont l'amplitude s'atténue le long de l'écoulement.

L'analyse spatiale dans la zone B est plus complexe car il y a la présence d'un convergent près de la sortie. La perturbation initiale engendre encore une onde progressive. Elle s'atténue le long de la partie finale de la filière et son amplitude est moins importante que dans la zone d'alimentation. Le convergent a tendance à amortir les instabilités.

D'autres travaux ont été réalisés en faisant varier les conditions d'entrée. Les résultats montrent que la perturbation initiale s'atténue toujours le long de la filière (aussi bien dans la zone A que dans la zone B), mais plus au moins rapidement en fonction des débits de chaque fluide et du rapport des débits.

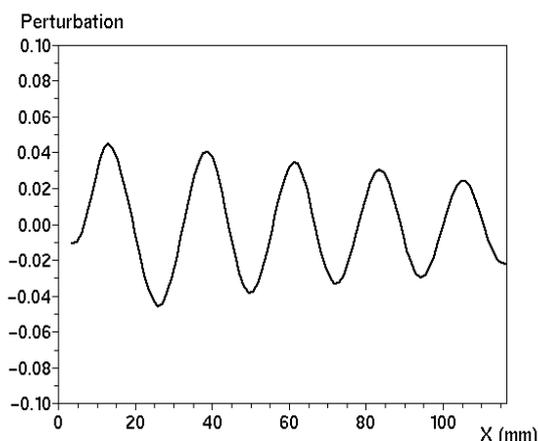


FIG. 10 – Zone A; Variation relative de la perturbation le long de la filière, fréquence de forçage : 3.6Hz

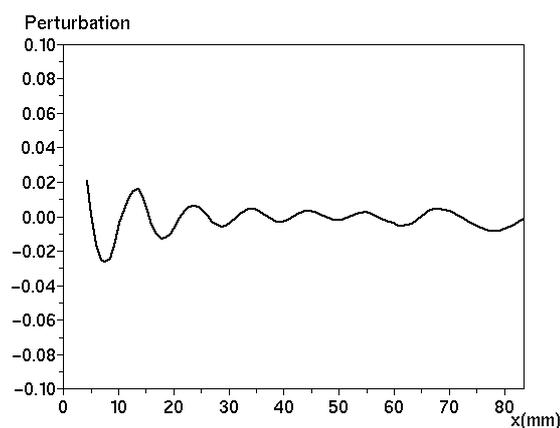


FIG. 11 – Zone B; Variation relative de la perturbation le long de la filière, fréquence de forçage : 3.6Hz

5 Analyse non isotherme de stabilité dynamique en 2D

La pratique industrielle consiste généralement à ajuster les débits mais aussi les températures des polymères et de la filière afin d'obtenir un écoulement stable en sortie de filière. Ceci peut être lié à la thermo dépendance de la rhéologie qui est différente pour les deux PET mais également à la variation de la température de l'écoulement qui changera en fonction des débits (voir FIG.5). La figure 12 compare un calcul isotherme et non isotherme. Dans ce cas, l'atténuation de la perturbation est beaucoup plus importante dans le cas non isotherme que dans le cas isotherme mais il serait difficile de tirer une conclusion générale.

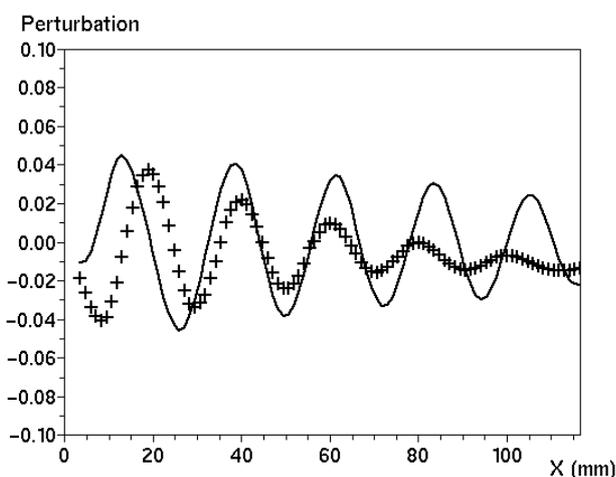


FIG. 12 – Zone A; Variation relative de la perturbation le long de la filière ; comparaison entre un calcul dynamique isotherme (+) et non isotherme (+). Débits; 32kg/h (PET1) et 80kg/h (PET2). Températures; 281°C (PET1), 255°C (PET2) et 260°C pour la filière

Actuellement, nous réalisons des calculs dynamiques isothermes et non isothermes avec une loi de comportement viscoélastique. Le moteur de l'instabilité est le nombre Weissenberg dont la valeur est plus importante que celle du nombre de Reynolds. Les premiers résultats montrent

que l'amplitude de la perturbation peut augmenter le long de la filière ce qui n'a jamais été observé dans le cas des calculs purement visqueux.

6 Conclusion

Nous avons effectué l'analyse de stabilité dynamique en 2D de l'interface entre les deux couches dans le procédé de coextrusion des polymères thermoplastiques. Ces études montrent que la perturbation engendre une onde progressive le long de la filière quelque soit la zone d'étude. Dans les calculs purement visqueux le moteur de l'instabilité est le nombre de Reynolds dont la valeur est faible ce qui explique que l'amplitude de la perturbation a tendance à être atténuée quelque soient les débits des polymères. Dans le cas viscoélastique, le moteur de l'instabilité est le nombre de Weissenberg, dont la valeur est plus grande que celle du nombre de Reynolds. Les premiers résultats montrent que l'amplitude de la perturbation peut augmenter en s'approchant de la sortie de filière. Les calculs non isothermes montrent l'influence des températures des polymères et de la filière sur les instabilités interfaciales.

Références

- Valette, V., Laure, P., Demay, Y., & Agassant, J-F. 2004 ,Experimental Investigation of the Developpement of Interfacial Instabilities in Two Layer Coextrusion Dies.Intern. *Polymer Processing*, XIX-2, 118-128.
- Han, C.D., Kim, Y.J., & Chin, H.B. 1984, Rheological investigation of interfacial instability in two-layer flat-film coextrusion. *Polym. Eng. Rev.*, 4(3).
- Schrenk, W.J., Bradley, Nl., Alfrey, T., & Maack, H. 1978, Interfacial Flow Instability in Multilayer Coextrusion. *Polym. Eng. Sci.*, **18**:620.
- Valette, V., Laure, P., Demay, Y., & Fortin, A. 2001, Convective Instabilities in coextrusion process. *Intern. Polymer Processing*, XVI-2, 192-197.
- Ganpule, H.K., & Khomami, B. 1999, The effect of viscoelastic properties on interfacial instabilities in superposed pressure driven channel flow. *J. Non-Newtonian Fluid Mech*, **80**:217-249.
- Yamaguchi, H., Mishima, A. & Yasumoto, T. 1999. An arbitrary Lagrangian-Eulerian approach for simulating viscoelastic fluids. *J. Non-Newtonian Fluid Mech*, 251-272.
- Zatloukal, M., Tzoganakis, C., Vlcek, J. & Saha, P. 2001 ,Numerical Similuation of Polymer Coextrusion Flows. Intern.*Polym er Processing* XVI, 198-207.