

Etude multi-échelle du mélange dans une géométrie originale

Cyril Loux^a, Gilles Bouchet^b, René Muller^a

a. Laboratoire d'Ingénierie des Polymères pour les Hautes Technologies (LiPhT), 25 rue Becquerel, 67087 STRASBOURG Cedex 2

b. Laboratoire IUSTI, 5 Rue Enrico Fermi, 13453 MARSEILLE Cedex 13

Résumé :

Dans l'industrie, les matériaux sont généralement obtenus par des mélanges liquides-liquides et les propriétés induites macrostructurellement sont directement dépendantes de la microstructure et de l'homogénéité atteinte lors du processus de mélange. Dans ce contexte, de nouveaux outils expérimentaux ont été développés afin d'améliorer les mécanismes de mélange et de nouveaux outils numériques ont été mis en place pour modéliser et prédire l'orientation et la forme de la microstructure. On se propose de les utiliser afin de déterminer les sources d'irréversibilité dans une géométrie originale.

Abstract :

In industry, materials are generally obtained by liquid-liquid mixing and induced macrostructural properties are directly dependent on the microstructure and homogeneity achieved in the mixing process. In this context, new experimental tools are developed to improve mixing mechanisms and new numerical tools are established to simulate and predict direction and shape of the microstructure. Some of them will be used to determine sources of irreversibilities in an original geometry.

Mots clefs : Mélange ; Simulation numérique ; Approche microstructurale

1 Introduction

Dans le contexte actuel, l'opération de mélange constitue une étape clé pour de nombreux procédés de mise en oeuvre dans différents secteurs industriels. L'élaboration de matériaux avancés se heurte souvent à la difficulté de disperser de manière efficace les différents constituants d'un système multiphasique. La qualité des résultats à obtenir est directement dépendante des étapes liées au mélange à l'état fondu (liquide) des produits utilisés. La plupart des outils développés pour créer du mélange sont basés sur des écoulements de cisaillement qui limitent fortement la dispersion des produits [1]. Dans ce cadre, de nouvelles machines, plus efficaces au niveau de la dispersion ont vu le jour. Elles permettent notamment la création - par l'utilisation de géométries en contraction/expansion - d'écoulements élongationnels importants qui vont être étudiés ici expérimentalement et numériquement à l'aide de procédés originaux [2]. Les propriétés induites par ces mélanges liquides-liquides étant directement dépendantes de la microstructure dont l'échelle de longueur est plus petite que celle associée à l'écoulement macroscopique, une méthode numérique de quantification du taux de mélange et du temps requis pour atteindre un certain degré d'homogénéité mérite d'être développée.

2 Mise en place expérimentale

Afin d'étudier les écoulements dans une géométrie convergente/divergente, nous avons mis en place le dispositif expérimental original représenté schématiquement figure 1(a). Il est constitué de deux pistons actionnés individuellement de façon pneumatique, à pression constante et d'un élément de mélange statique séparant les deux chambres de mélange. Le produit est introduit par l'élément mélangeur

constitué d'un canal principal (ou canal de mélange) connectant les chambres de mélange. Chaque chambre est quant à elle connectée à un canal de remplissage et à un canal de purge. Un dernier canal permet une purge de l'air présent dans le canal de mélange. Dans toutes nos expériences, nous avons introduit le même fluide dans les deux chambres ne réalisant ainsi que des mélanges passifs car iso-visqueux. La condition initiale d'un processus de mélange est présentée figure 2. Une partie du fluide est rendue fluorescente (et apparaît blanche) à l'aide de fluorescéine et l'autre partie est transparente et apparaît noire. Le produit contenu dans le dispositif est alternativement poussé d'une chambre à l'autre à travers le canal de mélange. Afin de pouvoir visualiser dynamiquement l'écoulement au cours

