

UNIVERSITÉ DE MONTRÉAL

**ÉTUDE DES INSTABILITÉS D'EXTRUSION
DES POLYÉTHYLÈNES LINÉAIRES**

**DOMINIQUE KAY
DÉPARTEMENT DE GÉNIE CHIMIQUE
ÉCOLE POLYTECHNIQUE DE MONTRÉAL**

**MÉMOIRE PRÉSENTÉ EN VUE DE L'OBTENTION
DU DIPLÔME DE MAÎTRISE ÈS SCIENCES APPLIQUÉES (M.Sc.A)
(GÉNIE CHIMIQUE)
DÉCEMBRE 1998**

© Dominique Kay, 1998.



**National Library
of Canada**

**Acquisitions and
Bibliographic Services**

**395 Wellington Street
Ottawa ON K1A 0N4
Canada**

**Bibliothèque nationale
du Canada**

**Acquisitions et
services bibliographiques**

**395, rue Wellington
Ottawa ON K1A 0N4
Canada**

Your file Votre référence

Our file Notre référence

The author has granted a non-exclusive licence allowing the National Library of Canada to reproduce, loan, distribute or sell copies of this thesis in microform, paper or electronic formats.

The author retains ownership of the copyright in this thesis. Neither the thesis nor substantial extracts from it may be printed or otherwise reproduced without the author's permission.

L'auteur a accordé une licence non exclusive permettant à la Bibliothèque nationale du Canada de reproduire, prêter, distribuer ou vendre des copies de cette thèse sous la forme de microfiche/film, de reproduction sur papier ou sur format électronique.

L'auteur conserve la propriété du droit d'auteur qui protège cette thèse. Ni la thèse ni des extraits substantiels de celle-ci ne doivent être imprimés ou autrement reproduits sans son autorisation.

0-612-42911-3

Canada

UNIVERSITÉ DE MONTRÉAL

ÉCOLE POLYTECHNIQUE DE MONTRÉAL

Ce mémoire intitulé :

ÉTUDE DES INSTABILITÉS D'EXTRUSION
DES POLYÉTHYLÈNES LINÉAIRES

présenté par : KAY Dominique

en vue de l'obtention du diplôme de : Maîtrise ès sciences appliquées

a été dûment accepté par le jury d'examen constitué de :

M. KLIVANA Danilo, Ph.D., président

M. CARREAU Pierre J., Ph.D., membre et directeur de recherche

M. LAFLEUR Pierre G., Ph.D., membre et codirecteur de recherche

M. SANSCHAGRIN Bernard, Ph.D., membre

À mon amour Annie et mes parents

REMERCIEMENTS

J'aimerais d'abord remercier mes directeurs de recherche M. Pierre Carreau et M. Pierre Lafleur qui ont su, par leur expertise, me guider dans mon projet et qui ont été une grande disponibilité. Je remercie également M. Bruno Vergnes qui a dirigé mes recherches en France et qui m'a communiqué son intérêt pour les instabilités d'écoulement.

Je voudrais également souligner l'apport des associés de recherche Luc Parent, Abdel Ouhlal et Carol Pinchaud qui m'ont supporté techniquement et m'ont fourni de précieux conseils. Merci également à Fabien Bouvier et Laurent Robert qui ont participé à la réalisation des expériences dans le cadre de stage de recherche.

Merci à tous mes amis et compagnons de travail, tout spécialement à Claude Thibodeau, avec qui j'ai eu beaucoup de plaisir à étudier.

Un gros merci à Annie que j'aime de tout mon coeur et qui m'a toujours soutenu, en plus de participer à la rédaction de la thèse. Finalement, je remercie sincèrement mes parents et ma famille qui m'ont encouragé dans mes études et qui ont cru en moi.

RÉSUMÉ

Ce travail présente une étude des instabilités d'extrusion de types peau de requin et oscillant des polyéthylènes linéaires (PEBDL et PEHD). Les expériences sont réalisées sur une extrudeuse monovis. Plusieurs filières capillaires de géométries différentes sont utilisées pour étudier l'effet de l'angle d'entrée, du diamètre et du rapport L/D sur l'apparition et le développement de ces défauts. L'effet de la température est également étudié. La quantification des défauts est réalisée à l'aide d'un microscope électronique à balayage. Un système d'acquisition de la pression à haute vitesse et un laser à effet Doppler permettent de mesurer simultanément le débit et la pression.

Les observations faites au microscope permettent de bien suivre l'évolution du défaut de type peau de requin avec la contrainte de cisaillement. Ainsi, on constate que de petites ondulations de moins de un micron d'amplitude apparaissent à la surface de l'extrudat à une contrainte de cisaillement à la paroi d'environ 0,13 MPa. Ces ondulations gagnent rapidement de l'amplitude et s'organisent au fur et à mesure que la contrainte de cisaillement augmente, jusqu'à ce que le défaut de type oscillant survienne. Les photos mettent en évidence un changement de l'aspect de la surface de l'extrudat lors de la formation de la crête du défaut qui favorise l'hypothèse que le défaut soit dû à un phénomène de glissement/adhésion localisé près de la sortie de la filière. Cependant, les mesures de vitesse réalisées avec le laser ne peuvent le confirmer.

L'apparition du défaut dépend essentiellement du niveau de contrainte à la surface près de la sortie. En comparant les résultats obtenus avec les deux PEHD, on démontre que, pour une même contrainte de cisaillement, l'amplitude du défaut augmente avec le taux de gonflement. Ainsi, en plus des contraintes de cisaillement, les contraintes élongationnelles semblent contribuer à former le défaut.

La géométrie de la filière influence peu les contraintes de cisaillement critiques correspondant à l'apparition et à l'organisation du défaut. Celles-ci sont respectivement égales à $0,13 \pm 0,01$ MPa et $0,19 \pm 0,01$ MPa pour le PEBDL (à 190 °C). Cependant, l'amplitude et la période du défaut sont grandement influencées. L'augmentation de l'angle d'entrée a pour effet d'aggraver le défaut lorsque le temps de séjour est inférieur à environ 0,25 s. Ceci démontre que les déformations élongationnelles subies à l'entrée favorisent la formation du défaut lorsqu'elles n'ont pas le temps de relaxer. L'ampleur du défaut augmente également avec le diamètre, mais sa proportion par rapport au diamètre de l'extrudat demeure la même. On constate une augmentation importante de l'amplitude et de la période du défaut avec le rapport L/D . Cet effet est cependant difficile à expliquer. Finalement, l'augmentation de la température a pour effet de retarder l'apparition et le développement du défaut.

Les résultats obtenus dans l'étude du défaut de type oscillant appuient fortement l'hypothèse que celui-ci est dû à un phénomène de glissement/adhésion ("slip-stick") du polymère à la paroi. On observe entre autres un déplacement important de la branche II de la courbe d'écoulement vers des valeurs de taux de cisaillement élevées lorsque le diamètre de la filière diminue. En utilisant la méthode de Mooney, on estime une vitesse de glissement du PEBDL à la paroi d'environ 0,15 m/s.

La transition du segment à peau de requin au segment lisse semble être initiée au sommet d'une crête du défaut de type peau de requin, puis se propage sur l'ensemble de la filière. Il semble donc que le mécanisme de formation de la crête soit à l'origine du glissement généralisé. Celui-ci survient généralement à une contrainte de cisaillement à la paroi d'environ $0,38 \pm 0,01$ MPa avec le PEBDL. Cette valeur est un peu plus élevée avec les deux PEHD ($0,42 \pm 0,01$ MPa).

Les mesures de vitesse et de pression confirment l'hypothèse que l'écoulement oscille en remontant la branche I, puis en redescendant la branche II. Lors des sauts, le

taux de cisaillement varie brusquement, à pression constante, pour atteindre l'autre branche d'écoulement. La forme des oscillations dépend grandement du débit moyen imposé dans la filière. Cependant, le cycle d'écoulement demeure le même. Un modèle théorique est développé pour prévoir l'effet de la géométrie de la filière et du taux de cisaillement imposé sur la période des oscillations. Celui-ci prévoit une période minimale lorsque le taux de cisaillement apparent imposé est au centre de la zone instable et une augmentation rapide lorsque celui-ci se rapproche de l'extrémité des branches d'écoulement. Le modèle prévoit également une augmentation proportionnelle au rapport L/D et au volume du réservoir. Les mesures expérimentales confirment bien les effets prévus du rapport L/D , du volume du réservoir et du taux de cisaillement apparent imposé sur la période, mais la période mesurée expérimentalement ne tend pas vers zéro lorsque le réservoir est petit comme le prévoit le modèle.

L'effet des conditions opératoires sur le défaut de type oscillant est également étudié. En résumé, la contrainte critique d'apparition du défaut dépend peu de la géométrie de la filière et augmente légèrement avec la température. L'aspect du défaut est plus chaotique avec une entrée plate ainsi qu'avec un diamètre plus petit. Finalement, le rapport L/D influence surtout la période du défaut, plus celui-ci est petit, plus la période est courte. Le défaut disparaît pour une filière orifice.

En terminant, on présente le comportement très particulier du PEHD DMDC-6400 dans la zone instable. Ce polymère présente trois comportements différents dans cette zone selon le taux de cisaillement imposé. On observe, entre autres, la formation d'un défaut semblable au défaut de type hélicoïdal qui adopte une forme aplatie pour une mince plage de taux de cisaillement. Ce phénomène est difficile à expliquer.

Ainsi, cette étude a permis d'enrichir les connaissances dans le domaine des instabilités d'extrusion du polyéthylène. Les résultats obtenus ont permis de vérifier plusieurs hypothèses et d'en émettre quelques-unes qui devront être vérifiées dans le cadre de travaux futurs.

ABSTRACT

Sharkskin and « slip-stick » instabilities for linear polyethylene (LLDPE and HDPE) have been studied in this work. The experiments were realised with a single screw extruder. Capillary dies of different shapes were used to study entrance angle, diameter and L/D ratio effect on instabilities onset and developpement. Temperature effect on these same parameters has also been studied. Defect quantification was obtained using a scanning electron microscope (SEM). A high speed pressure acquisition system and a Doppler based laser were used to measure both pressure and exit speed of the extrudate simultaneously.

Observations done on SEM show a sharkskin defect increase with shear stress. Waves of small magnitude (less than one micron) appear at the surface of the extrudate at a shear stress of about 0,13 MPa. Those waves rapidly gain in magnitude and become periodic as the shear stress increases, until « slip-stick » defect appears. SEM photographs reveal a roughness change at the extrudate surface as the defect is formed. This seems to validate the hypothesis that sharkskin defect is caused by a slip-stick phenomena located at the end of the die. However, speed measurement done with the laser did not confirm this hypothesis.

Sharkskin onset depends on the shear stress level at the die wall near the die exit. By comparing the results obtained with two different HDPEs, it is shown that, for a same shear stress, the defect magnitude increases with the melt swelling ratio at the exit. Hence, in addition to shear stress, elongation stress seems to contribute to sharkskin formation.

The die shape has almost no influence on the critical shear stresses associated with the defect appearance and the beginning of organisation. For LLDPE, those shear

stresses are respectively equal to $0,13 \pm 0,01$ MPa and $0,19 \pm 0,01$ MPa. However, die shape has an important effect on the defect's magnitude and period. When the mean residence time of the polymer in the die is less than 0,25 s, the defect's magnitude and period increase with the entrance angle of the die. This observation shows that the elongational deformation applied at the entrance increases the defect shape when the polymer has not enough time to relax. Sharkskin also increases with the die diameter but the ratio with the extrudate diameter remains the same. An important increase with increasing L/D ratio is also observed and this effect has not been explained yet. Finally, the hotter the polymer is, the higher critical shear stresses are. So, a temperature increase slows down the apparition and development of sharkskin.

Results obtained in the «slip-stick defect» study strongly confirm the hypothesis that this phenomena is actually caused by an oscillation between slip and adherence of the polymer at the die wall. It was observed that the die diameter has a strong effect on the flow curve at high shear rate (branch II). The smaller the die diameter is, the higher the shear rate will be. Using the Mooney's method, it is estimated that slip velocity at the wall is about 0,15 m/s for LLDPE.

The transition between sharkskin and continuous slip at the wall is initiated at the top of the wave of the sharkskin defect. Based on this observation, it seems that the sharkskin's formation mechanism initiates the slip. The onset of continuous slip is observed at a shear stress of about $0,38 \pm 0,01$ MPa for LLDPE and $0,42 \pm 0,01$ MPa for HDPEs.

Pressure and speed measurements confirm the hypothesis that the flow oscillates from one branch to the other, increasing along the first branch (low shear rate branch) and decreasing along the other (high shear rate branch). When the flow jumps from one branch to the other, the shear rate changes rapidly to reach the other branch, but the pressure remains the same. The oscillation shape is related to the flow rate imposed by

the screw. However, the flow cycle along branches remains the same. A theoretical model has been developed to predict effects of the die geometry on the oscillation period. Also, the model predicts the effect of the flow rate imposed value. Based on this model, the oscillation period reaches a minimum value when the flow rate imposed value corresponds with the middle of the unstable range between branches. But, it increases rapidly as the average flow rate gets close to branches ends. The model predicts also that the oscillation period increases with the L/D ratio and the reservoir volume. Experimental results confirm those effects, but the period do not converge to zero as the reservoir volume is small.

Effects of flow conditions on slip-stick defect has also been studied. It is observed that the defect onset critical shear stress is almost not influenced by the die shape but increases with temperature. Also, it is observed that the smaller the diameter die and the higher the entrance angle of the die are, the more chaotic the extrudate shape is. Finally, the L/D ratio has a strong influence on the oscillation period. The higher the L/D ratio is, the longer the period is. Furthermore, there is no defect when L/D ratio is equal to zero.

Finally, a particular behavior in the unstable flow rate range has been observed with a HDPE. This polymer shows different behaviors depending on the flow rate imposed value. For example, an instability similar to the helical defect is observed for a small range of shear rate. At some point, this instability gives to the extrudate a very flat shape.

Hence, this study increased the knowledge in the extrusion instability field. Results confirmed some hypotheses and state some others that should be confirmed in future works.

