

# Etude numérique d'un canal instrumenté permettant l'analyse thermique et cinétique d'un écoulement d'élastomère

J. LAUNAY, N. ALLANIC, P. MOUSSEAU, R. DETERRE

OPERP ERT 1086 GEPEA, Université de Nantes - IUT de Nantes, BP 539, 44475 Carquefou Cedex

## Résumé :

*Lors du processus de mise en forme des élastomères, la maîtrise de l'écoulement dans les canaux d'alimentation est essentielle pour garantir et homogénéiser la vulcanisation lors de la cuisson. Nous présentons ici l'analyse du comportement thermique, rhéologique et cinétique d'un écoulement d'élastomère, dans une filière d'extrusion. Un modèle prenant en compte les équations de l'énergie et de Navier-Stokes est exploité. Pour déterminer l'avancement réactionnel lors de l'écoulement, une technique de suivi de particules, basée sur la connaissance de l'historique thermique de l'élastomère est utilisée. Différentes simulations sont menées afin de mettre en évidence l'influence des conditions de mise en œuvre sur l'apparition du grillage.*

## Abstract :

*During elastomer forming processes, it is essential to control the matter flow through the runners in order to guarantee and homogenize curing of rubber. In this work, the analysis of the thermal and kinetic behaviour of elastomer flow in an extrusion die is presented. A model, based on energy balance and Navier-Stokes equation, is investigated. The reaction progress through the runner was modeled by using a particle tracking technique. Several simulations were performed to highlight the influence of process parameters and geometry modifications on the rubber compound thermal and cure homogeneity.*

**Mots clefs : procédés de mise en œuvre, élastomères, dissipation visqueuse, grillage**

## 1 Introduction

Lors du processus de mise en forme des élastomères, la dissipation visqueuse au sein de l'écoulement de polymère fondu est à l'origine d'échauffements [1, 2], susceptibles de provoquer des risques de vulcanisation précoce, couramment nommée « grillage ». Ces variations de température locale sont accentuées par le comportement rhéologique fortement pseudoplastique des caoutchoucs qui concentre le cisaillement aux parois de l'outillage [3]. De ce fait, la maîtrise des conditions thermiques et cinétiques lors de l'écoulement dans les canaux d'alimentation est essentielle pour garantir et homogénéiser la vulcanisation lors de la cuisson.

L'objectif de ce travail est d'appréhender le comportement thermique, rhéologique et réactionnel d'un écoulement d'élastomère dans une filière d'extrusion. La modélisation des phénomènes physiques mis en jeu est exploitée pour analyser l'écoulement dans un canal droit et dans une géométrie plus complexe permettant une séparation du flux de matière. Pour déterminer l'avancement réactionnel lors de l'écoulement, une technique de suivi de particules, basée sur la connaissance de l'historique thermique de l'élastomère est utilisée. Après avoir présenté la méthodologie retenue pour caractériser les propriétés thermo-rhéologiques de deux élastomères, un EPDM (Ethylène-Propylène-Diène-Monomère) et un caoutchouc naturel, différentes simulations sont menées afin de mettre en évidence l'influence des propriétés du mélange et des conditions de mise en œuvre sur l'apparition du grillage. A terme, les travaux réalisés doivent permettre de concevoir un dispositif de caractérisation en ligne, de l'état d'avancement réactionnel du matériau et de mener à bien l'optimisation du procédé.

## 2 Modélisation

L'extrusion est un procédé stationnaire, dans lequel l'écoulement peut être considéré comme laminaire et dans une première approche, incompressible [4, 5]. Les conditions aux limites imposées en paroi ont une importance significative sur le champ de vitesses [6]. Dans ce travail, une condition de non-glissement est imposée [7] et un seul domaine d'étude, correspondant à l'écoulement de matière, est retenu pour la modélisation. Les deux géométries étudiées, un canal droit et un séparateur de flux sont schématisées sur la figure 1.