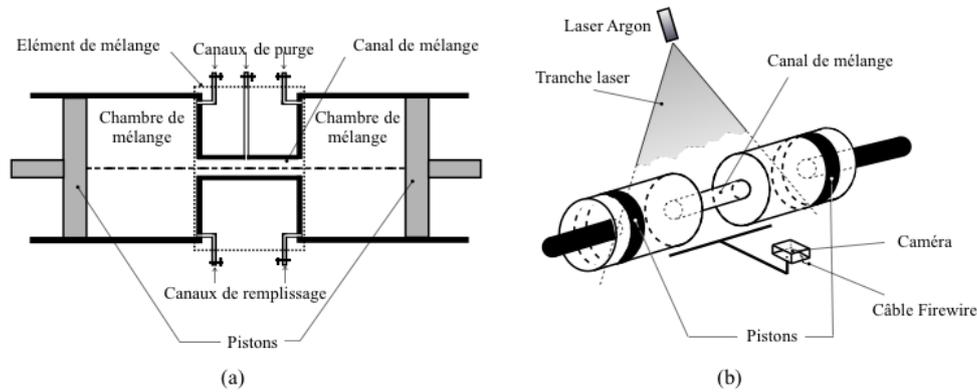


FIGURE 1 – (a) Schéma du dispositif expérimental constitué d'une géométrie axisymétrique et présentant un plan de symétrie ; (b) Dispositif optique pour la visualisation des écoulements.

du mélange, le dispositif expérimental a été réalisé en PMMA. L'écoulement étant tridimensionnel, la visualisation est faite dans un plan par tomographie Laser à l'aide de la méthode LIF (Laser Induced Fluorescence). Le dispositif optique (représenté sur la figure 1.b) est composé d'une source de lumière monochromatique (Laser argon de longueur d'onde filtrée à 514,5nm) acheminée par une fibre optique équipée en son extrémité d'une lentille cylindrique permettant d'obtenir une tranche de lumière (plan Laser) de moins d'un millimètre d'épaisseur. Une caméra CCD a été installée perpendiculairement au plan Laser et connectée à une carte d'acquisition. Les premières expériences ont été réalisées avec des fluides Newtoniens très visqueux (21,6Pa.s) afin d'obtenir des écoulements à très bas nombre de Reynolds ($Re < 0,1$, basé sur la vitesse débitante dans le canal de mélange et le diamètre de celui-ci). Nous présenterons ici une synthèse des résultats obtenus lors de la seconde série d'expériences qui a été réalisée avec des fluides viscoélastiques. Nous avons pour cela utilisé une solution de Polyvinylpyrrolidone (PVP) et d'eau fournie par BASF (commercialisée sous le nom LUVITEC K90).

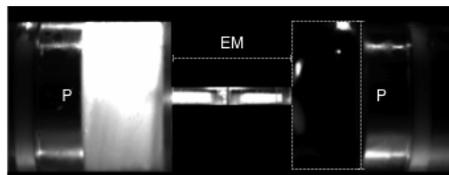


FIGURE 2 – Condition initiale des expériences. P : pistons, EM : élément de mélange

3 Modèles numériques

Outre les expérimentations, des simulations numériques ont été réalisées avec pour objectif de caractériser l'importance des composantes élongationnelles et de cisaillement d'un écoulement sur les mécanismes de distribution et de dispersion. Elles ont permis de quantifier les déformations de la structure - que ce soit au niveau macroscopique ou au niveau microscopique - et de fait, d'évaluer le mélange obtenu selon les types de fluides utilisés. La géométrie étudiée et les conditions aux limites associées sont présentées sur la figure 3(a). L'écoulement est défini axisymétrique. Nous avons utilisé des

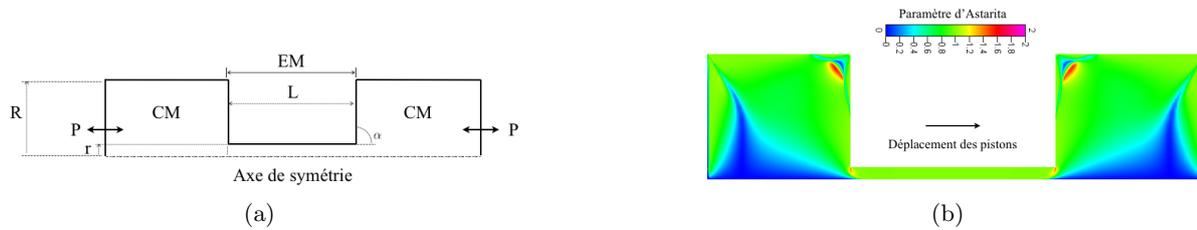


FIGURE 3 – (a) Discretisation de la géométrie; $R = 16mm$; $r = 1,5mm$; $L = 26mm$; $\alpha = 90^\circ$. CM : chambre de mélange, P : pistons, EM : élément de mélange; (b) Types d'écoulements dans la géométrie