TABLE DES MATIÈRES

DÉDICACE.....	iv
REMERCIEMENTS.....	v
RÉSUMÉ.....	vi
ABSTRACT.....	x
TABLE DES MATIÈRES	xiii
LISTE DES ANNEXES	xvi
LISTE DES TABLEAUX	xvii
LISTE DES FIGURES.....	xix
LISTE DES ABRÉVIATIONS.....	xxv
 1. INTRODUCTION	 1
 2. OBJECTIFS.....	 3
 3. REVUE DE LA LITTÉRATURE	 4
3.1 Les principaux défauts d'extrusion	4
3.2 Courbe d'écoulement.....	7
3.2.1 Contrainte à la paroi.....	8
3.2.2 Taux de cisaillement et vitesse de glissement.....	10
3.3 Deux grandes familles de polymères	14
3.4 Les défauts d'extrusion des polymères linéaires flexibles.....	16
3.4.1 Le défaut de type peau de requin	17
3.4.2 Le défaut de type oscillant	26
3.4.3 Le défaut de type chaotique.....	37
3.5 Les défauts d'extrusion des polymères ramifiés.....	39
3.6 Résumé.....	46

4. MATÉRIAUX UTILISÉS ET CARACTÉRISATION

RHÉOLOGIQUE	48
4.1 Matériaux utilisés	48
4.2 Rhéomètre à plaques parallèles CSM	49
4.2.1 Mesure de la dégradation	49
4.2.2 Module élastique et module de perte	51
4.3 Extrusion	52
4.3.1 Démarche expérimentale	53
4.3.2 Courbes de viscosité	57
4.4 Courbe de viscosité du PEHD DMDC-6400	63

5.ÉTUDE DU DÉFAUT DE TYPE PEAU DE REQUIN

5.1 Méthode expérimentale	66
5.1.1 Choix des polymères	66
5.1.2 Méthode expérimentale	67
5.2 Observations générales	70
5.2.1 Aspect et évolution du défaut	71
5.2.2 Conditions critiques d'apparition et d'organisation du défaut	77
5.2.3 Gonflement de l' extrudat	79
5.2.4 Mesure de la vitesse de l'extrudat	81
5.2.5 Mécanisme de formation du défaut	83
5.3 Effets des conditions opératoires	85
5.3.1 Géométrie d'entrée	85
5.3.2 Diamètre	88
5.3.3 Température	89
5.3.4 Rapport L/D	92
5.4 Résumé	97

6. ÉTUDE DU DÉFAUT DE TYPE OSCILLANT ("SLIP-STICK").	100
6.1 Méthode expérimentale	101
6.1.1 Choix des polymères	101
6.1.2 Méthode expérimentale	102
6.2 Observations générales	104
6.2.1 Courbe d'écoulement	104
6.2.2 Aspect général du défaut	106
6.2.3 Conditions critiques d'apparition	110
6.2.4 Mesures de vitesses et période d' oscillation	112
6.3 Effets des conditions opératoires	132
6.3.1 Géométrie d'entrée	132
6.3.2 Diamètre	135
6.3.3 Température	136
6.3.4 Rapport L/D	137
6.4 Instabilité d' écoulement du PEHD DMDC-6400	139
6.4.1 Description du comportement général du polymère	140
6.4.2 Discussion	146
6.5 Résumé	147
 7. RECOMMANDATIONS	 151
 8. CONCLUSION	 153
 9. BIBLIOGRAPHIE	 155

LISTE DES ANNEXES

Annexe A:	Propriétés des polymères	170
Annexe B:	Rhéomètre à plaques parallèles CSM.....	176
Annexe C:	Rhéoplast.....	182
Annexe D:	Simulation d'écoulement des polymères par différences finies.....	188
Annexe E:	Mesure de la vitesse par effet Doppler.....	205

LISTE DES TABLEAUX

Tableau 3.1	Contraintes critiques d'apparition du défaut surfacique	19
Tableau 3.2	Contraintes critiques d'apparition du défaut de type hélicoïdal.....	40
Tableau 4.1	Polymères étudiés.....	49
Tableau 4.2	Temps de relaxation des polymères étudiés	52
Tableau 4.3	Géométrie des filières utilisées.....	55
Tableau 4.4	Résumé des expériences réalisées sur l'extrudeuse.....	56
Tableau 4.5	Paramètres n et m de la loi de puissance de la perte de pression à l'entrée de la filière en fonction du taux de cisaillement apparent.....	59
Tableau 4.6	Paramètres du modèle de Carreau-Yasuda.....	61
Tableau 5.1	Description des expériences réalisées sur l'extrudeuse monovis dans l'étude du défaut de type peau de requin.	67
Tableau 5.2	Contraintes (corrigées) et taux de cisaillement (apparents) critiques d'apparition et d'organisation du défaut de type peau de requin	77
Tableau 5.3	Cisaillement recouvrable critique correspondant à l'apparition du défaut de type peau de requin.....	78
Tableau 5.4	Température à l'entrée et à la sortie des filières de rapport L/D différent (PEBDL, $D=1,6$ mm, entrée convergente, $\approx 0,38$ MPa)	96
Tableau 6.1	Description des expériences réalisées sur l'extrudeuse monovis dans l'étude de l'écoulement du polymère dans la zone instable	102
Tableau 6.2	Conditions critiques d'apparition du défaut de type oscillant.	110
Tableau 6.3	Cisaillement recouvrable critique correspondant à l'apparition du défaut de type oscillant.....	111

Tableau 6.4	Coefficients de la régression linéaire du taux de cisaillement apparent à la paroi en fonction de la vitesse de l'extrudat à la sortie.....	114
Tableau 6.5	Période d'oscillations en fonction du taux de cisaillement apparent moyen (PEBDL, 190 °C, $D=2$ mm, $L/D=24$, entrée plate).....	119
Tableau 6.6	Valeurs numériques des constantes utilisées dans le calcul du volume effectif du réservoir.	123
Tableau 6.7	Volume effectif du réservoir calculé à partir des mesures de période et du taux de cisaillement apparent moyen (PEBDL, 190 °C, $D=2$ mm, $L/D=24$, entrée plate).	123
Tableau 6.8	Période d'oscillations du défaut de type oscillant en fonction des conditions opératoires (période mesurée au centre de la zone instable)	126

LISTE DES FIGURES

Figure 3.1	Principaux types de défauts d'extrusion	6
Figure 3.2	Courbe d'écoulement typique des polymères ramifiés	15
Figure 3.3	Courbe d'écoulement typique des polymères linéaires flexibles	15
Figure 3.4	Évolution de la rugosité moyenne (a) et de la période (b) du défaut de type peau de requin avec le taux de cisaillement apparent ; (c) profils obtenus au rugosimètre	18
Figure 3.5	Réorganisation du profil de vitesse en sortie de filière	25
Figure 3.6	Courbe d'écoulement à deux branches d'un PEHD (160°C)	28
Figure 3.7	Courbe d'écoulement non-monotone	36
Figure 3.8	Courbe d'écoulement (a) et extrudats (b) correspondant au rapport $L/D=16$ (PEBD, 190°C)	41
Figure 3.9	Courbe d'écoulement typique des polymères ramifiés en contrainte corrigée pour différents diamètres de capillaire. (PEBD, 175 °C, $\circ$:D=0,93 mm; $\square$:D=1,39 mm; $\bullet$: D=2 mm)	42
Figure 3.10	Écoulement à l'entrée du convergent ; (a) polymère linéaire, (b) polymère ramifié	43
Figure 3.11	Clichés de biréfringence à l'entrée du convergent pour le polystyrène ; (a) régime stable, (b) et (c) régime instable	44
Figure 4.1	Test de dégradation des polymères; variation de la mesure de la viscosité complexe η^* en fonction du temps (rhéo. PP CSM, 207 °C, 1 Hz, déformation de 5%)	50
Figure 4.2	Module élastique et module de perte du PEBDL 49851 en fonction de la fréquence d'oscillation et de la température (déformation 5%)	51
Figure 4.3	Schéma du montage expérimental (extrusion).	54
Figure 4.4	Schéma de la géométrie des filières.	54

Figure 4.5	Correction d'entrée par la méthode de Bagley; pression dans le réservoir en fonction du rapport L/D de la filière (PEBDL 49851, 190 °C, 1,6 mm, convergente, branche I de la courbe d'écoulement). ..	58
Figure 4.6	Courbe maîtresse de viscosité du polyéthylène basse densité linéaire (PEBDL) 49851.	62
Figure 4.7	Courbe maîtresse de viscosité du polyéthylène haute densité (PEHD) 2027.	62
Figure 4.8	Courbe maîtresse de viscosité du polyéthylène haute densité (PEHD) 4352N.	63
Figure 4.9	Courbe maîtresse de viscosité du polyéthylène haute densité (PEHD) DMDC-6400.	64
Figure 5.1	Méthode de récupération de l'échantillon à la sortie de la filière.	68
Figure 5.2	Mesure de la vitesse de l'extrudat ; vue de haut du montage expérimental.	70
Figure 5.3	Évolution de l'aspect du défaut de type peau de requin en fonction de la contrainte de cisaillement corrigée à la paroi (PEBDL, 190 °C, $D=1,6$ mm, $L/D=16$, entrée convergente) (a) 0,11 MPa; b) 0,12 MPa; c) 0,16 MPa; d) 0,23 MPa; e) 0,28 MPa; f) 0,35 MPa; g) 0,38 MPa)... ..	74
Figure 5.4	Aspect du défaut de type peau de requin (PEHD 4352N, 190 °C, $D=1,07$ mm, $L/D=16$, entrée plate, 0,42 MPa).	74
Figure 5.5	Évolution du défaut en fonction de la contrainte de cisaillement à la paroi; comparaison des polymères PEBDL 49851, PEHD 2027 et PEHD 4352N (190 °C, $D=1,07$ mm, $L/D=16$, entrée plate).	76
Figure 5.6	Gonflement de l'extrudat en fonction du temps de séjour dans la filière (PEBDL).	79
Figure 5.7	Comparaison des courbes du taux de gonflement de l'extrudat en fonction du temps de séjour dans la filière pour le PEBDL, le PEHD 2027 et le PEHD 4352N (190 °C, $D=1,07$ mm, $L/D=16$, entrée plate)..	80

Figure 5.8	Vitesse de l'extrudat à la sortie de la filière (a) distribution; b) profil dans le temps) (PEBDL, $\sigma=0,36$ MPa, 190 °C, $D=1,6$ mm, $L/D=16$, entrée convergente).	82
Figure 5.9	Effet de l'angle d'entrée; Évolution du défaut de type peau de requin en fonction de la contrainte de cisaillement à la paroi (a) amplitude; b) période) (PEBDL, 190 °C, $D=1,6$ mm, $L/D=8$).....	86
Figure 5.10	Effet de l'angle d'entrée; Évolution du défaut de type peau de requin en fonction de la contrainte de cisaillement à la paroi (a) amplitude; b) période) (PEBDL, 190 °C, $D=1,6$ mm, $L/D=16$).....	87
Figure 5.11	Effet du diamètre; Évolution du défaut de type peau de requin en fonction de la contrainte de cisaillement à la paroi (a) amplitude; b) période) (PEBDL, 190 °C, $L/D=16$, entrée plate).....	89
Figure 5.12	Effet de la température; Évolution du défaut de type peau de requin en fonction de la contrainte de cisaillement à la paroi (a) amplitude; b) période) (PEBDL, $D=1,6$ mm, $L/D=16$, entrée convergente).....	90
Figure 5.13	Aspect du défaut de type peau de requin (PEBDL, 207 °C, $D=1,6$ mm, $L/D=16$, entrée plate, 0,25 MPa).....	91
Figure 5.14	Effet du rapport L/D ; Évolution du défaut de type peau de requin en fonction de la contrainte de cisaillement à la paroi (a) amplitude; b) période) (PEBDL, 190 °C, $D=1,6$ mm, entrée convergente).....	93
Figure 5.15	Aspect du défaut de type peau de requin (PEBDL, 190 °C, $D=1,6$ mm, entrée convergente, $\dot{\gamma}_{app} \approx 200$ s ⁻¹ , $\sigma_c \approx 0,28$ MPa) (a) $L/D=0$; b) $L/D=4$; c) $L/D=8$; d) $L/D=16$).....	94
Figure 6.1	Courbe d'écoulement du PEBDL à 190 °C en fonction de la géométrie de la filière (entrée plate).	105
Figure 6.2	Défaut de type oscillant (PEBDL, 190 °C, $D=1,6$ mm, $L/D=16$, entrée convergente, $\dot{\gamma}_{moy} = 1124$ s ⁻¹).....	107

Figure 6.3	Défaut de type oscillant; Passage du segment à peau de requin au segment lisse (PEBDL, 190 °C, $D=1,6$ mm, $L/D=16$, entrée convergente, $\dot{\gamma}_{\text{moy}}=544 \text{ s}^{-1}$)	108
Figure 6.4	Défaut de type oscillant; Passage du segment lisse au segment à peau de requin (PEBDL, 190 °C, $D=1,6$ mm, $L/D=16$, entrée convergente, $\dot{\gamma}_{\text{moy}}=544 \text{ s}^{-1}$).....	109
Figure 6.5	Taux de cisaillement apparent moyen à la paroi de la filière en fonction de la vitesse de l'extrudat mesurée à la sortie.....	113
Figure 6.6	Évolution de la pression dans le réservoir en fonction du taux de cisaillement apparent moyen à la paroi (PEBDL, 190 °C, $D=2$ mm, $L/D=24$, entrée plate).....	115
Figure 6.7	Évolution de la pression et de la vitesse de l'extrudat à la sortie de la filière (PEBDL, 190 °C, $D=2$ mm, $L/D=24$, entrée plate, $\dot{\gamma}_{\text{moy}}=851 \text{ s}^{-1}$).....	115
Figure 6.8	Évolution de la pression et de la vitesse de l'extrudat à la sortie de la filière (PEBDL, 190 °C, $D=2$ mm, $L/D=24$, entrée plate, $\dot{\gamma}_{\text{moy}}=752 \text{ s}^{-1}$).....	117
Figure 6.9	Évolution de la pression et de la vitesse de l'extrudat à la sortie de la filière (PEBDL, 190 °C, $D=2$ mm, $L/D=24$, entrée plate, $\dot{\gamma}_{\text{moy}}=959 \text{ s}^{-1}$).....	117
Figure 6.10	Profils de pression normalisés pour deux taux de cisaillement apparents imposés (PEBDL, 190 °C, $D=2$ mm, $L/D=24$, entrée plate).....	118
Figure 6.11	Évolution de l'écoulement dans la zone instable pour deux valeurs de taux de cisaillement apparent imposé (PEBDL, 190 °C, $D=2$ mm, $L/D=24$, entrée plate).....	118
Figure 6.12	Évolution théorique de la période du défaut de type oscillant en fonction de la valeur du taux de cisaillement apparent moyen.	122