Le comportement thermique et rhéologique de l'élastomère est décrit par les équations de Navier-Stokes et de la chaleur [8] :

$$\rho(\vec{V} \cdot \vec{\nabla}) \cdot \vec{V} = -\vec{\nabla} p + \rho \vec{g} + \nabla \cdot \left[ \eta \cdot \left( \overline{\nabla \vec{V}} + {}^t \overline{\nabla \vec{V}} \right) \right] \quad (1)$$

$$\rho C_p (\vec{V} \cdot \vec{\nabla}) \cdot T = \nabla \cdot (\lambda \overline{\Delta T}) + \eta \dot{\gamma}^2 \quad (2)$$

où  $\vec{V}$  est la vitesse,  $p$  la pression,  $\rho$  la masse volumique,  $C_p$  la chaleur spécifique,  $\eta$  la viscosité,  $\lambda$  la conductivité thermique et  $\vec{g}$  la constante de gravité.

Les conditions aux limites sont décrites par le jeu d'équations ci-dessous :

$$\Gamma_e : p = p_e; \quad T(r, z=0) = T_e \quad (3)$$

$$\Gamma_s : p = 0; \quad \frac{\partial \vec{V}}{\partial \vec{n}} = \vec{0}; \quad \frac{\partial T}{\partial \vec{n}} = \vec{0} \quad (4)$$

$$\Gamma_l : \vec{V} = \vec{0}; \quad T(r=R, z) = T_l \quad (5)$$

$\Gamma_e$  correspond à la section en entrée,  $\Gamma_s$  à la section en sortie et  $\Gamma_l$  à la surface latérale en contact avec le fourreau, comme représentées sur la Figure 1.

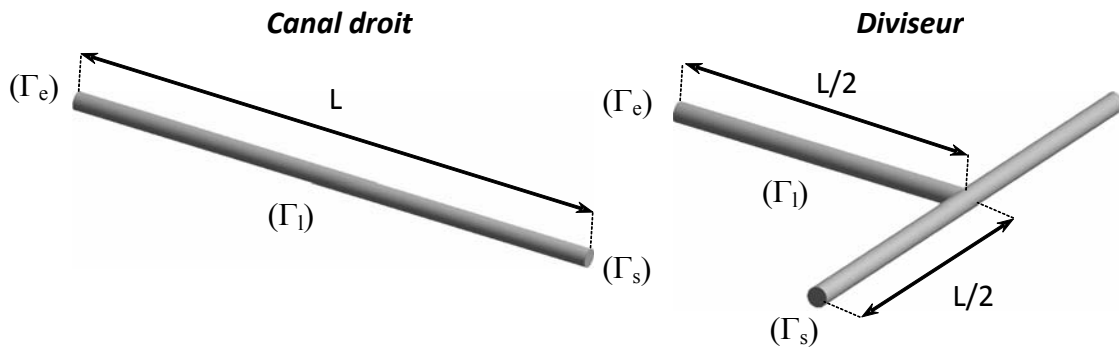


FIG. 1 – Ecoulement d'élastomères à travers les deux géométries étudiées

La phase d'induction, préliminaire à la réaction de vulcanisation [9], est décrite à travers l'introduction d'un temps d'induction ( $\beta$ ) défini par l'équation (6).

$$\beta = \int_0^t \frac{1}{t_i(T)} dt \quad (6)$$

L'apparition du grillage correspond à la consommation de la phase d'induction pendant un temps  $t_i$  (eq 7) et donc au début de la vulcanisation ( $\beta = 1$ ). Pour un processus non isotherme, il s'exprime par [10, 11]:

$$t_i = t_0 \exp\left(\frac{E_{ai}}{RT}\right) \quad (7)$$

avec  $t_0$  le temps d'induction à une température de référence,  $R$  la constante des gaz parfaits et  $E_{ai}$  l'énergie d'activation de l'induction.