conditions de type mur en mouvement imposé à vitesse constante parallèle à l'axe de part et d'autre de la géométrie pour représenter le mouvement des pistons. Le volume total est conservé tout au long du mouvement des pistons et comme la géométrie est en mouvement et se déforme, un remaillage de celle-ci est nécessaire à chaque pas de temps. Ce déplacement des mailles (volumes) est pris en compte dans les équations par l'utilisation de la méthode ALE qui se résume à une simple interpolation en ajoutant une composante de vitesse de grille dans les équations de Navier-Stokes. Si dans un premier temps nous avons considéré des fluides Newtoniens, nous sommes très rapidement passés à des rhéologies un peu plus complexes. Afin de prendre en compte les effets des contraintes élongationnelles, nous avons utilisé le modèle quasi-newtonien [3] (explicité par l'équation (1)) et qui consiste à différencier la viscosité liée aux contraintes dues au cisaillement (μ_s) de la viscosité dépendante des contraintes en élongation (μ_e) et ainsi, de considérer que le cisaillement et l'élongation contribuent de manière complémentaire à la viscosité non-Newtonienne (1). Le solveur compresse les cellules d'une chambre et dilate les cellules de l'autre.

$$\mu_{QNF} = f(\chi)\mu_s + 0.25 * (1 - f(\chi))\mu_e \quad \text{avec} \quad f(\chi) = \frac{3\sin^4(\frac{\pi}{2})\chi}{1 + 2\sin^4(\frac{\pi}{2})\chi} \quad (1)$$

Dans un premier temps, il est nécessaire de caractériser les types de contraintes dans la géométrie. Le paramètre χ (2) [4] de la viscosité décrite dans le cadre du modèle quasi-Newtonien permet de déterminer objectivement une cartographie des écoulements (cisaillement ou élongation) à l'intérieur de la géométrie :

$$\chi = 2 \frac{|\Omega_{rel}|}{|\Omega_{rel}| + |D|} \quad (2)$$

où $|D|$ représente la norme du tenseur des déformations et $|\Omega_{rel}|$ est la norme du tenseur relatif du taux de rotation défini par $|\Omega| - |W|$. $|\Omega|$ représente la vorticité et $|W|$ est le tenseur de rotation des vecteurs propres de $|D|$. Par cette définition, χ est un paramètre objectif dont les valeurs sont comprises entre 0 et 2. $\chi = 0$ correspond à un écoulement d'élongation pure, $\chi = 1$ à un écoulement de cisaillement simple et $\chi = 2$ à un écoulement bloquant (rotationnel pur). Comme on peut le voir figure 3(b), l'écoulement est majoritairement en cisaillement mais la composante élongationnelle est également présente de façon non négligeable sur l'axe à l'entrée et à la sortie du canal de mélange. Une fois les contraintes connues, la viscosité quasi-Newtonienne (1) peut être déterminée. Afin de caractériser les irréversibilités macroscopiques, nous avons mis en place une méthode permettant de détecter et de quantifier l'irréversibilité de l'écoulement, signe avant coureur du mélange. Pour cela, une grille régulière de points (traceurs passifs sans masse) a été superposée au fluide et une équation de transport a été résolue pour suivre la trajectoire de chacun des points au cours du temps. L'irréversibilité de l'écoulement peut alors être quantifiée à l'aide de la longueur d'étirement définie comme étant le rapport de la distance entre la position d'une particule au temps t et la position de cette même particule au temps t_0 . Ainsi, une longueur non nulle après un aller/retour signifie que la matière a été déformée et que l'écoulement n'est pas réversible. Pour avoir une information générale sur toute la géométrie, il suffit de faire la moyenne de cette longueur pour toutes les particules.