Figure 6.13	Période d'oscillations en fonction du volume du réservoir (PEBDL, 190 °C, $D=2$ mm, $L/D=24$, entrée plate).....	124
Figure 6.14	Évolution de la période du défaut de type oscillant en fonction de la valeur du taux de cisaillement moyen (PEBDL, 190 °C, $D=1,6$ mm, $L/D=16$, entrée convergente).....	125
Figure 6.15	Distribution des mesures de vitesse de l'extrudat à la sortie de la filière (PEBDL, 190 °C, $D=1,6$ mm, $L/D=16$, entrée convergente, $\dot{\gamma}_{\text{moy}}=896 \text{ s}^{-1}$).....	127
Figure 6.16	Évolution de la vitesse de l'extrudat à la sortie de la filière en fonction du temps (PEBDL, 190 °C, $D=1,6$ mm, $L/D=16$, entrée convergente, $\dot{\gamma}_{\text{moy}}=896 \text{ s}^{-1}$).....	128
Figure 6.17	Défaut de type oscillant; Passage du segment lisse au segment à peau de requin (PEBDL, 190 °C, $D=1,6$ mm, $L/D=16$, entrée convergente, $\dot{\gamma}_{\text{moy}}=896 \text{ s}^{-1}$).....	130
Figure 6.18	Distribution des mesures de vitesse de l'extrudat à la sortie de la filière (PEBDL, 190 °C, $D=1,07$ mm, $L/D = 16$, entrée plate, $\dot{\gamma}_{\text{moy}}=936 \text{ s}^{-1}$).....	130
Figure 6.19	Évolution de la vitesse de l'extrudat à la sortie de la filière en fonction du temps (PEBDL, 190 °C, $D=1,07$ mm, $L/D = 16$, entrée plate, $\dot{\gamma}_{\text{moy}} 936 \text{ s}^{-1}$).....	131
Figure 6.20	Défaut de type oscillant (PEBDL, 190 °C, $D=1,6$ mm, $L/D=16$, entrée plate, $\dot{\gamma}_{\text{moy}}=590 \text{ s}^{-1}$).....	133
Figure 6.21	Défaut de type oscillant (PEBDL, 190 °C, $D=1,6$ mm, $L/D=16$, entrée plate, $\dot{\gamma}_{\text{moy}}=1124 \text{ s}^{-1}$).....	133
Figure 6.22	Évolution de la vitesse de l'extrudat à la sortie de la filière en fonction du temps; échelle de 5 secondes (PEBDL, 190 °C, $D=1,6$ mm, $L/D=16$, entrée plate, $\dot{\gamma}_{\text{moy}} 1124 \text{ s}^{-1}$).....	134

Figure 6.23	Pression dans le réservoir en fonction du taux de cisaillement apparent (PEBDL, 190 °C, 1,6 mm, $L/D=16$).....	138
Figure 6.24	Défaut de type oscillant (PEBDL, 190 °C, $D=1,6$ mm, $L/D=4$, entrée convergente, $\dot{\gamma}_{moy}=994 \text{ s}^{-1}$).	139
Figure 6.25	Courbe d'écoulement du polyéthylène haute densité DMDC-6400 (190 °C, $D=1,39$ mm, $L/D=16$).	140
Figure 6.26	Comportement du PEHD DMDC-6400 dans la zone instable en fonction du taux de cisaillement imposé (190 °C, $D=1,39$ mm, $L/D=16$).	141
Figure 6.27	Cycle morphologique de l'extrudat au début de la zone instable (190 °C, $D=1,39$ mm, $L/D=16$).	143
Figure 6.28	Forme aplatie du défaut de type denté à un taux de cisaillement apparent de 1250 s^{-1} (190 °C, $D=1,39$ mm, $L/D=16$).	144
Figure 6.29	Forme axisymétrique du défaut de type denté à un taux de cisaillement apparent de 1350 s^{-1} (190 °C, $D=1,39$ mm, $L/D=16$).	145

LISTE DES ABRÉVIATIONS

a_0, a_1, b_0	
b_1, c_0, c_1	Paramètres du polynôme de la masse volumique
$A(T), B(T)$	Fonctions de glissement en température
c	Constante du coefficient de convection naturelle
C_1, C_2	Constantes du polynôme de la chaleur spécifique
$\hat{C}_p$	Chaleur spécifique
d	Distance entre les franges d'interférences
D, D_0	Diamètre de la filière
$Disip$	Terme de disparition visqueuse (programme)
$Dis_haut,$	Terme de disparition visqueuse calculé dans le haut de la maille
Dis_bas	Terme de disparition visqueuse calculé dans le bas de la maille
e_0	Longueur fictive (correction de Bagley)
E, E_1, E_2	Énergies d'activation
f	Fréquence de l'onde
f'	Fréquence perçue par le récepteur
f_r	Fréquence de retour du signal
G	Module caractéristique d'élasticité
G'	Module élastique
G''	Module de perte
G_z	Nombre de Graetz
h	Coefficient de convection naturelle
k	Conductivité thermique
L	Longueur de la filière
M	Nombre de mailles dans la direction axiale
m	Indice de la loi de puissance

m_1, m_2, m_3	
n_1, n_2, n_3	Paramètres des polynômes des indices de loi de puissance
$\dot{m}$	Débit massique
N	Nombre de mailles dans la direction radiale
n	Paramètre de pseudoplasticité
n	Composante visqueuse de la longueur fictive (correction de Bagley)
n, p	Paramètres du modèle de Carreau-Yasuda
Nu	Nombre de Nusselt
P	Pression
P_{c2}	Pression critique d'initiation du glissement
P_{c3}	Pression critique d'adhésion du polymère à la paroi
P_{Ent}	Composante en élongation associée à la perte de pression à l'entrée
P_R	Pression dans le réservoir
P_{Sent}	Composante en cisaillement associée à la perte de pression à l'entrée
ΔP_{end}	Perte de pression associé aux effets de bouts
ΔP_{ent}	Perte de pression à l'entrée
$\dot{Q}$	Débit volumique
$\dot{Q}_C$	Débit massique de compression moyen
$\dot{Q}_D$	Débit massique de décompression moyen
r	Direction radiale, rayon
R	Rayon de la filière
R	Constante des gaz parfaits
S_R	Cisaillement recouvrable
T	Température
T	Turbulence
T_c	Temps de compression
T_m	Température du polymère à la paroi
T_p	Température de la paroi

T_R	Température de référence
T_D	Temps de décompression
T_T	Période totale du cycle d'oscillation du défaut
u_S	Vitesse de glissement
v, V	Vitesse
v_o	Vitesse relative
$\bar{V}$	Vitesse moyenne
V_R	Volume du réservoir
z	Direction axiale
α	Angle d'intersection des faisceaux laser
ΔM_A	Variation de la masse de polymère dans le réservoir
$\dot{\gamma}$	Taux de cisaillement
$\dot{\gamma}_{app}$	Taux de cisaillement apparent à la paroi
$\dot{\gamma}_{a,s}$	Taux de cisaillement apparent à la paroi sans glissement
$\dot{\gamma}_{cl}(A)$	Taux de cisaillement apparent critique d'apparition du défaut de type peau de requin
$\dot{\gamma}_{cl}(T)$	Taux de cisaillement apparent critique d'organisation du défaut de type peau de requin
$\dot{\gamma}_{c2}$	Taux de cisaillement apparent critique d'initiation du glissement
$\dot{\gamma}_{c3}$	Taux de cisaillement apparent critique d'adhésion du polymère à la paroi
$\bar{\gamma}_I$	Taux de cisaillement apparent moyen durant la phase de compression
$\bar{\gamma}_{II}$	Taux de cisaillement apparent moyen durant la phase de décompression
$\dot{\gamma}_{moy}$	Taux de cisaillement apparent moyen
$\dot{\gamma}_R$	Taux de cisaillement à la paroi corrigé par la méthode de Rabinovitch
λ	Longueur d'onde
η	Viscosité
η^*	Viscosité complexe

η^*_{ini}	Viscosité complexe initiale
η_o	Viscosité à cisaillement nul
μ	Module de cisaillement
ρ	Masse volumique
$\bar{\rho}$	Masse volumique moyenne dans la filière
σ	Contrainte de cisaillement
σ	Écart type
σ_{app}	Contrainte de cisaillement apparente à la paroi
σ_c	Contrainte de cisaillement corrigée à la paroi
$\sigma_{cl}(A)$	Contrainte de cisaillement corrigée critique d'apparition du défaut de type peau de requin
$\sigma_{cl}(T)$	Contrainte de cisaillement corrigée critique d'organisation du défaut de type peau de requin
σ_{c2}	Contrainte de cisaillement corrigée critique d'initiation du glissement
σ_{c3}	Contrainte de cisaillement corrigée critique d'adhésion du polymère à la paroi
t	Temps
τ^*	Temps caractéristique de relaxation
ω	Fréquence, vitesse angulaire
ω^*	Fréquence caractéristique de relaxation

1. INTRODUCTION

Depuis que J. W. Hyatt a développé le premier polymère synthétique pour la fabrication de boules de billard en 1868, l'industrie du plastique n'a cessé d'évoluer. En 1997, la consommation de polyéthylène haute densité, un des polymères les plus utilisés, s'élevait à plus de 385000 tonnes par année au Canada.

L'extrusion est un des principaux procédés de transformation utilisés dans l'industrie. Ce procédé consiste à fondre le polymère et à forcer celui-ci à s'écouler au travers d'une filière pour obtenir le profilé désiré. Cependant, des instabilités d'écoulement apparaissent sous certaines conditions, affectent la qualité du produit et limitent la production. Le grand nombre d'études scientifiques publiées sur le sujet au cours des dernières décennies démontre l'intérêt que porte l'industrie à ce problème. Ces études ont permis de mieux comprendre les mécanismes à l'origine de ces défauts et de proposer différents modèles pour caractériser ces phénomènes. Par contre, plusieurs sujets demeurent controversés.

Le polyéthylène est un polymère fascinant à étudier, car il présente une grande variété de défauts d'extrusion selon les conditions d'opération et la géométrie d'écoulement. Les deux principaux défauts observés sont ceux de types peau de requin et oscillant. Le défaut de type peau de requin est généralement le premier à apparaître. Il peut survenir à un débit très faible et affecte la qualité de la surface du produit. Le défaut de type oscillant est caractérisé par des oscillations de la pression et du débit. Ces défauts causent beaucoup de contraintes de production et il est important du point de vue économique de bien comprendre ces phénomènes.

Des expériences ont été menées pour tenter de déterminer l'influence des conditions d'écoulement sur l'apparition et le développement de ces défauts et proposer les mécanismes de formation. Les mesures ont été faites sur une extrudeuse monovis et l'étude des défauts a été réalisé à l'aide d'un microscope électronique à balayage et un appareil de mesure de vitesse.

Après avoir présenté les objectifs du projet à la section 2, on présentera, à la section 3, une revue détaillée des travaux publiés sur les défauts d'extrusion aux cours des dernières décennies. La section 4 présentera ensuite la caractérisation rhéologique des polymères étudiés. Finalement, les sections 5 et 6 seront consacrées respectivement à l'étude des défauts de types peau de requin et oscillant.

2. OBJECTIFS

Ce projet de recherche a pour objectif de mieux comprendre l'origine des deux principaux défauts d'extrusion généralement observés avec les polyéthylènes linéaires, soient les défauts de types peau de requin et oscillant. Les objectifs spécifiques fixés sont les suivants:

Dans l'étude du défaut de type peau de requin:

- déterminer les conditions critiques d'apparition du défaut;
- étudier l'influence de la température et de la géométrie de la filière (angle d'entrée, rapport L/D et diamètre) sur l'apparition et le développement du défaut;
- proposer un mécanisme à l'origine du défaut.

Dans l'étude du défaut de type oscillant:

- déterminer les conditions critiques d'apparition du défaut;
- étudier le cycle d'oscillations suivi par l'écoulement à l'aide d'une technique de mesure du débit.
- étudier l'influence de la température, de la géométrie de la filière (angle d'entrée, rapport L/D et diamètre) et du volume du réservoir sur l'apparition du défaut, l'ampleur de la zone instable et la période d'oscillations du défaut.
- mieux comprendre le rôle de la compressibilité du polymère dans le développement du défaut.

3. REVUE DE LA LITTÉRATURE

Plusieurs études traitant des instabilités d'extrusion ont été publiées au cours des dernières décennies et ce chapitre a pour objet de résumer les principaux résultats obtenus. Dans un premier temps, on présentera les principaux défauts d'extrusion observés. La notion de courbe d'écoulement sera par la suite introduite, puis on classera les polymères en deux grandes familles selon les types de défaut qu'ils présentent. Finalement, chaque type de défaut sera élaboré en discutant des conditions d'apparition, des paramètres influents et des mécanismes à l'origine.

3.1 *Les principaux défauts d'extrusion*

Il est bien reconnu dans la littérature que les distorsions observées sur les extrudats dépendent des déformations de cisaillement et d'élongation que subit le polymère durant son écoulement (Wissburn et Dealy, 1989). Par exemple, certains auteurs (Tordella, 1969; Petrie et Denn, 1976; Boudreaux et Cuculo, 1978) ont rapporté que lorsqu'un polymère fondu est extrudé au travers d'un capillaire ou d'une filière plate, les distorsions de l'extrudat surviennent lorsque le cisaillement recouvrable S_R atteint une valeur critique située entre 1 et 10. Le cisaillement recouvrable est défini comme suit:

$$S_R = \frac{\sigma_c}{G} \quad (3.1)$$

où σ_c représente la contrainte de cisaillement à la paroi et est directement proportionnelle au gradient de pression moyen dans la filière, $\Delta P/L$; et le symbole G est le module caractéristique d'élasticité du polymère et peut être estimé par l'expression suivante:

$$G \approx \frac{\eta_o}{\tau^*} \quad (3.2)$$

où η_o est la viscosité du polymère à cisaillement nul et τ^* représente le temps caractéristique de relaxation.

Ceci illustre le fait que la nature des défauts et leurs conditions d'apparition sont influencées par le type de polymère étudié (nature chimique, caractéristiques moléculaires, distribution et longueur de branchement, etc.), la géométrie d'écoulement (longueur et diamètre du capillaire, angle d'entrée et de sortie, volume du réservoir, rapport de contraction, etc.) et les conditions opératoires (pression, température, taux de cisaillement, etc.). Plusieurs auteurs ont publié des articles sur le sujet. Parmi ceux-ci, on peut mentionner Tordella (1969), Petrie et Denn (1976), Boudreaux et Cuculo (1977), Denn (1990), Larsson (1992) et Agassant et *al.* (1996) qui présentent une bonne revue du sujet.

De façon générale, on rapporte quatre principaux types de défaut d'extrusion observés dans l'industrie, soient les défauts de types peau de requin, oscillant, hélicoïdal et chaotique. La figure 3.1 présente ces défauts et est accompagnée d'une brève description de chacun d'eux.