Le modèle, est programmé à l'aide du logiciel d'éléments finis Ansys Polyflow [12]. Le maillage est constitué d'éléments hexagonaux, non uniformes, de 0,5 mm d'arête maximum. Le problème est résolu en coordonnées axisymétriques dans le cas du canal droit et en trois dimensions pour le diviseur. La résolution des équations (1) à (5) est réalisée par une méthode de Gauss [12]. Une technique de suivi de particules est mise en place pour calculer l'avancement de l'induction [13], connaissant le comportement thermique de l'élastomère. Pour cela, trois mille particules sont introduites dans la matière initialement, réparties de manière aléatoire sur la section d'entrée. La trajectoire de chaque particule est déterminée à partir du champ de vitesse. L'avancement lors de la phase d'induction le long des lignes de champ est donné par les équations (6) et (7).

### 3 Résultats et discussion

L'étude numérique est menée sur un écoulement d'EPDM et un écoulement de caoutchouc naturel (NR). Les géométries étudiées (figure 1) sont comparées à longueur de fibre neutre égale ( $L = 300$  mm) et pour un diamètre nominal de 10 mm. Les simulations sont réalisées avec une température d'entrée et de parois de  $150^\circ\text{C}$  ( $T_e = T_1 = 150^\circ\text{C}$ ).

#### 3.1 Caractérisation des matériaux

La rhéologie des deux mélanges (EPDM et NR) a été caractérisée sur une large gamme de vitesses de cisaillement ( $0,01 \text{ s}^{-1}$  à  $10^4 \text{ s}^{-1}$ ) et de températures ( $100$  à  $160^\circ\text{C}$ ). Pour les faibles vitesses de cisaillement, de  $0,01 \text{ s}^{-1}$  à  $85 \text{ s}^{-1}$ , la viscosité complexe a été déterminée par rhéométrie dynamique [2], à l'aide d'un rhéomètre rotationnel plan-plan (Thermofisher, MARS III) et de plateaux de 25 mm de diamètre. Les mesures ont été effectuées pour des vitesses de rotation comprises entre 0,1 et 630 rad/s, et une déformation de 2% a été imposée sur des échantillons de 1,2 mm d'épaisseur. Pour les vitesses de cisaillement plus importantes, à partir de  $100 \text{ s}^{-1}$ , la viscosité a été caractérisée à l'aide d'un rhéomètre capillaire (Göttfert). Trois filières d'1 mm de diamètre et de longueur 20, 30 et 40 mm ont été utilisées, permettant ainsi d'effectuer la correction de Bagley [2, 14]. La température du mélange est contrôlée par un thermocouple placé dans la filière au plus près de l'écoulement. Lors de la mesure, la température du mélange est supposée uniforme et constante. La figure 2 présente les résultats de la caractérisation rhéométrique du mélange EPDM.