4 Description de la morphologie

Dans le but de quantifier la morphologie à chaque point x du domaine de l'écoulement d'étude Ω , on considère un volume représentatif $V(x)$ assez petit en regard de l'échelle macroscopique mais assez grand comparé à la taille caractéristique de la microstructure, centré en ce point. L'interface dans $V(x)$ est $S(x)$ et le tenseur d'aire est défini par :

$$A(x) = \frac{1}{V(x)} \int_{S(x)} \mathbf{n} \otimes \mathbf{n} dS \quad (3)$$

où \mathbf{n} représente le vecteur unitaire défini sur l'interface $S(x)$ et \otimes indique le produit de tenseur. Le tenseur d'aire est symétrique et a différentes propriétés intéressantes. La première concerne la trace du tenseur qui, en prenant en compte la normalité de \mathbf{n} , est défini par :

$$Tr(A(x)) = \frac{1}{V(x)} \int_{S(x)} dS = \frac{S(x)}{V(x)} = S_v(x)$$

où $S_v(x)$ représente la surface spécifique (aire d'interface par unité de volume) au point x et dont la maximisation est généralement recherchée dans les processus de mélange et qui va être calculé pour le cas présenté ici. C'est un tenseur d'ordre zéro contenant seulement les informations de la taille. Dans un second temps, on peut définir la fraction de volume de la phase dispersée \emptyset permettant de définir une longueur caractéristique de la microstructure au point x de la phase discrète $V_d(x) = \emptyset V(x)$ avec $L(x) = \frac{\emptyset}{Tr(A(x))}$. Finalement, la forme de la microstructure et son orientation peut aisément être déduite du tenseur d'aire normalisée $\tilde{A}(x)$:

$$\tilde{A}(x) = \frac{A(x)}{Tr(A(x))} \quad (4)$$

dont les valeurs propres permettent le calcul des longueurs des particules devenues ellipsoïdales et leur orientation par les vecteurs propres associés. Le tenseur d'aire contient des informations au point $x \in \Omega$ et il est utile de les connaître à chaque point et à chaque pas de temps. Il est alors nécessaire d'établir une équation d'évolution. On considère la dérivée temporelle de l'équation (3) prenant en compte le fait que n et dS évoluent dans le temps (pour plus de précisions, voir l'article [5]) :

$$\frac{dA}{dt} = \dot{A} = -(\nabla v)^t A - A \nabla v + \nabla v : {}^4A \quad (5)$$

où " : " désigne le produit tensoriel doublement contracté et 4A représentant le tenseur d'aire du quatrième ordre. Afin d'obtenir un système d'équations fermé, une relation de fermeture exprimant le tenseur d'aire du quatrième ordre à l'aide d'un tenseur d'aire du second ordre est nécessaire. En raison de sa simplicité, la relation de fermeture quadratique [6] est un moyen très pratique pour écrire le tenseur du quatrième ordre :

$${}^4A = \frac{1}{V(x)} \int_{S(x)} n \otimes n \otimes n \otimes n dS = \frac{1}{S_v} A \otimes A \quad (6)$$

L'avantage principal de la méthode du tenseur d'aire est sa formulation et la simplicité d'incorporation d'effets physiques supplémentaires comme la coalescence ou la cassure des particules fluides. Dans le cas étudié ici, ces modèles ont été testés mais donnent des résultats identiques en terme de taille et d'orientation de la microstructure et ne sont donc pas présentés. La figure 7 présentera un exemple de résultat obtenu lors d'un mélange.