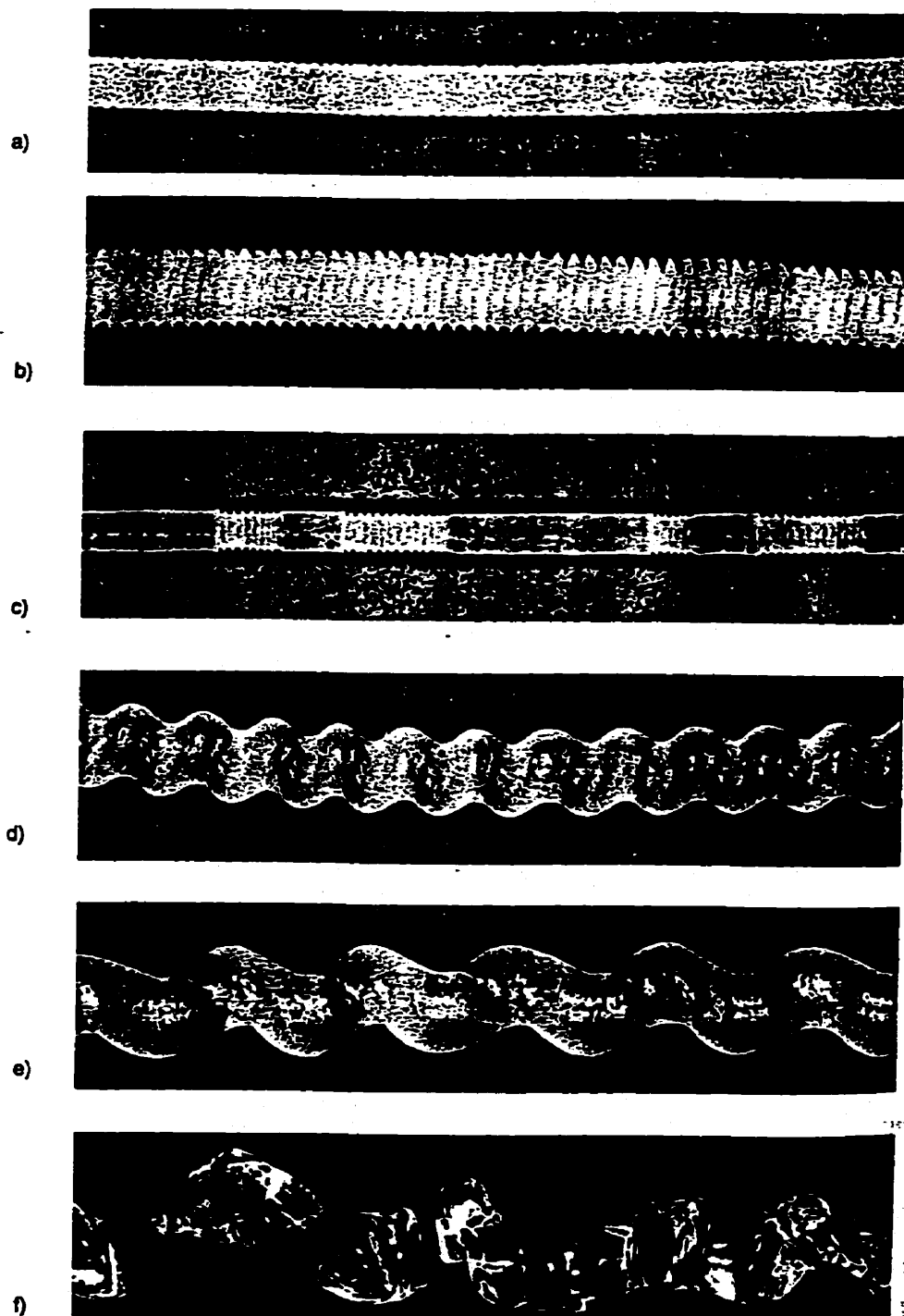


Figure 3.1 Principaux types de défauts d'extrusion (Agassant et *al.*, 1996).

- le *défait de peau de requin* « sharkskin » correspond à une perturbation généralement de faible amplitude (moins de 1% du diamètre de l'extrudat) et souvent très régulière, qui affecte la surface de l'extrudat (petites craquelures). Le défaut est orienté dans la direction perpendiculaire à l'écoulement et peut se présenter sous différents aspects (rides, fissures, alvéoles, etc.) (figure 3.1a et b).
- le *défait oscillant* se présente comme une succession régulière de zones de morphologies différentes, généralement une zone lisse et une zone à peau de requin, et est accompagné d'une fluctuation du débit et de la pression, (figure 3.1c).
- le *défait hélicoïdal* affecte tout le volume de l'extrudat et présente là aussi des formes pouvant être très régulières (figure 3.1d et e).
- le *défait chaotique* donne à l'extrudat un aspect extrêmement perturbé (variation du diamètre de l'extrudat de plus de 10%) et peut même mener jusqu'à la rupture de l'extrudat (figure 3.1f).

La section suivante introduira la notion de courbe d'écoulement qui permet de faciliter le classement de ces défauts.

3.2 Courbe d'écoulement

Afin de faciliter l'étude de l'écoulement d'un polymère fondu au travers d'une filière et de mieux comprendre les phénomènes d'instabilité, on utilise souvent la courbe de la contrainte σ_c en fonction du taux de cisaillement apparent $\dot{\gamma}_{app}$ évalués à la paroi. Cette courbe est communément appelée la courbe d'écoulement du polymère.

Les méthodes de calcul utilisées pour déterminer la contrainte et le taux de cisaillement à la paroi pour un écoulement dans un capillaire sont résumés ci-dessous.

3.2.1 Contrainte à la paroi

Dans le cas d'une filière cylindrique (capillaire), la contrainte de cisaillement apparente à la paroi est égale à l'expression suivante:

$$\sigma_{app} = \frac{P_R R}{2L} \quad (3.3)$$

où P_R est la pression dans le réservoir en amont de la filière, R et L sont respectivement le rayon et la longueur de la filière. Cependant, à moins que la filière utilisée soit très longue ($L/R > 200$), les effets de bouts affectent la précision de la valeur calculée. Pour cette raison, Bagley (1957) a proposé une méthode empirique qui permet de corriger ces effets de bouts. Il a incorporé un nouveau paramètre, e_o , qui permet d'ajouter une longueur fictive de filière pour considérer les résistances visqueuses à l'entrée de celle-ci. On peut également exprimer cette résistance en termes de perte de pression ΔP_{end} . Ainsi, l'expression corrigée de σ_{app} devient:

$$\sigma_c = \frac{P_R R}{2(L + e_o R)} \quad (3.4)$$

ou

$$\sigma_c = \frac{(P_R - \Delta P_{end}) R}{2L} \quad (3.5)$$

Ces expressions sont basées sur l'hypothèse que la contrainte est uniforme le long du capillaire. Or, Hatzikiriakos et Dealy (1992b) soutiennent que cette hypothèse n'est pas valide si on considère un glissement à la paroi. Ainsi, lors du glissement, la valeur calculée par les expressions ci-dessus est valide seulement à une position particulière z_o dans le capillaire.

Pour déterminer les paramètres e_o ou ΔP_{end} , on peut tracer le graphique de la pression dans le réservoir P_R en fonction du rapport L/D , pour un taux de cisaillement constant, en utilisant plusieurs capillaires de même diamètre mais de longueurs différentes. Si les effets de dissipation visqueuse et de pression sont faibles, les points forment une droite et les valeurs de e_o et de ΔP_{end} sont respectivement l'abscisse et l'ordonnée à l'origine. En traçant la droite pour plusieurs valeurs de cisaillement, on peut déterminer une courbe du facteur de correction de Bagley (e_o ou ΔP_{end}) en fonction du taux de cisaillement. Le concept développé par Bagley est utile car une fois cette courbe déterminée, elle s'applique à différentes géométries dont les conditions d'entrée sont les mêmes (rapport de contraction et angle d'entrée).

Une autre façon d'estimer ΔP_{end} est de mesurer tout simplement la perte de pression dans une filière orifice de même diamètre.

Philippoff et Gaskins (1958) ont suggéré que les effets d'entrée sont causés par des effets visqueux et élastiques, c'est-à-dire :

$$e_o = n + \frac{S_R}{2} \quad (3.6)$$

où n représente la correction visqueuse et $S_R/2$ est la correction élastique. Bagley (1961) a par la suite démontré qu'en considérant la loi de Hooke en cisaillement:

$$\sigma = \mu S_R \quad (3.7)$$

où μ est le module de cisaillement, on peut réécrire l'expression de e_o ainsi:

$$e_o = n + \frac{\sigma}{2\mu} \quad (3.8)$$

En traçant e_o vs σ , on détermine n , μ et S_R .

3.2.2 Taux de cisaillement et vitesse de glissement

Le taux de cisaillement apparent dans un capillaire est égal à l'expression suivante:

$$\dot{\gamma}_{app} = \frac{4\dot{Q}}{\pi R^3} \quad (3.9)$$

où $\dot{Q}$ est le débit volumique de polymère. Cette expression du taux de cisaillement représenterait le taux de cisaillement vrai si le fluide était newtonien et qu'il n'y avait pas de glissement.

L'équation de Rabinowitsch permet de corriger le cisaillement pour les fluides non-newtoniens.

$$\dot{\gamma}_R = \frac{(1+3n)}{4n} \cdot \dot{\gamma}_{app} \quad (3.10)$$

où n est le paramètre de pseudoplasticité dans le cas d'un fluide de loi de puissance. Par contre, si on considère un glissement à la paroi, le taux de cisaillement apparent doit d'abord être corrigé avant d'appliquer la correction de Rabinowitsch.

La notion de glissement à la paroi fait l'objet de larges débats. Comme il sera mentionné dans les sections suivantes, un glissement à la paroi est souvent proposé pour expliquer les défauts d'extrusion des polymères flexibles linéaires. Ces polymères présentent généralement une discontinuité dans la courbe d'écoulement qui est constituée de deux branches d'écoulement stables séparées par une zone instable. Benbow et Lamb (1963) ont été les premiers à interpréter cette discontinuité comme une perte d'adhésion polymère/paroi. Depuis, plusieurs travaux semblent démontrer que l'écoulement du polymère sur la branche II présente un glissement important en paroi (Ui et *al.*, 1964; Uhland, 1979; Utracki et Gendron, 1984; Kalika et Denn, 1987; Hatzikiriakos et Dealy, 1992a et b; Vergnes et *al.*, 1992). Également, la longueur fictive e_0 calculée en branche I est faible, à peu près constante et indépendante du diamètre tandis que pour un écoulement en branche II, e_0 augmente rapidement avec le taux de cisaillement et est plus sensible au diamètre (Ui et *al.*, 1964; Lupton et Regester, 1965; Vinogradov et *al.*, 1984; Durand et *al.*, 1993, 1996). Le fait que la perte de charge dans le capillaire devienne négligeable par rapport à celle à l'entrée pour des conditions d'écoulement en branche II renforce l'hypothèse d'un glissement sur cette branche. De plus, certains auteurs ont utilisé des traceurs de couleurs (Lyngaae-Jorgensen et Marcher, 1985; El Kissi et Piau, 1990) ou ont mesuré des taux de transfert de chaleur à la paroi (Atwood, 1983; Schowalter, 1988; Lim et Schowalter, 1989; Atwood et Schowalter, 1989) pour conclure que l'écoulement sur cette branche était près de l'écoulement bouchon. Cependant, aucun glissement n'a pu être mesuré directement pour un écoulement sur la branche I. Den Otter (1970) et El Kissi et Piau (1990) ont suivi le déplacement de particules de carbure en paroi et n'ont décelé aucun glissement. Atwood et Schowalter (1989) et Lim et Schowalter (1989) ont tous

deux mesuré le flux de chaleur dans l'écoulement par anémométrie à film chaud et ont conclu que le polymère ne glisse pas en paroi pour des conditions d'écoulement de la branche I. Finalement, Piau et *al.* (1995) ont mesuré le profil de vitesse dans l'écoulement pour des conditions d'apparition du défaut de peau de requin à l'aide d'une technique de vélocimétrie laser-Doppler et a obtenu un profil parabolique correspondant à des conditions d'adhésion.

Bien que le glissement à la paroi n'ait pu être mesuré directement sur la branche I, plusieurs auteurs ont estimé indirectement une vitesse de glissement en interprétant les courbes d'écoulement obtenues pour différentes géométries de filières.

Ramamurthy (1986) et Hatzikiriakos et Dealy (1991) ont entre autres utilisé la technique développée par Mooney (1931) pour déterminer la vitesse de glissement et obtenir le taux de cisaillement réel, $\dot{\gamma}_{a,s}$, subi par le polymère. Cette technique est basée sur l'hypothèse que la contrainte à la paroi, la vitesse de glissement et le gradient de pression sont constants le long du capillaire et indépendants du diamètre. A partir de ces hypothèses, Mooney a développé l'équation suivante reliant le taux de cisaillement apparent au diamètre du capillaire.

$$\dot{\gamma}_{a,s} = \dot{\gamma}_{app} - \frac{8u_s}{D} \quad (3.11)$$

où u_s représente la vitesse de glissement du polymère. En traçant $\dot{\gamma}_{app}$ vs $1/D$ pour un niveau de contrainte constant, on obtient une droite dont la pente est $8u_s$ et l'ordonnée à l'origine est $\dot{\gamma}_{a,s}$. Cependant, cette méthode ne donne pas toujours des résultats concluants, particulièrement sur la branche II (Vinogradov et Ivanova, 1968).

Une autre façon de déduire la vitesse de glissement est d'extrapoler la courbe d'écoulement à faible taux de cisaillement (contact collant supposé) pour comparer le cisaillement apparent mesuré avec celui extrapolé (Kalika et Denn, 1987).

D'autres modèles de glissement ont également été développés aux cours des dernières années. Hatzikiriakos et Dealy (1992a) a modifié la technique de Mooney pour tenir compte de l'influence de la pression sur la vitesse de glissement. Tout comme Vinogradov et Ivanova (1968) qui avaient étudié l'écoulement de certains élastomères dans des capillaires, il prévoit une augmentation importante de la vitesse de glissement à la sortie de la filière où la pression est faible. Hatzikiriakos et *al.* (1993) a ensuite calculé le travail impliqué lors de l'adhésion du polymère à la paroi. Il obtient une relation linéaire entre le travail d'adhésion et la valeur de la contrainte au changement de pente des courbes d'écoulement et conclut que le glissement est bien provoqué par une rupture d'adhésion à la paroi et non à une rupture cohésive du profil de vitesse dans le polymère. Finalement, Hatzikiriakos et Dealy (1994) présente un modèle qui prédit la position du point de transition où le glissement est initié pour différents débits. Ce modèle empirique est basé sur la théorie thermodynamique d'énergie d'activation d'Eyring et il tient compte des effets de la contrainte de cisaillement, de la pression, de la température, des caractéristiques moléculaires et du temps de transition adhésion/glissement à partir d'une contrainte critique prédite par la valeur du travail d'adhésion polymère/paroi.

Ainsi, en utilisant une de ces techniques, on peut éliminer les effets du glissement pour déterminer le cisaillement réel subit par le polymère.

En plus du glissement, on doit également tenir compte de la dissipation visqueuse dans la filière. En effet, les polymères sont généralement très visqueux et peu conducteur de sorte qu'un écoulement à haut taux de cisaillement peut mener à un

échauffement important. Il est donc important de limiter le cisaillement appliqué au polymère et d'utiliser des filières courtes de préférence pour maintenir des conditions isothermes.

La courbe d'écoulement obtenue à partir des mesures débit-pression dépend des caractéristiques moléculaires, des conditions opératoires et de la géométrie de la filière. Les effets de ces différents paramètres seront discutés en détail dans les sections subséquentes. Cependant, on observe de façon générale deux types de courbe d'écoulement selon la famille de polymère étudiée.