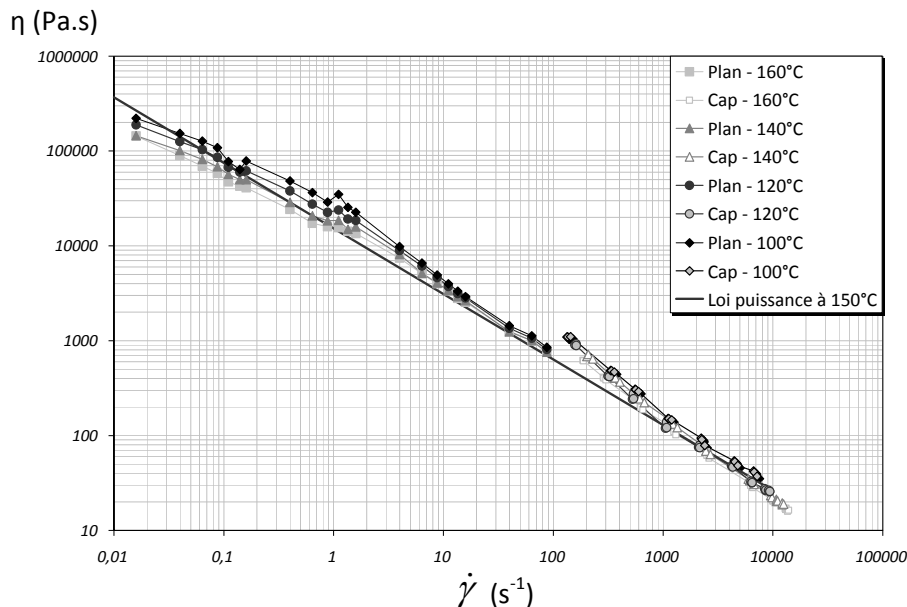


FIG. 2 – Rhéologie de l'EPDM

La thermodépendance de la viscosité est marquée pour les faibles vitesses de cisaillement. Au-delà de  $10 \text{ s}^{-1}$ , on observe une concentration des points de mesure et donc une thermodépendance moindre. Des résultats similaires sont obtenus pour le caoutchouc naturel.

La viscosité est modélisée numériquement par une loi rhéologique de type loi puissance [2, 5] :

$$\eta = K_0 \cdot \exp\left(\frac{E_{ac}}{RT}\right) \cdot \dot{\gamma}^{n+1} \quad (8)$$

avec  $K_0$  la consistance,  $E_{ac}$  l'énergie d'activation qui correspond à la relaxation du matériau,  $\dot{\gamma}$  la vitesse de cisaillement et  $n$  l'indice de pseudoplasticité.

Dans le modèle, une température de référence de 150°C est considérée pour la loi rhéologique. La viscosité obtenue est représentée sur la figure 2 pour l'EPDM.

Le tableau 1 regroupe l'ensemble des propriétés rhéologiques, thermiques et cinétiques relatives aux deux mélanges. La capacité thermique des mélanges a été déterminée par analyse calorimétrique et la conductivité thermique à partir d'un conductivimètre (Thermoconcept, HOTDISK TPS 2500) [15]. Afin d'étudier uniquement l'influence des propriétés thermiques et rhéologiques sur l'apparition du grillage, les paramètres cinétiques intervenant dans l'équation (7) sont volontairement choisis identiques pour les deux mélanges [11].

Propriétés thermiques	Unités	Valeurs	
		EPDM	NR
$\rho$ (20°C)	kg.m <sup>-3</sup>	1086	1042
$\lambda$ (20°C)	W.m <sup>-1</sup> .K <sup>-1</sup>	0,33	0,194
$C_p$ (150°C)	J.kg <sup>-1</sup> .K <sup>-1</sup>	1912	1996
Paramètres rhéologiques			
$K_0$	Pa.s <sup>n</sup>	1255	859
$n$		0,31	0,248
$E_{ac}$	J.mol <sup>-1</sup>	8783	10204
Paramètres cinétiques			
$t_0$	s	12,6 10 <sup>-10</sup>	
$E_{ai}$	J.mol <sup>-1</sup>	92540	

TAB. 1 – Propriétés des mélanges

### 3.2 Analyse thermorhéologique de l'écoulement

Plusieurs simulations ont été menées en faisant varier la nature du mélange, la géométrie et le débit d'extrusion. La figure 3 permet de comparer les résultats numériques obtenus pour les deux mélanges dans un écoulement cylindrique pour un débit  $Q$  allant de 10<sup>-6</sup> à 5.10<sup>-5</sup> m<sup>3</sup>.s<sup>-1</sup>.  $\Phi$  est la puissance de la dissipation visqueuse conservée dans l'écoulement. L'échauffement maximal ( $\Delta T_{max}$ ) représente l'écart entre la température maximale atteinte dans l'écoulement et la température d'entrée.