5 Etude du mélange dans le cas d'écoulements quasi-Newtoniens

Les expériences ont été effectuées avec des fluides Newtoniens et viscoélastiques. Néanmoins, dans un cas Newtonien le processus est réversible et la condition initiale présentée figure 2 est retrouvée à

chaque fois que les pistons retrouvent leur position initiale. Dans les cas viscoélastiques, les premières observations montrent que, même à un nombre de Reynolds très faible (1.10^{-5}), il y a création de larges recirculations qui se développent dans la contraction (chambre amont de l'écoulement) et qui créent une irréversibilité importante. Cette particularité est présentée expérimentalement figure 4 et numériquement figure 5 au temps t . Sa taille ne diminue que lorsque le piston arrive au contact de celle-ci et la pousse à travers le canal de mélange. Il est connu que quand le taux d'élongation augmente, la viscosité des polymères augmente [7]. A l'entrée du canal, on a vu figure 3(b) que l'élongation était importante sur l'axe ce qui va induire une augmentation de la viscosité qui va agir comme un bouchon de fluide à l'origine de cette recirculation. Le deuxième effet intéressant est la création d'une striation

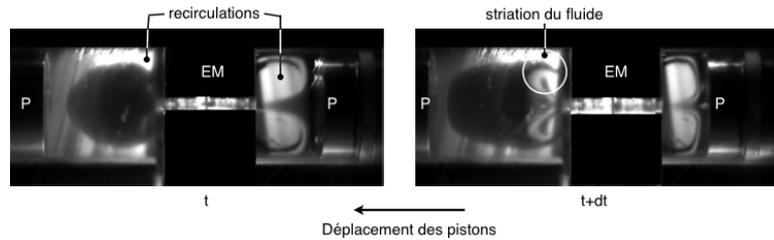


FIGURE 4 – Ecoulement de fluide viscoélastique à un nombre de Reynolds de 1.10^{-5} : visualisation expérimentale

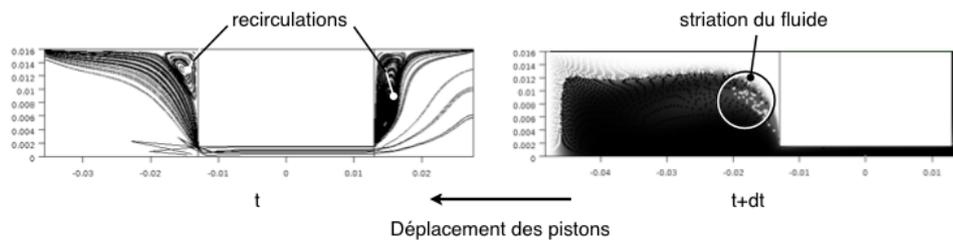


FIGURE 5 – Ecoulement de fluide viscoélastique à un nombre de Reynolds de 1.10^{-5} : visualisation numérique

de fluide dans la chambre aval (zone divergente) de l'écoulement visible dans les cas expérimentaux et numériques - figure 4 et figure 5 au temps $t + dt$ respectivement - à un nombre de Reynolds de 1.10^{-5} . Lorsque l'on augmente la vitesse des pistons afin de passer à un nombre de Reynolds de 1.10^{-4} (l'écoulement restant rampant), nous remarquons figure 6 que la striation du fluide - donc le mélange - est nettement plus importante. A un nombre de Reynolds supérieur, le mélange est tellement efficace que lors de la première poussée des pistons, il est impossible de distinguer clairement les deux phases. Cette striation est directement dépendante des phénomènes physiques ayant lieu dans le convergent où l'élongation crée une rupture des particules de fluide en de plus petites particules. En sortie de canal, l'élongation à nouveau non négligeable va créer un bouchon de fluide qui incite la matière à passer proche de la paroi du canal. Les particules subissent alors l'écoulement de la chambre aval qui est de type poiseuille. Elles vont alors s'étirer en de larges stries. Des grilles de traceurs ont été imposées dans

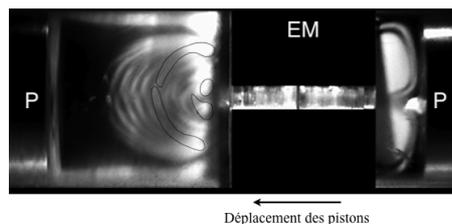


FIGURE 6 – Ecoulement de fluide viscoélastique à un nombre de Reynolds de 1.10^{-4}