3.3 Deux grandes familles de polymères

De façon générale, on peut classer les polymères en deux grandes familles en fonction de leur structure moléculaire et de leur courbe d'écoulement (Den Otter, 1970), soient:

- les polymères linéaires flexibles (PEHD, PEBDL, PB, PTFE, etc.) ainsi que certains compounds (PVC, EPDM, etc.).
- les polymères ramifiés ou à fort encombrement stérique (PEBD, PS, PMMA, PP, PA, etc.).

Les courbes d'écoulement de ces deux familles de polymères sont très différentes. La figure 3.2 présente la courbe d'écoulement des polymères ramifiés. On remarque que celle-ci ne comporte pas de discontinuité. L'extrudat est d'abord lisse à faible taux de cisaillement puis des défauts de type hélicoïdal, puis chaotique se

développent. La nature de ces défauts ainsi que leur mécanisme de formation seront développés plus en détail à la section 3.5.

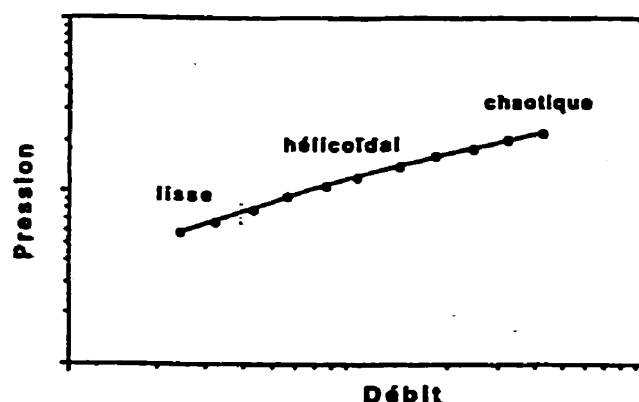


Figure 3.2 Courbe d'écoulement typique des polymères ramifiés (Agassant et al., 1996).

Les polymères linéaires flexibles présentent généralement une courbe d'écoulement discontinue, constituée de deux branches stables (I et II sur la figure 3.3) séparées par une zone instable oscillante.

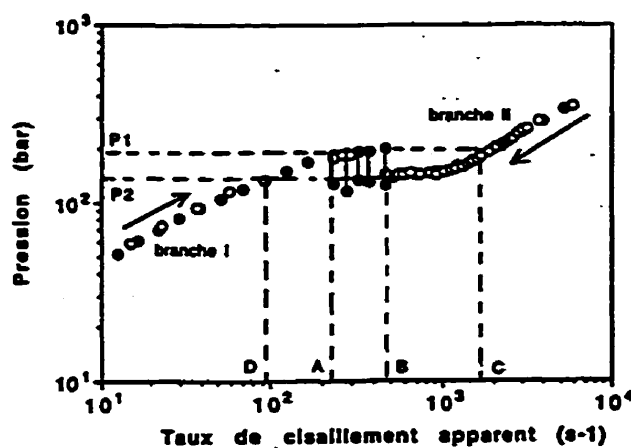


Figure 3.3 Courbe d'écoulement typique des polymères linéaires flexibles (Agassant et al., 1996).

Bergem (1976) décrit de façon précise le comportement du polymère autour de la zone instable. Sur la branche I, l'extrudat est d'abord lisse puis le défaut de type peau de requin se développe et s'intensifie. Sur la branche II, l'extrudat est généralement lisse à faible taux de cisaillement puis devient chaotique à très fort taux de cisaillement. Le comportement du polymère dans la zone instable dépend du type de contrôle de l'écoulement (pression contrôlée ou débit imposé) et sera décrit plus en détail dans la section relative à la description du défaut oscillant à la section 3.4.2. Les défauts associés à cette famille de polymères seront discutés à la section 3.4.

Il est à noter qu'un polymère appartenant à une famille donnée pourra adopter un comportement propre à l'autre famille en fonction de sa polymolécularité, de sa masse moléculaire, mais également en fonction des conditions d'écoulement et la géométrie de la filière. On peut, par exemple, supprimer la zone instable des polymères linéaires flexibles en utilisant des filières dont la surface est de faible énergie (Lim, 1971 ; Rudin *et al.*, 1990 ; Piau *et al.*, 1995) ou en utilisant une filière orifice (Venet, 1996).

3.4 Les défauts d'extrusion des polymères linéaires flexibles

Les trois principaux défauts observés pour les polymères linéaires flexibles sont les défauts de types peau de requin, oscillant et chaotique. Cette section ainsi que celle traitant des défauts des polymères ramifiés (section 3.5) présenteront chacun des défauts ainsi que leurs conditions d'apparition. On discutera également des différents paramètres influençant l'apparition et le développement du défaut, puis on terminera en présentant les mécanismes à l'origine de ces défauts proposés dans la littérature.

3.4.1 Le défaut de type peau de requin

a) Présentation et conditions d'apparition

Lorsque l'écoulement est sur la branche I (figure 3.3) et que le taux de cisaillement est faible, l'extrudat apparaît lisse (rugosité inférieure à $0,1 \mu\text{m}$). Cependant, lorsque le taux de cisaillement (ou la contrainte à la paroi correspondante) atteint une valeur critique $\dot{\gamma}_{cl}$, la rugosité s'amplifie et de petites craquelures apparaissent à la surface de l'extrudat. D'abord désordonnées et invisibles à l'oeil nu, ces craquelures s'organisent peu à peu, gagnent de l'amplitude et adoptent une périodicité de plus en plus nette au fur et à mesure que le débit d'extrusion est augmenté. Venet (1996) présente une étude détaillée du développement des défauts surfaciques observés sur des PEBDL de structures moléculaires différentes. Le défaut de surface en branche I peut présenter plusieurs aspects selon les conditions opératoires, la géométrie de la filière et la structure moléculaire du polymère. Il est généralement orienté dans la direction perpendiculaire à l'écoulement et peut prendre la forme de rides (Dennison, 1967), de fissures (Cogswell, 1977), d'alvéoles (Beaufils et *al.*, 1989) ou de filets de vis (Tordella, 1963 ; Lim, 1971).

Il est difficile d'obtenir dans la littérature une valeur précise de $\dot{\gamma}_{cl}$ (ou σ_{cl} correspondant) car beaucoup d'auteurs se sont contentés d'observations visuelles de l'extrudat. Ramamurthy (1986) avait noté que l'apparition visuelle du défaut de type peau de requin coïncidait avec un changement de pente de la branche I. Cependant, Beaufils et *al.* (1989) ont utilisé un rugosimètre pour démontrer que le défaut apparaît à des taux de cisaillement inférieurs au taux critique de changement de pente (28 s^{-1} au lieu de 39 s^{-1}) (figure 3.4). Il est donc important de bien quantifier ce défaut pour tenter d'en définir les mécanismes. Une autre technique de quantification a été proposée par Tzoganakis et *al.* (1993) qui ont fait une analyse d'image par sa dimension fractale.

Venet (1996) a utilisé plusieurs techniques pour quantifier le défaut (microscopie optique, polissage de sections longitudinales et rugosimétrie), ce qui a permis d'augmenter la précision des mesures et d'élargir la plage d'amplitudes du défaut pouvant être mesurées. Elle définit deux paramètres critiques, soient $\dot{\gamma}_{cl}(A)$ qui correspond au cisaillement critique à partir duquel la rugosité gagne de l'amplitude, et $\dot{\gamma}_{cl}(T)$ qui représente le cisaillement où l'auteur observe un début d'organisation du défaut. Pour les PEBDL utilisés, $\dot{\gamma}_{cl}(A)$ et $\dot{\gamma}_{cl}(T)$ se situent dans les plages de cisaillement 15-90 s^{-1} et 45-140 s^{-1} respectivement.

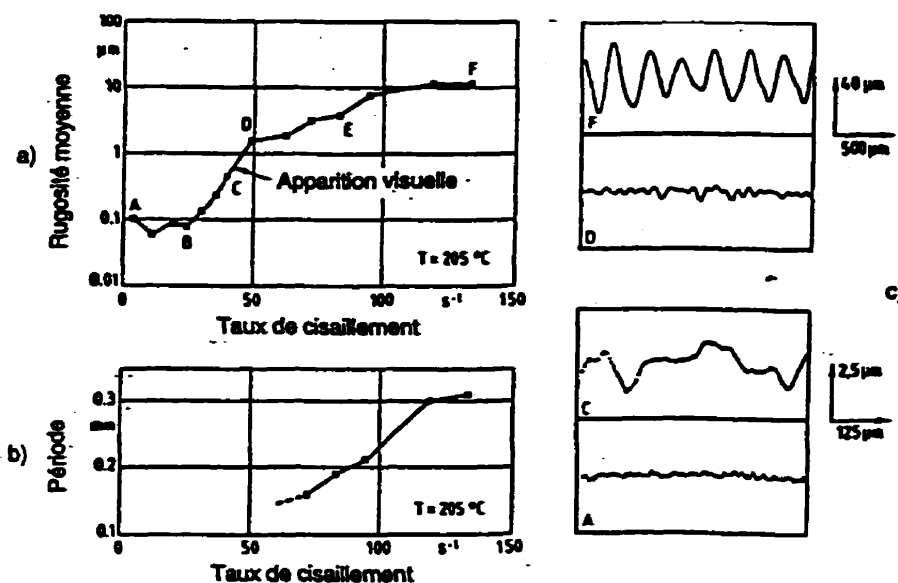


Figure 3.4 Évolution de la rugosité moyenne (a) et de la période (b) du défaut de type peau de requin avec le taux de cisaillement apparent ; (c) profils obtenus au rugosimètre (Beaufils et *al.*, 1989).

Plusieurs auteurs utilisent la contrainte de cisaillement à la paroi comme critère d'apparition du défaut et le tableau suivant résume les différents résultats recueillis dans

la littérature. Il est à noter que plusieurs de ces résultats sont basés exclusivement sur une observation visuelle de l'extrudat.

Tableau 3.1 Contraintes critiques d'apparition du défaut surfacique (Venet, 1996).

Ballenger et <i>al.</i> , 1971	0,1 à 0,17	PEHD	190°C
Herrainen et Savolainen, 1984	0,35	PEBDL	237°C et 267°C
Ramamurthy, 1986	0,14	PEBDL	160°C et 260°C
Kalika et Denn, 1987	0,26	PEBDL	215°C
Lim et Schowalter, 1989	0,1	PB	25°C
Beaufils et <i>al.</i> , 1989	0,06 et 0,1	PEBDL	145°C et 205°C
Hatzikiriakos et Dealy, 1991	0,09	PEHD	180°C
Kurtz, 1991	0,14	PEBDL	190°C
Tzoganakis et <i>al.</i> , 1993	0,22	PEBDL	215°C et 230°C
El Kissi et <i>al.</i> , 1994	0,17	PEBDL	190°C
Pomar et <i>al.</i> , 1994	0,1 à 0,2	PEBDL	135°C
Hatzikiriakos et <i>al.</i> , 1995	0,18	PEBDL	200°C
Rosenbaum et <i>al.</i> , 1995	0,18	TFE-HFE	300°C et 350°C

b) Paramètres influençant l'apparition et le développement du défaut:

Plusieurs paramètres ont une influence sur le développement du défaut de type peau de requin. Ces paramètres se divisent en trois groupes: les paramètres moléculaires, les paramètres de l'écoulement et les paramètres géométriques.

Paramètres moléculaires :

- Le défaut est observé pour des polymères de distribution de masse étroite (Bergem, 1976 ; Cogswell, 1977) et est inexistant pour des distributions larges (Howells et Bendow, 1962 ; Weill, 1980 ; Lai et Knight, 1992).
- Une augmentation de la masse moléculaire aggrave l'amplitude du défaut (Cogswell, 1977 ; Beaufile et *al.*, 1989 ; El Kissi et Piau, 1990) et diminue sa fréquence (Kurtz, 1991).
- La contrainte critique d'apparition visuelle de l'instabilité est indépendante de la masse moléculaire (Ramamurthy, 1988 ; Kurtz, 1984 ; Lim et Schowalter, 1989).
- La structure physique a un effet important sur le développement et la nature du défaut (Venet, 1996). Par exemple, la mobilité des chaînes influence directement le comportement du polymère soumis à des contraintes élongationnelles.
- Le défaut apparaît à un taux de cisaillement plus faible lorsque la longueur des branchements augmente (étude réalisée avec le PEBDL) (Aji et *al.*, 1993).
- L'apparition du défaut dépend de la masse moléculaire minimale dans la distribution de masse du polymère (étude réalisée avec le PEBDL) (Aji et *al.*, 1993). Plus celle-ci augmente, plus le défaut est repoussé à un taux de cisaillement plus élevé.
- L'ajout d'additifs fluorés favorise le glissement à la paroi et repousse l'apparition du défaut à des taux de cisaillement élevés (Ramamurthy, 1998 ; Xing et Schreiber, 1996). Ces additifs migrent à la paroi et forment une couche lubrifiante. Un délai est donc nécessaire lors de l'ajout de l'additif pour qu'une quantité suffisante s'accumule à la paroi (Hatzikiriakos et Dealy, 1991, 1992a, 1992b). Ils sont généralement plus efficaces avec les surfaces d'énergie élevée et avec des polymères acides ou non-réactifs (Xing et *al.*, 1996 ; Xing et Schreiber, 1996).

Paramètres de l'écoulement :

- L'apparition du défaut est repoussée à des taux de cisaillement plus élevés lorsque la température augmente (Herrainen et Savolainen, 1984 ; Sornberger et *al.*, 1987 ; Beaufiles et *al.*, 1989 ; Venet, 1996) et l'amplitude du défaut à un cisaillement donné est plus faible lorsque la température est plus élevée (Cogswell, 1977 ; Kurtz, 1992 ; Venet, 1996). Cependant, la cinétique de développement reste la même (Beaufiles et *al.*, 1989 ; Venet, 1996). Barone et *al.* (1998) ont démontré que la période du défaut dépend uniquement du niveau de contrainte et de la température du polymère à la sortie.
- L'amplitude du défaut augmente avec le débit à partir d'un cisaillement critique (Beaufiles et *al.*, 1989 ; Kurtz, 1992 ; Venet, 1996), puis devient plus périodique (Agassant et *al.*, 1996 ; Venet, 1996).
- Les effets du débit sur la période du défaut ne sont pas clairs. Beaufiles et *al.* (1989) et Venet (1996) observent une augmentation de la période avec le débit alors que Kurtz (1991) observe une diminution.

Paramètres géométriques :

- Les résultats sur l'effet de la géométrie sont contradictoires. Tordella (1963) et Kurtz (1992) ont observé que la contrainte critique σ_{cl} est indépendante du diamètre. Certains auteurs trouvent que l'augmentation du rapport L/D repousse l'apparition du défaut à des débits plus élevés (Moynihan et *al.*, 1990) et en diminue l'amplitude (Lai et Knight, 1992 ; Hatzikiriakos et Dealy, 1994) ; d'autres observent exactement le contraire (Ballenger et *al.*, 1971 ; Constantin, 1984). Mais la majorité des travaux publiés démontrent que le rapport L/D n'a pas d'effet sur l'apparition du défaut (Tordella, 1969 ; Cook, 1989 ; Ramamurthy, 1989, Hatzikiriakos et Dealy, 1991 ; Kurtz, 1992 ; El Kissi et *al.*, 1994 ; Rosenbaum et *al.*, 1995 ; Venet, 1996).