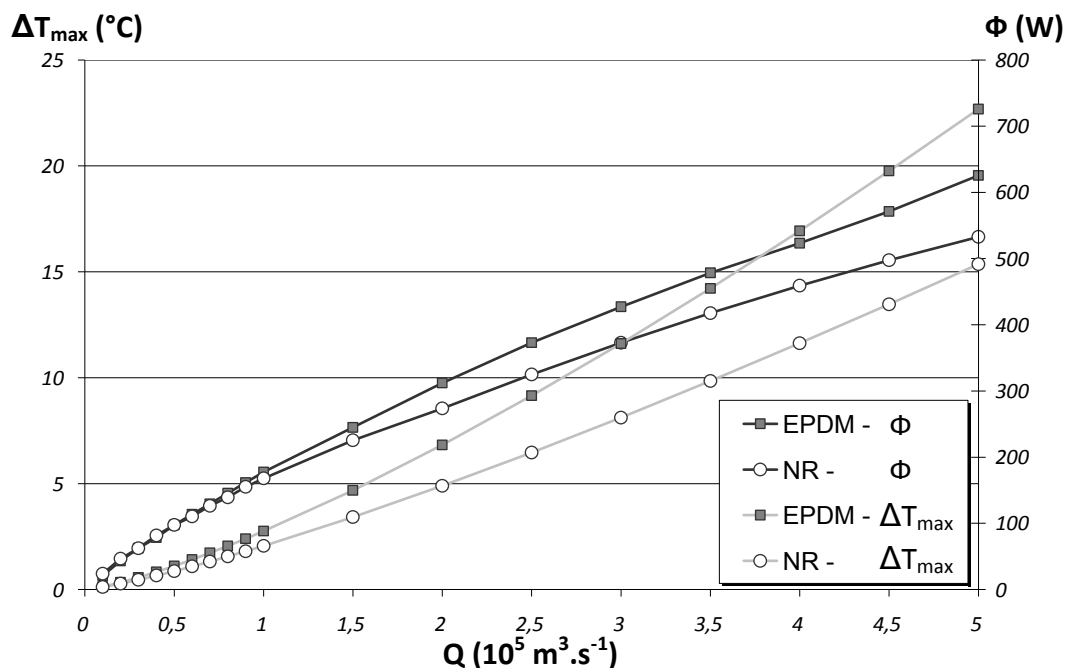


FIG. 3 – Influence du débit matière sur les conditions d'écoulement pour les deux mélanges : EPDM et NR

Pour les très faibles débits, le comportement des mélanges est similaire. L'énergie, générée et conservée dans la matière, est encore faible et ne suffit pas pour créer un échauffement conséquent. Pour des débits plus importants, au-delà de  $10^{-5} \text{ m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$ , la viscosité du caoutchouc naturel diminue de manière significative sous l'effet de l'augmentation de la vitesse de cisaillement et de l'élévation de température.

La figure 4 présente les champs de vitesses de la géométrie diviseur à proximité de la séparation de flux, pour le caoutchouc naturel. On remarque la présence d'une zone face au canal d'entrée où la vitesse d'écoulement est très faible. Le temps de séjour de la matière y devient très élevé, et donc le risque de grillage important.

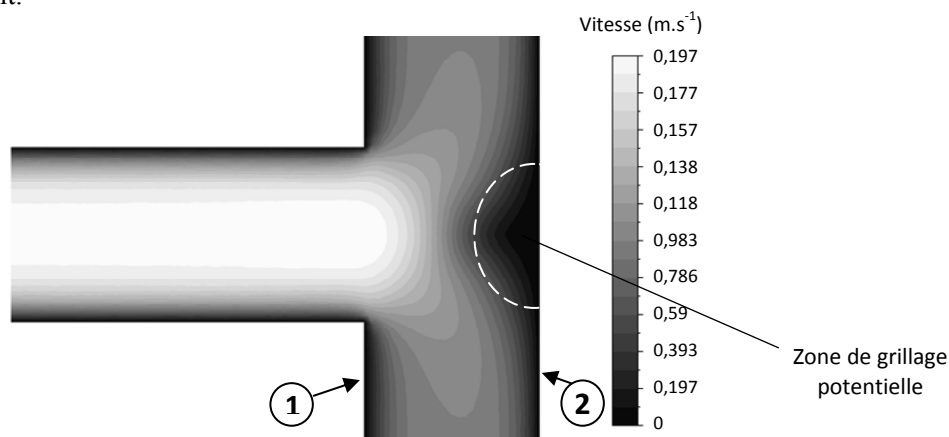


FIG. 4 – Champ de vitesses dans la géométrie diviseur à proximité de la séparation de flux ( $Q = 10^{-5} \text{ m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$  et  $T_e = T_1 = 150^\circ\text{C}$ )

### 3.3 Analyse thermocinétique de l'écoulement

Le tableau 2 présente les résultats obtenus pour un écoulement d'EPDM dans les deux géométries (canal droit et diviseur) avec  $Q = 10^{-5} \text{ m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$ .