la géométrie afin de quantifier le mélange. Après trois cycles de mélange (6 allers-retours des pistons), la longueur d'étirement calculée est de $3.2 \cdot 10^{-3} m$ pour un nombre de Reynolds de 1.10^{-5} (à titre de comparaison, nous obtenons $5.25 \cdot 10^{-4} m$ dans un cas newtonien à un nombre de Reynolds de 1.10^{-3}). Ces traceurs permettent également le calcul de l'aire d'interface S_v . En déterminant la moyenne des S_v de toutes les particules, une idée de la qualité de mélange peut facilement être obtenue. Le processus étant réversible dans un cas Newtonien, la valeur atteinte est de 1.0002. Dans le cas quasi-Newtonien étudié ici, nous atteignons une valeur de 1.0025 (pour une particule soumise à un taux de cisaillement de $0.1 s^{-1}$ pendant $60 s$, S_v atteint 5). Il est à noter que pour des raisons de stabilité de calcul, les gradients de vitesse subis ont été divisés par 1000. Le calcul du tenseur d'aire permet également une représentation claire de la forme et de la direction de la structure dans la géométrie comme on peut le remarquer figure 7. Nous remarquons notamment sur le zoom réalisé figure 7 qu'à l'entrée du canal la microstructure est étirée en ellipsoïde et orientée dans le sens de déplacement des pistons.

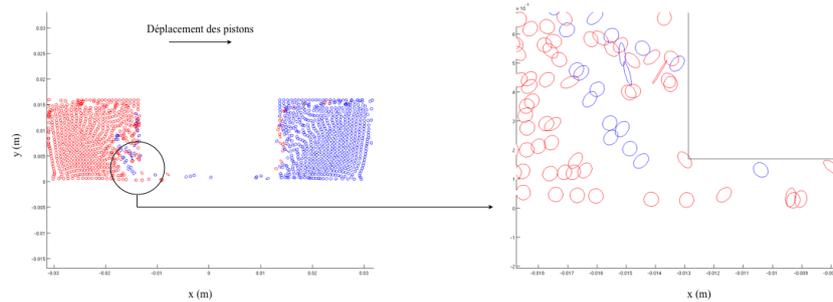


FIGURE 7 – Orientation de la microstructure à l'entrée du canal de mélange

6 Conclusion

Dans le cadre du développement d'un mélangeur de polymères à l'état fondu, il est nécessaire d'effectuer des expériences et des simulations numériques afin de comprendre et d'améliorer les propriétés d'un mélange pour différents types de fluides. Les phénomènes physiques associés à un écoulement viscoélastique ont ici été appréhendés à l'aide d'un procédé expérimental original et à l'aide de simulations numériques qui aident à la compréhension non seulement du processus de mélange au niveau macrostructural mais également au niveau microstructural. Le processus de mélange a alors été étudié à de multiples échelles.

Références

- [1] GI Taylor. The formation of emulsions in definable fields of flow. *Proceedings of the Royal Society of London. Series A, Containing Papers of a Mathematical and Physical Character*, 146(858) :501–523, 1934.
- [2] M. Bouquey, C. Loux, R. Muller, and G. Bouchet. Morphological study of two-phase polymer blends during compounding in a novel compounder on the basis of elongational flows. *Journal of Applied Polymer Science*.
- [3] E. Ryssel and PO Brunn. Comparison of a quasi-Newtonian fluid with a viscoelastic fluid in planar contraction flow. *Journal of Non-Newtonian Fluid Mechanics*, 86(3) :309–335, 1999.
- [4] G. Astarita. Objective and generally applicable criteria for flow classification. *Journal of Non-Newtonian Fluid Mechanics*, 6(1) :69–76, 1979.
- [5] F. Chinesta and M.R. Mackley. Microstructure evolution during liquid–liquid laminar mixing : a kinetic theory approach. *International Journal of Material Forming*, 1(1) :47–55, 2008.
- [6] M. Doi and T. Ohta. Dynamics and rheology of complex interfaces. I. *The Journal of Chemical Physics*, 95 :1242, 1991.
- [7] MH Wagner, T. Raible, and J. Meissner. Tensile stress overshoot in uniaxial extension of a LDPE melt. *Rheologica Acta*, 18(3) :427–428, 1979.