- Les conditions pour lesquelles le défaut apparaît dépendent grandement de la forme et des dimensions de la filière près de la sortie (Piau et *al.*, 1990).
- Selon Kurtz (1984), l'apparition de la peau de requin dépend du niveau de contrainte du polymère transporté jusqu'à la sortie. Comme le stress est en grande partie généré à l'entrée de la filière, il faut que celle-ci soit **suffisamment longue** pour permettre au polymère de relaxer. Ainsi, la longueur de la filière aura une influence sur les conditions d'apparition du défaut (Larsson, 1992).
- Dans le cas des filières courtes, le niveau de stress à l'entrée est important. Ainsi, plus l'angle d'entrée est faible et plus le rapport de contraction est petit, moins le niveau de contrainte sera élevé et plus l'apparition du défaut sera repoussée à des débits plus élevés. Pour des filières longues, l'angle d'entrée n'a plus d'incidence sur l'apparition et le développement du défaut (Dennison, 1967 ; Tordella, 1969 ; Kurtz, 1984 ; Beaufils et *al.*, 1989 ; Ramamurthy, 1989 ; Wang et *al.*, 1992).
- Le type de matériau constituant la filière et la présence de lubrifiants ont suscité de larges débats. Il semble que ceux-ci aient une influence sur les conditions d'apparition du défaut (Ramamurthy, 1986 ; Moynihan et *al.*, 1990 ; Hatzikiriakos et Dealy, 1991, Barone et *al.*, 1998). Moynihan et *al.* (1990) ont entre autres démontré qu'un revêtement de Téflon dans la région de la sortie de la filière diminue le niveau de biréfringence en induisant un glissement à la paroi. Ceci a pour effet de réduire ou d'éliminer le défaut. Barone et *al.* (1998) ont également utilisé un revêtement à base de fluorocarbène à la sortie de la filière qui a eu pour effet d'éliminer le défaut.
- Une augmentation de la rugosité de la paroi abaisse le taux de cisaillement critique d'apparition du défaut (El Kissi et *al.*, 1994). Piau et *al.* (1995) ont également démontré qu'on pouvait repousser l'apparition du défaut en utilisant une filière dont la rugosité est faible et orientée dans le sens de l'écoulement.

c) Mécanismes:

Il est généralement accepté que le défaut de peau de requin soit un phénomène de sortie. Lorsque la filière est suffisamment longue, la géométrie de l'écoulement n'a aucune influence sur l'apparition du défaut. Plusieurs auteurs ont obtenu des résultats qui appuient cette hypothèse (El Kissi et Piau, 1990 ; Somberger et *al.*, 1987 ; Beaufile et *al.*, 1989 ; Piau et *al.*, 1995 ; Venet, 1996). Également, Vinogradov et *al.* (1972), Somberger et *al.* (1987) et Beaufile et *al.* (1989) observent aucune instabilité d'écoulement dans la filière pour des conditions d'apparition du défaut à partir de clichés de biréfringence. Beaufile et *al.* (1989) observent une augmentation du nombre de raies avec l'augmentation du débit, ce qui leur permettent de conclure que l'écoulement est laminaire sur la branche I de la courbe d'écoulement. De plus, Vinogradov (1972) remarque une concentration des franges de biréfringence près de la sortie et Piau et *al.* (1995) notent que ces franges ont un comportement pulsé dont la fréquence est identique à celle du défaut.

Il y a par contre un débat concernant le mécanisme à l'origine du défaut. Voici les principaux mécanismes qui ont été proposés :

- Rupture de pente de la courbe d'écoulement (Kurtz, 1984 ; Ramamurthy, 1986 ; Kalika et Denn, 1987 ; Hatzikiriakos et Dealy, 1991 ; Rosenbaum et *al.*, 1995). Cependant, Beaufile et *al.* (1989) et Venet (1996) ont démontré que le défaut apparaît pour une valeur de cisaillement plus faible.
- Une instabilité constitutive de l'écoulement à l'entrée du convergent (Oyanagi, 1973) ou le long de la filière (Weill, 1980 ; Tordella, 1963). D'autres auteurs ont également proposé que le défaut était relié à une instabilité constitutive reliée au comportement rhéologique du polymère (Petrie et Denn, 1976 ; McLeish, 1986 ;

Lin, 1985). La plupart de ces études sont basées sur la théorie de Doi-Edwards qui prévoit une courbe d'écoulement contrainte-cisaillement non-monotone.

- Perte d'adhérence polymère/métal et apparition d'un glissement à la paroi (Ramamurthy 1986,1988; Kalika et Denn, 1987). Il faut toutefois remarquer que des mesures directes de glissement (Den Otter, 1970 ; Atwood et Scowalter, 1989 ; El Kissi et Piau, 1990 ; Piau *et al.*, 1995 ; Lim et Schowalter, 1989) se sont toujours révélées négatives dans les zones d'écoulement à peau de requin. De plus, il a été démontré que ce défaut puisse être supprimé en rajoutant des additifs fluorés ou de faible masse moléculaire (Somberger *et al.* 1987 ; Nam, 1987 ; De Smedt et Nam, 1987 ; Rudin *et al.*,1990 ; Xing et Schreiber, 1996a et 1996b) ou en utilisant des parois de faible énergie de surface (Moynihan *et al.*, 1990 ; El Kissi *et al.*, 1994 ; Piau *et al.*, 1995 ; Hatzikiriakos *et al.*, 1995), deux solutions qui favorisent le glissement à la paroi. Certains auteurs considèrent tout de même un glissement près de la sortie où les contraintes élevées provoquent une perte d'adhésion (Vinogradov *et al.*, 1984 ; Leonov, 1984 ; Kurtz, 1994 ; Hatzikiriakos et Dealy, 1994). Barone *et al.* (1998) soutiennent que ce glissement/adhésion près de la sortie est dû à un phénomène d'enchevêtrement-désenchevêtrement des chaînes près de la paroi.
- Effets de cavitation créés par une pression hydrostatique négative dans une petite région de quelques microns près des parois de la sortie de la filière (Tremblay, 1991). Les bulles formées s'agrandissent puis il y a une coalescence de celles-ci pour former la surface caractéristique de la peau de requin. La raison pour laquelle il existe des conditions critiques à l'apparition de ce phénomène n'est cependant pas encore expliquée.
- Chen et Joseph (1992) ont proposé que le haut niveau de contrainte près des parois du capillaire pouvait causer une séparation du polymère et du solvant (ou des chaînes de haut poids moléculaire et de faible poids moléculaire). Le solvant (ou les chaînes de faible poids moléculaire) est alors concentré dans une mince couche près de la paroi. Ils ont démontré que le gradient d'élasticité « statification of elasticity » qui

accompagne la séparation pouvait mener à des instabilités hydrodynamiques de faible fréquence dans certaines circonstances. Ces instabilités peuvent se propager à la sortie de la filière et créer des distorsions à la surface. McLeish (1987), Aji et *al.*(1993) ainsi que Drda et Wang (1995) proposent également la formation d'une mince couche instable à la paroi.

- Considérer l'état des contraintes et le champ de vitesses dans l'extrudat à la sortie de filière (figure 3.5). La peau de l'extrudat subit, sur une courte distance, une accélération importante et des contraintes élongationnelles marquées, ce qui peut fracturer la peau à intervalle régulier lorsque la limite élongationnelle du polymère est atteinte, et donner naissance au défaut de peau de requin (Cogswell, 1977). Ce mécanisme est le plus largement admis (Howells et Bendow, 1962 ; Lim, 1971 ; Bergem, 1976 ; Herranen et Savolainen, 1984 ; Kurtz, 1984 ; Beaufile et *al.*, 1989 ; Moynihan et *al.*, 1990 ; Rudin et *al.*, 1990 ; Karbasheski et *al.*, 1991, Hatzikiriakos et Dealy, 1994). Cependant, Howells et Bendow (1962) n'excluent pas la possibilité d'un glissement lorsque le défaut est déjà développé. D'autres ont cependant démontré que le défaut ne peut en être la cause (El Kissi et Piau, 1990 ; El Kissi et *al.*, 1994 ; Hatzikiriakos et Dealy, 1994).

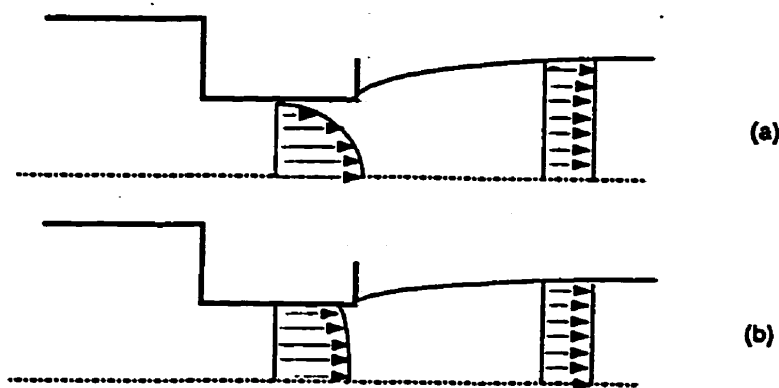


Figure 3.5 Réorganisation du profil de vitesse en sortie de filière; a) sans glissement; b) avec glissement (Agassant et *al.*, 1996).

- Le défaut est dû à l'apparition, près de la sortie, d'un cycle d'enchevêtrement-désenchevêtrement du polymère à la paroi qui fait osciller le gonflement de l'extrudat lorsque la contrainte atteint une valeur critique (Barone et *al.* 1998). Ils ont également relié la période du défaut avec le temps caractéristique de relaxation du polymère τ^* .

3.4.2 Le défaut de type oscillant

a) Présentation et conditions d'apparition :

Le défaut oscillant se présente comme une succession de zones lisses et de zones à peau de requin. Il est accompagné de fluctuations de la pression et du débit, d'où son nom de défaut oscillant.

L'apparition du défaut dépend du type de contrôle de l'écoulement (pression ou débit imposé). Selon le type de contrôle, l'écoulement se comportera de façon différente.

Pression imposée

Si l'écoulement du polymère est à pression imposée, on observe un cycle d'hystérésis autour de la zone instable (Bagley et *al.*, 1958; Sabia et Mullier, 1962; Tordella, 1963; Lupton et Regester, 1965; Myerholtz, 1967; Blyer et Hart, 1970). En effet, lorsque la pression croît, on parcourt d'abord la branche I jusqu'à une pression critique P_{c2} correspondant à la contrainte critique à la paroi σ_{c2} (figure 3.4). En augmentant davantage la pression, on observe un saut important du débit marquant le passage de la branche I à la branche II puis le débit continue d'augmenter le long de cette branche II. Lors du saut sur la

branche II, l'extrudat peut présenter diverses formes. Il peut être lisse, présenter le défaut hélicoïdal ou le défaut chaotique. Par la suite, si on diminue la pression, le débit diminue le long de la branche II jusqu'à ce que la pression atteigne une valeur critique P_{c3} (correspond à σ_{c3}), qui est inférieure à P_{c2} , et qui correspond au retour à la branche I avec une diminution importante du débit. Durand et *al.* (1993) décrivent l'écoulement du polymère dans la zone instable.

Ainsi, lorsque la pression est imposée, on n'observe pas d'oscillation du débit. L'écoulement à une pression fixe est stable, se situe soit sur la branche I ou sur la branche II et l'extrudat présente alors l'apparence qui correspond à celle retrouvée sur cette branche. Il n'y a donc pas de défaut de type oscillant.

Débit imposé

Lorsqu'on opère à débit imposé, l'écoulement est stable si le taux de cisaillement imposé est inférieur à $\dot{\gamma}_{c2}$ (écoulement le long de la branche I) ou supérieur à $\dot{\gamma}_{c3}$ (écoulement le long de la branche II). Cependant, si le **taux de cisaillement imposé se situe entre $\dot{\gamma}_{c2}$ et $\dot{\gamma}_{c3}$** , la pression et le débit oscillent et le défaut de type oscillant apparaît.

Durant le cycle d'oscillation, le polymère est compressé et décompressé périodiquement. Lorsque l'écoulement est sur la branche I, le débit à la sortie de la filière est inférieur au débit imposé de sorte que la pression et le débit augmentent le long de cette branche. Une fois la pression critique P_{c2} atteinte, le débit saute à la branche II et devient alors supérieur au débit imposé, causant ainsi une décompression du polymère. La pression et le débit diminuent alors le long de la branche II jusqu'à ce que la pression critique P_{c3} soit atteinte. Le débit ressaute ensuite sur la branche I et le cycle recommence.

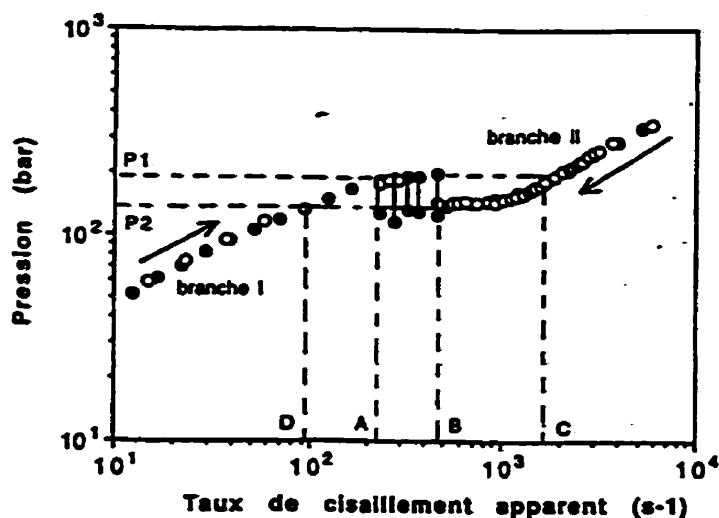


Figure 3.6 Courbe d'écoulement à deux branches d'un PEHD (160°C) (Agassant et *al.*, 1996).

Pendant ces oscillations, l'extrudat présente des alternances morphologiques correspondant à chacune de celles rencontrées sur les branches I et II, c'est-à-dire de la peau de requin qui s'amplifie le long de la branche I et une surface lisse mais distordue le long de la branche II. Bergem (1976) et Weill (1980) ont observé un troisième segment très lisse dans le cycle que Weill a appelé « plug ». Ce segment correspond au polymère qui se trouvait dans le capillaire au moment du saut de la branche I à la branche II. Ainsi, ce polymère a évité l'écoulement irrégulier à l'entrée de la filière qui survient lors du saut et qui cause la rupture du polymère, et a également évité le stress de sortie qui cause la peau de requin lorsque l'écoulement est sur la branche I.