Géométrie	$\Delta P$ (Mpa)	$\Phi$ (W)	$\Phi_L$ (W)	$T_s$ ( $^\circ\text{C}$ )	$T_{max}$ ( $^\circ\text{C}$ )
Canal droit	8.81	88.15	29.59	151.8	155.6
Séparateur	7.93	79.36	26.996	152	154.6

TAB. 2 – Résultats numériques obtenus pour un écoulement d'EPDM ( $Q = 10^{-5} \text{ m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$  et  $T_e = T_1 = 150^\circ\text{C}$ )

La différence de pression entre l'entrée et la sortie ( $\Delta P$ ) est donnée et varie entre les deux géométries du fait de l'augmentation de la section globale dans le diviseur. L'énergie dissipée et maintenue à l'intérieur du fluide ( $\Phi$ ) représente 75% de l'énergie totale, les 25% restants étant diffusés à travers la paroi de la géométrie ( $\Phi_L$ ). La température maximale ( $T_{max}$ ) atteinte est plus faible dans le diviseur, en raison de la réduction de débit et donc de la diminution des contraintes de cisaillement dans l'écoulement. Les températures moyennes en sortie ( $T_s$ ) restent similaires.

Les profils de température en sortie des deux géométries et pour les deux mélanges sont présentés sur la figure 5. Dans le cas du canal droit, l'échauffement est concentré près de la paroi, là où les vitesses de cisaillement sont les plus élevées. Dans le cas du diviseur, la matière située au centre de l'écoulement avant la séparation du flux est redistribuée à proximité de la face extérieure (2) de la géométrie (figure 4). De ce fait, l'échauffement, qui dépend notamment de l'historique thermique, est concentré principalement sur la face intérieure (1).

L'avancement lors de la phase d'induction ( $\beta$ ), calculé en sortie à partir de l'historique thermique, est respectivement de 10,4 % et de 10,1 % pour l'EPDM et le NR, pour le canal droit, et de 21,7 % et 21,5 % pour le diviseur. Entre les géométries, on note un écart significatif. En effet, suite à la division, le débit est diminué de moitié et le temps de séjour est ainsi doublé. En raison du faible débit considéré, l'avancement réactionnel est similaire pour les deux mélanges. L'influence de la rhéologie sur l'avancement lors de la phase d'induction sera plus sensible pour des débits plus élevés.