Une deuxième zone oscillante, semblable à la première mais de plus faible amplitude est parfois observée à très fort cisaillement (Li et *al.*, 1986; Beaufils et *al.*, 1989 ; Hatzikiriakos et Dealy, 1992b). Il est difficile d'expliquer

la présence de cette deuxième zone instable. Une hypothèse proposée est que le premier saut marque une rupture de l'adhésion du polymère alors que le deuxième saut est dû à une décohésion du polymère (Hatzikiriakos et Dealy, 1992b).

Pudjianto et Denn (1994) ont observé un comportement particulier du PEBDL dans la zone oscillante. Ils ont découvert une plage de cisaillement comprise dans la zone oscillante pour laquelle l'écoulement se stabilise et l'extrudat présente un aspect relativement lisse. Selon eux, cette « île stable », qui existe pour une mince plage de températures, pourrait être reliée à une modification de la conformation des chaînes près de la paroi « mesophase transition » due aux contraintes élevées.

b) Paramètres influençant l'apparition et le développement du défaut:

Différents paramètres ont une influence sur l'apparition du défaut de type oscillant (contraintes critiques), sur l'ampleur de la zone oscillante ainsi que sur la période des oscillations. Voici les principales observations qui ont été rapportées dans la littérature jusqu'à présent:

Apparition du défaut oscillant:

Pour la plupart des auteurs, la contrainte critique à la paroi σ_{c2} (calculée à partir des corrections de Bagley) où l'écoulement saute de la branche I à la branche II se situe entre 0,2 et 0,5 MPa pour les polyéthylènes linéaires.

- Cette contrainte critique est indépendante de la masse moléculaire (Myerholtz, 1967 ; Blyer et Hart, 1970 ; Lyngaae-Jorgensen et

Marcher, 1985 ; Ramamurthy, 1986 ; Durand et *al.*, 1993). Cependant, Hatzikiriakos et Dealy (1992b) mesurent une augmentation de σ_{c2} et σ_{c3} avec la masse moléculaire et notent que la différence entre ces deux contraintes augmente également.

- Elle augmente avec la température (Ui et *al.*, 1964 ; Blyler et Hart, 1970 ; Weill, 1978 ; Uhland, 1979 ; Utracki et Gendron, 1984 ; Vinogradov et *al.*, 1984 ; Lyngaae-Jorgensen et Marcher, 1985 ; Hatzikiriakos et Dealy, 1992a).
- L'influence de la géométrie de la filière sur la contrainte σ_{c2} est controversée. Certains auteurs notent une augmentation de σ_{c2} avec le diamètre (Blyer et Hart, 1970), avec le rapport L/D (Hatzikiriakos et Dealy, 1992a) ou n'observent tout simplement pas d'effet (Eggen et Hinrichsen, 1996).
- La géométrie d'entrée n'a pas d'effet sur σ_{c2} mais modifie l'apparence de l'extrudat (Hatzikiriakos et Dealy, 1992a). Cependant, Eggen et Hinrichsen (1996) ont observé une diminution du taux de cisaillement critique lorsque l'angle d'entrée du convergent augmente.
- Elle est directement proportionnelle au travail d'adhésion à l'interface polymère/métal (Anastasiadis et Hatzikiriakos, 1998). Elle dépend donc du matériau à la paroi.

Le niveau de contrainte sur la branche II est quant à lui fortement influencé par le diamètre du capillaire mais est insensible à la masse moléculaire (Blyer et Hart, 1970 ; Lyngaae-Jorgensen et Marcher, 1985 ; Durand et *al.*, 1993). Par contre, Hatzikiriakos et Dealy (1992b) notent une augmentation de σ_{c3} avec la masse moléculaire. On rapporte aussi une insensibilité à la température (Uhland, 1979 ; Vinogradov et *al.*, 1984 ; Utracki et Gendron, 1984).

Ampleur de la zone oscillante:

L'ampleur de la zone oscillante représente l'amplitude des oscillations de pression et de débit. On considère que l'ampleur de la zone oscillante diminue si l'amplitude des oscillations (pression et/ou débit) diminue. On a encore une fois divisé les paramètres en trois catégories (paramètres moléculaires, paramètres de l'écoulement et paramètres géométriques).

Paramètres moléculaires:

- L'ampleur de la zone oscillante diminue avec la masse moléculaire et la polymolécularité du polymère. Pas la moindre discontinuité dans la courbe d'écoulement est observée pour des polymères monodisperses de faible masse moléculaire, (Sabia et Mullier, 1962 ; Vinogradov et *al.*, 1972a, 1984 ; Utracki et Gendron, 1984 ; Lim et Schowalter, 1989 ; Hatzikiriakos et Dealy, 1992a ; Durand et *al.*, 1993).

Paramètres de l'écoulement:

- L'ampleur de la zone oscillante diminue si la température augmente et le taux de cisaillement critique $\dot{\gamma}_{c2}$ est alors repoussé à des valeurs plus élevées (Ui et *al.*, 1964 ; Myerholtz, 1967 ; Torregrosa et *al.*, 1981 ; Utracki et Gendron, 1984 ; Venet, 1996). La zone oscillante se déplace alors vers des débits supérieurs (Weill, 1978 ; Vinogradov et *al.*, 1984, Lyngaae-Jorgensen et Marcher, 1985, Beaufils et *al.*, 1989).

Paramètres géométriques :

- On observe une diminution de la zone oscillante avec le rapport L/D (Ui et *al.*, 1964 ; Metzger et Hamilton, 1964 ; Den Otter, 1970 ; Ballenger et *al.*, 1971 ; Vinogradov et *al.*, 1972b ; El Kissi et Piau, 1990 ; Durand et *al.*, 1993) et elle peut même disparaître complètement pour une filière orifice (Venet, 1996).
- L'effet de l'angle du convergent d'entrée est controversé. Si l'angle semble avoir peu d'effet selon Den Otter (1970) et Uhland (1979), Eggen et Hinrichsen (1996) observent une diminution de l'amplitude de la pression avec l'angle d'entrée.
- La nature du matériau constituant la filière n'a aucune influence (Metzger et Hamilton, 1964 ; Ramamurthy, 1986) mais les surfaces de faible énergie permettent de supprimer la zone oscillante (Lim, 1971 ; Rudin et *al.*, 1990 ; Piau et *al.*, 1995).

Période d'oscillation:

La compressibilité du polymère influence directement son comportement dans la zone oscillante. Plusieurs auteurs notent que lorsque le réservoir se vide, l'amplitude des oscillations demeure constante mais la période tend à diminuer (Metzger et Hamilton, 1964 ; Lupton et Regester, 1965 ; Weill, 1980 ; Lyngaae-Jorgensen et Marcher, 1985 ; Kalika et Denn, 1987 ; El Kissi et *al.*, 1990 ; Hatzikiriakos et *al.*, 1992b ; Durand et *al.*, 1993). Ainsi, un polymère ayant un coefficient de compressibilité élevé présentera généralement une période d'oscillation plus grande. Par contre, la compressibilité est une condition nécessaire au développement du défaut mais n'est pas une condition suffisante car le PEBD est aussi compressible mais ne présente pas de défaut oscillant

(Utracki et Gendron, 1984). Pour Kalika (1987), la réadhesion du polymère ne se produit que lorsque tout le polymère concerné par le glissement a été expulsé hors de la filière. La période est donc de l'ordre du temps de parcours du fluide dans la filière.

D'autres facteurs peuvent également influencer la période d'oscillation :

- Le débit imposé influence la forme des oscillations (Myerholtz, 1967 ; Bergem, 1976 ; Okubo et Hori, 1980 ; Kalika et Denn, 1987). Lorsque le débit imposé est proche de l'extrémité de la branche I, on constate que le temps de montée en pression est très important et le temps de descente très court. Si le débit imposé augmente ($\dot{\gamma}_{imp}$ se rapproche de $\dot{\gamma}_{c3}$), la phase de montée en pression diminue au profit de celle de descente.
- La période d'oscillation augmente avec la masse moléculaire malgré le fait que la compressibilité est sensiblement la même. Ceci peut être dû au fait que l'écart entre σ_{c3} et σ_{c2} augmente avec la masse moléculaire (Hatzikiriakos et Dealy, 1992b).
- Hatzikiriakos et Dealy (1992b) notent une augmentation de la période avec le rapport L/D . En augmentant L/D , on augmente la pression et il y a donc plus de polymère compressé dans le réservoir. Le temps de compression et de décompression est donc plus long.

c) **Mécanismes :**

Comme il a été mentionné précédemment, les conditions d'écoulement sont très différentes sur chacune des branches. A partir des corrections de Bagley, on s'aperçoit que la perte de charge dans le capillaire semble devenir négligeable devant celle à l'entrée pour des conditions d'écoulement en branche II. Lors du saut de l'écoulement,

plusieurs auteurs décrivent des pulsations des clichés de biréfringence en amont de la filière qui peuvent être associées à des déchargements brusques dans la filière des zones périphériques du réservoir (Tordella, 1963 ; Ballenger et *al.*, 1971 ; Oyanagi, 1973 ; Brizitsky et *al.*, 1976 ; Arai, 1988 ; Beaufile et *al.*, 1989). En observant la déformation de couches de polymère colorées, Oyanagi (1973) note également une perte de symétrie des lignes d'écoulement dans le réservoir. Certains estiment que l'origine de ces perturbations se situe au niveau du réservoir, dans la zone d'entrée de la filière (Den Otter, 1971 ; Uhland, 1979 ; Arai, 1988 ; Brizitsky et *al.*, 1976 ; El Kissi, 1989 ; Oyanagi, 1973 ; Wang, 1993), alors que d'autres pensent que l'écoulement est d'abord perturbé le long des parois de la filière (Tordella, 1963 ; Bendow et Lamb, 1963).

Deux grandes théories sont présentement débattues pour expliquer les conditions particulières d'écoulement sur les deux branches et le développement du défaut de type oscillant : soient un phénomène de glissement/adhésion ou une instabilité constitutive résultant directement de la loi de comportement viscoélastique du matériau considéré.

Glissement/Adhésion:

L'hypothèse du glissement en paroi a été abordée à la section 3.2.2. Benbow et Lamb (1963) ont été les premiers à suggérer un phénomène de glissement/adhésion du polymère à la paroi. Par la suite, plusieurs auteurs ont soit utilisé la méthode de Mooney ou ont comparé les courbes d'écoulement en branche I et II pour déduire qu'il y avait un glissement très important en branche II (Ui et *al.*, 1964; Uhland, 1979; Utracki et Gendron, 1984; Kalika et Denn, 1987; Hatzikiriakos et Dealy, 1992a et b; Vergnes et *al.*, 1992). Contrairement à Den Otter (1970) qui n'avait observé aucun glissement, Lyngaae-Jorgensen et Marcher (1985) ainsi que El Kissi et Piau (1990) ont mis en évidence un glissement net en branche II en visualisant le mouvement de traceurs. D'autres auteurs ont mesuré des taux de transfert de chaleur à la paroi (Lim et

Schowalter, 1989; Atwood et Schowalter, 1989) et ont conclu que l'écoulement sur la branche II était près de l'écoulement bouchon ; ce qui renforce l'hypothèse du glissement. Le fait que l'on puisse supprimer la zone oscillante en utilisant des surfaces de faible énergie semble confirmer que le défaut soit dû à un glissement à la paroi.

Ainsi, selon ce mécanisme, lorsque la contrainte critique σ_{c2} est atteinte, le glissement du polymère à la paroi se généralise et le débit augmente rapidement jusqu'à la branche II. Ce glissement cause une fracture du polymère à l'entrée où les contraintes élongationnelles dépassent la limite d'élasticité du polymère (surtout dans le cas où la géométrie d'entrée est plate). Au fur et à mesure que la pression diminue le long de la branche II, les fractures à l'entrée deviennent moins sévères (Hatzikiriakos et Dealy, 1992a). Une fois la contrainte critique σ_{c3} atteinte, il y a adhésion du polymère à la paroi et l'écoulement retourne à la branche I.

L'effet hystérésis est dû au fait que le procédé de rupture et de rétablissement des liens entre le polymère et la paroi est un procédé d'activation; ce qui introduit le concept de temps de relaxation. Un certain temps est requis pour rétablir tous les liens qui ont été brisés. Hatzikiriakos et Dealy (1992a) ont estimé le temps de relaxation du PEHD à environ 20 secondes. Comme il a été mentionné, Kalika et Denn (1987) considèrent que la réadhésion ne se fait que lorsque tout le polymère concerné par le glissement a été expulsé hors de la filière. L'homogénéité du produit est très important ; une petite quantité de polymère avec un poids moléculaire légèrement différent peut initier le glissement/adhésion.

Instabilité constitutive:

D'autres auteurs ont proposé l'hypothèse selon laquelle le défaut oscillant serait causé par une instabilité constitutive, c'est-à-dire résultant directement de la loi de

comportement viscoélastique du matériau considéré. Pour les polymères flexibles, certaines lois de comportements viscoélastiques peuvent conduire, dans un écoulement de cisaillement simple, à une courbe d'écoulement non-monotone où il peut exister, dans une certaine plage de contraintes, plusieurs valeurs du taux de cisaillement pour une contrainte donnée. La section de la courbe d'écoulement comprise entre les deux contraintes critiques σ_{c2} et σ_{c3} aurait une pente négative, l'écoulement sur cette branche serait alors instable et donnerait naissance au défaut oscillant.

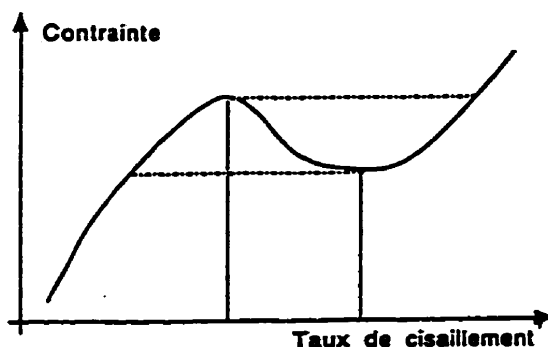


Figure 3.7 Courbe d'écoulement non-monotone (Agassant et *al.*, 1996).

Des modèles ont été développés et permettent d'obtenir une bonne estimation des paramètres critiques du défaut oscillant (Hunter et Slemrod, 1983; Mc Leish et Ball, 1986; Mc Leish, 1987; Kolka et *al.*, 1988; Malkus et *al.*, 1990; Deiber et Schowalter, 1991) mais ils traduisent difficilement l'influence des paramètres géométriques de l'écoulement.

L'hypothèse que le défaut oscillant soit dû à une instabilité constitutive est supportée par le fait qu'il survient, pour des polymères hautement enchevêtrés, à une valeur de S_R près de celle prédite par la théorie de Doi-Edwards (Doi et Edwards, 1979; Mc Leish et Ball, 1986; Deiber et Schowalter, 1991). Cependant, selon Hatzikiriakos et Dealy (1992b), la région non-monotone dans la courbe d'écoulement a été observée que pour des polymères ayant un très haut poids moléculaire avec une distribution très large.

Aucune évidence de la présence d'un maximum dans la courbe a été démontrée pour des polymères de poids moléculaire modéré et de distribution étroite ; ce qui porte à croire que les considérations rhéologiques ne peuvent à elles seules expliquer ce phénomène.