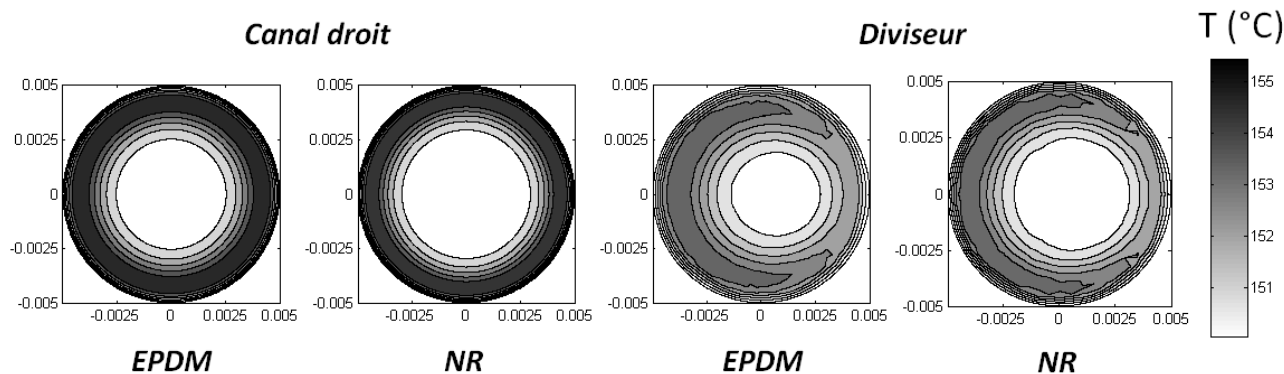


FIG. 5 – Profils de température en sortie du dispositif ( $Q = 10^{-5} \text{ m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$  et  $T_e = T_1 = 150^\circ\text{C}$ )

## 4 Conclusion

Le modèle développé permet de prédire l'influence de géométries et des paramètres de mise en œuvre sur la dissipation visqueuse et le comportement thermocinétique d'élastomères. L'étude menée montre la nécessité de bien contrôler le comportement thermique et cinétique de l'écoulement pour favoriser les redistributions de matière à travers des géométries complexes. L'utilisation de l'énergie de dissipation visqueuse pourrait ainsi permettre la réduction des temps de cuisson dans les moules d'injection et autres procédés de mise en forme.

## References

- [1] Zhang P., and Ouyang J., Meshless analysis of heat transfer due to viscous dissipation in polymer flow, *J. Eng. Anal. Bound. Elem*, 32, 41-51, 2008.
- [2] Dimier F., Injection de systèmes réactifs : Détermination de lois cinétiques et rhéologiques et modélisation, Thèse de l'Ecole nationale supérieure des mines de Paris, 2003.
- [3] Ha Y.S., Cho J.R., Kim T.H. and Kim J.H., Finite elements analysis of rubber extrusion forming process for automobile weather strip, *J Mater. Process. Techn.*, 201, 168-173, 2008.
- [4] Müllner H.W., Wieczorek A., Eberhardsteiner J., Experimental determination of shear-thinning behaviour during extrusion of rubber blends, *Strain*, 2008.
- [5] Koscher M., Etude de l'extrusion monovis de mélanges d'élastomères : Approche expérimentale et simulation numérique, Thèse de l'Ecole nationale supérieure des mines de Paris, 2003.
- [6] Awati K.M., Park Y., Weisser E., Mackay M.E., Wall slip and shear stresses of polymer melts at high shear rates without pressure and viscous heating effects, *J. Non-Newton. Fluid.*, 89, 117-131, 2000.
- [7] Alok G.O., Yuan X-F., Numerical simulation of polymer foaming process in extrusion flow, *Chem. Eng. Sci.*, 65, 3749-3761, 2010.
- [8] Bird R.B., Stewart W.E., Lightfoot E.N, *Transport phenomena*, 2<sup>nd</sup> edition, J. Wiley & Sons, Inc, 2002.
- [9] Rafei M., Ghoreishy M.H.R., Naderi G., Development of an advanced computer simulation technique for the modelling of rubber curing process, *Comp. Mat. Sci.* 47, 539-547 2009.
- [10] Ding R., Leonov I., A kinetic model for sulfur accelerated vulcanization of a natural rubber compound, *J. Appl. Polym. Sci.*, 61, 455-463, 1996.
- [11] El Labban A., Mousseau P., Deterre R., Bailleul J.L., Sarda A., Temperature measurement and control within moulded rubber during vulcanization process, *Measurement* 42, 916-926, 2009.
- [12] Ansys Polyflow 12.1, user's guide, 2009.
- [13] Connelly R.K., Kokini J.L., Examination of the mixing ability of single and twin screw mixers using 2D finite element method simulation, *J. Food Eng.*, 79, 956-969, 2007.
- [14] Karam S., Modélisation de l'injection des élastomères chargés : approche expérimentale, Thèse de l'Ecole nationale supérieure des mines de Paris, 1995.
- [15] Rides M., Intercomparison of thermal conductivity and thermal diffusivity methods for plastics, *Polymer Testing*, 28, 480-489, 2009.