Autres mécanismes:

- Passage du polymère près de la paroi à un état de haute élasticité (Vinogradov et al., 1972). Au-delà d'un taux de cisaillement critique correspondant à la fréquence où apparaît, lors de mesures dynamiques, le plateau du module élastique, les enchevêtrements deviennent quasi permanents et le polymère en écoulement se comporte alors comme un solide élastique qui va glisser sur les parois de la filière. Cette hypothèse établit un lien entre les deux hypothèses précédentes.
- Glissement entre deux couches de polymère piégées en paroi (Blyler, 1970).
- Mécanisme d'enchevêtrement/déshenchevêtrement du réseau macromoléculaire en paroi (Bergem, 1976).

3.4.3 Le défaut de type chaotique

a) Présentation et conditions d'apparition

Le défaut chaotique survient à des taux de cisaillement très élevés. L'extrudat présente alors un aspect fort perturbé avec une variation du diamètre de plus de 10% et le débit est extrêmement irrégulier (figure 3.1d). Aux conditions d'apparition du défaut, on observe généralement, dans le cas des polymères sans longues chaînes ramifiées, un changement de pente de la courbe du débit en fonction de la perte de pression (Petrie et Denn, 1976; Kalika et Denn, 1987; El Kissi et Piau, 1990). Souvent, la courbe devient verticale (ou presque) lorsque le régime chaotique apparaît alors que pour l'apparition de la peau de requin, le changement de pente est très faible, s'il y en a un.

b) Mécanisme et paramètres influents

Il est généralement proposé dans la littérature que ce type d'instabilité soit développé à l'entrée de la filière et est en grande partie causé par de grandes déformations élongationnelles que subit le polymère à cet endroit, menant à un écoulement non-laminaire dans la filière (Cogswell, 1981; Piau et *al.*, 1990).

Les conditions d'écoulement menant à ce type de déformation ne sont pas très bien connues mais certains spéculent que cela soit, encore une fois, dû aux instabilités constitutives du polymère, c'est-à-dire à une relation contrainte de cisaillement vs taux de cisaillement qui présente une région non-monotone. Cette hypothèse est renforcée par le fait que les conditions d'apparition du défaut ne sont pratiquement pas affectées par le changement de matériau constituant la filière ou par la présence de lubrifiant qui ont pour effet de favoriser le glissement (Ramamurthy, 1986; Piau et *al.*, 1990; El Kissi et Piau, 1990).

Lorsque le défaut chaotique « melt fracture » survient, il affecte non seulement l'apparence de l'extrudat, mais également l'écoulement dans la filière à l'entrée de celle-ci (Petrie et Denn, 1976; Piau et *al.*, 1990). La région de la filière où le défaut prend naissance est incertaine. Certains soutiennent que le défaut est initié par des instabilités lors de la contraction du polymère à l'entrée et que celles-ci se propagent jusqu'à la sortie de la filière (Piau et *al.*, 1990); alors que d'autres prétendent que les instabilités à l'entrée sont le résultat et non la cause de l'apparition du défaut (Hatzikiriakos et Dealy, 1992b).

Cogswell (1972) a été le premier à essayer de se baser sur l'écoulement dans le convergent à l'entrée de la filière pour obtenir les propriétés élongationnelles du polymère. Il a proposé que le défaut chaotique « melt fracture » était le résultat d'une

saturation du polymère à subir des déformations élongationnelles lorsque le taux de déformation devient trop élevé. D'autres auteurs (Gibson, 1988; Binding, 1988; Binding et Walters., 1988; Tremblay, 1989; Bersted, 1993) ont, par la suite, raffiné ou dérivé les expressions de Cogswell. La plupart des modèles traitant de la perte de pression à l'entrée assument que deux modes de déformation contribuent à la perte de pression à l'entrée, soit la composante P_{Sent} due aux déformations de cisaillement et la composante P_{Eent} due aux déformations élongationnelles. Eggen et Hinrichsen (1996) ont démontré que la composante P_{Eent} augmente et que P_{Sent} diminue lorsque l'angle d'entrée du convergent augmente. En additionnant ces deux tendances, ils ont observé que la perte de pression totale à l'entrée atteint un minimum pour un angle d'entrée situé entre 20° et 30°.

Ainsi, en ayant un angle de convergent qui minimise la perte de pression à l'entrée (entre 20° et 30°) et en diminuant le taux de cisaillement, on réduit les risques de fracture du polymère à l'entrée.

3.5 Les défauts d'extrusion des polymères ramifiés

a) Présentation

Comme il a été mentionné à la section 3.3, cette famille de polymère inclut non seulement les polymères ramifiés comme le PEBD, mais également les polymères à fort encombrement stérique tels que le polystyrène et le polypropylène. Ces polymères présentent généralement une courbe d'écoulement qui, contrairement aux polymères flexibles linéaires, ne comporte pas de discontinuité (Den Otter, 1970 ; Vlachopoulos et Alam, 1972). L'apparition des défauts se fait généralement de façon progressive lorsqu'on augmente le taux de cisaillement. Les types de défauts observés sont des

défauts de volume (hélicoïdal, chaotique). Cependant, Tordella (1963) observe une rugosité de surface sur des polyéthylènes branchés qui se superpose au défaut de volume. Cette rugosité augmente avec une augmentation du diamètre, une diminution du rapport L/D et une augmentation de l'angle d'entrée. Rudin et *al.*(1990) ont également observé un aspect mat de la surface de l'extrudat.

Il est à noter que même à fort débit, on observe aucune oscillation de la pression. La courbe d'écoulement en pression est continue et ne présente un changement de pente que pour des écoulements au travers de capillaires de faibles longueurs (figure 3.8) (Den Otter, 1970). Ce changement de pente est dû à une discontinuité de la pression à l'entrée tel que noté par plusieurs auteurs (Tordella, 1958; Ui et *al.*, 1964; Den Otter, 1970; Han et Lamonte, 1971).

Les auteurs parlent souvent de défauts de forme hélicoïdal ou de « melt fracture ». Le paramètre critique d'apparition de ce défaut généralement employé est la contrainte à la paroi σ_c et le tableau suivant présente quelques résultats obtenus.

Tableau 3.2 Contraintes critiques d'apparition du défaut de type hélicoïdal.

Bartos (1964)	0,069-0,16	PP
Kamide et <i>al.</i> (1966)	0,11	PP
Dennison (1967)	0,1 à 1	plusieurs produits
Akay (1983)	0,13-0,2	PP
Herrainen et Savolainen (1984)	0,2	PEBD
Fujiyama et Kawasaki (1991)	0,13-0,2	PP
Kazatchkov et <i>al.</i> (1995)	0,12 à 0,15	PP
Baik et Tzoganakis (1998)	0,11-0,15	PP

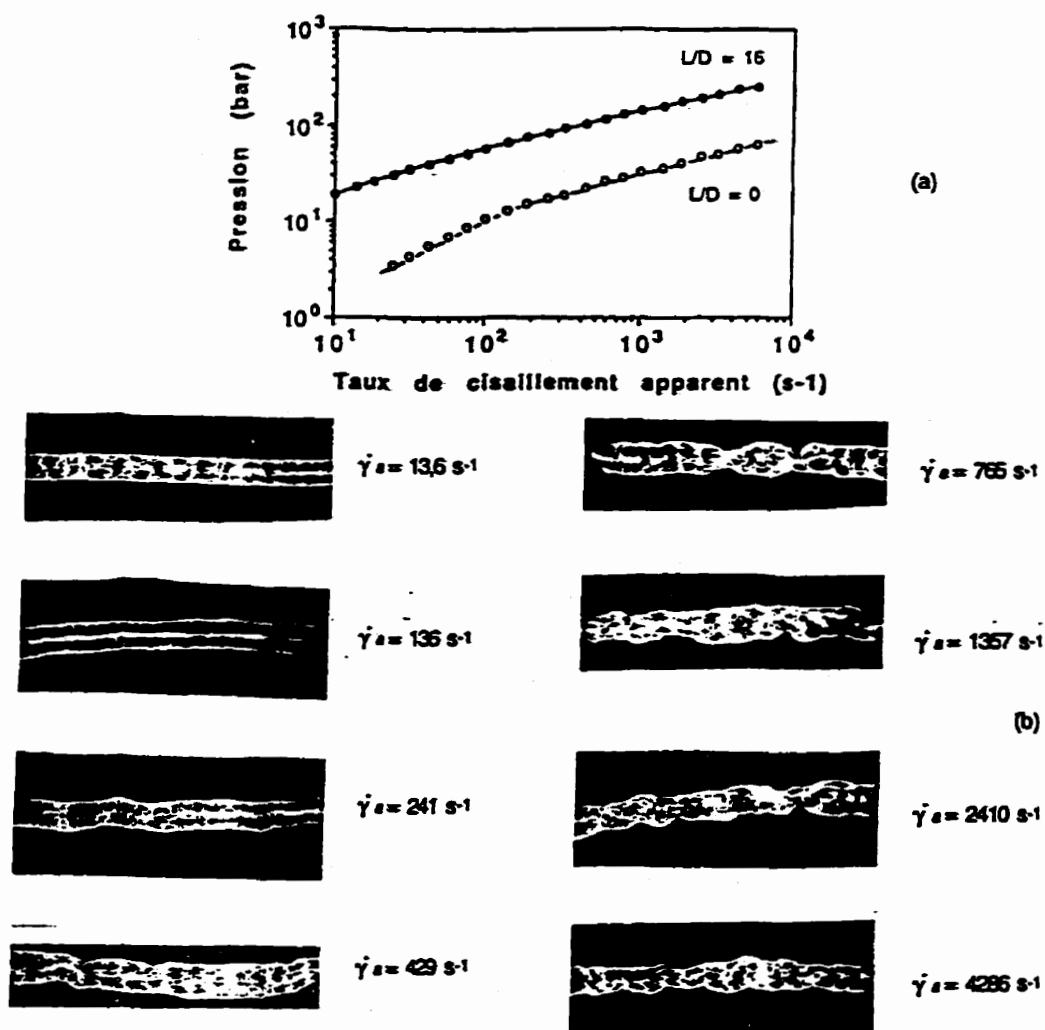


Figure 3.8 Courbe d'écoulement (a) et extrudats (b) correspondant au rapport $L/D=16$ (PEBD, 190°C) (Agassant et *al.*, 1996).

b) Mécanisme

La figure 3.9 présente les courbes typiques d'écoulement d'un polymère ramifié en contraintes corrigées (correction de Bagley) pour différents diamètres de capillaire. Ces courbes sont parfaitement continues et se superposent, ce qui exclut toute possibilité de glissement à la paroi. Cette absence de glissement peut aussi être mise en

évidence en utilisant la méthode de Mooney (Blyer et Hart, 1970; Kazatchkow et *al.*, 1995) ou en visualisant des traceurs injectés dans le polymère (Den Otter, 1970, 1971).

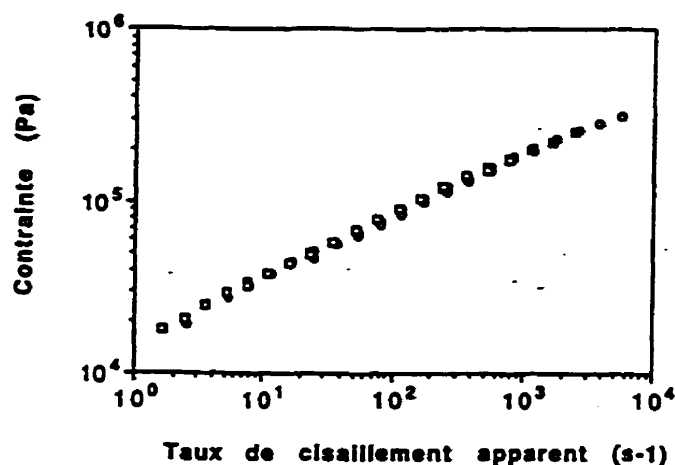


Figure 3.9 Courbe d'écoulement typique des polymères ramifiés en contrainte corrigée pour différents diamètres de capillaire. (PEBD, 175 °C, ◉: D=0,93 mm; ◻: D=1,39 mm; •: D=2 mm) (Agassant et *al.*, 1996).

Une différence fondamentale de comportement entre les polymères linéaires flexibles et les polymères ramifiés est que ces derniers donnent naissance à des zones de recirculation très importantes à l'entrée du convergent (figure 3.10) (White et Kondo, 1977). Tordella (1957) a observé l'écoulement du PE ramifié en suivant le mouvement de traceurs "hard" et "soft" formés en mélangeant du noir de carbone avec du PE de viscosité élevée et faible. À faible débit, il a observé un écoulement vers le centre des particules situées au dessus de l'entrée de la filière, et celles-ci se déplacent plus rapidement que celles situées près des parois du réservoir. À un débit plus élevé, les particules dans le centre convergent vers l'entrée de la filière alors que celles dans les coins semblent être prisonnières. À un débit critique, il y a fracture du polymère dans la

zone centrale ; ce qui permet au polymère dans la zone stagnante d'être évacué. La zone stagnante est ensuite reformée et le cycle recommence.

Dans un article publié en 1963, Tordella a comparé les clichés de biréfringence de polyéthylènes linéaires et ramifiés. Il a noté, pour ces derniers, un point maximum de biréfringence à l'entrée du capillaire qui commence à fluctuer lorsque le débit atteint une valeur critique. Le PE linéaire, quant à lui, ne présente pas ce maximum ; la biréfringence est uniforme le long du capillaire et parallèle aux parois de celui-ci. Cependant, à un débit critique, un maximum apparaît à l'entrée et les lignes de biréfringence se brisent. Il a donc conclu que pour le PE ramifié, la rupture du polymère est un phénomène d'entrée alors qu'elle survient dans le capillaire dans le cas du PE linéaire.

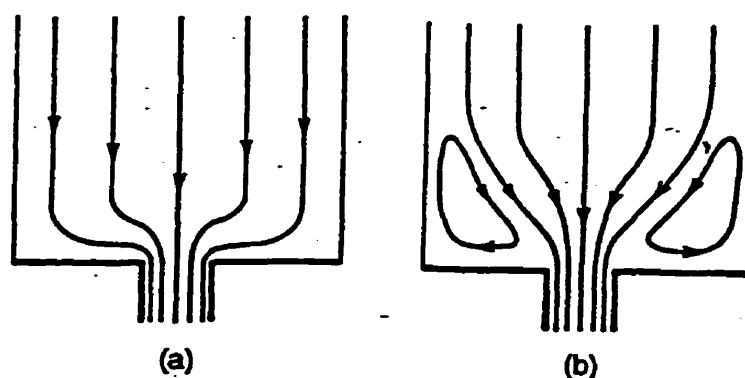


Figure 3.10 Écoulement à l'entrée du convergent ; (a) polymère linéaire, (b) polymère ramifié (Agassant et *al.*, 1996).

La figure 3.11 permet d'illustrer ces instabilités en comparant les clichés de biréfringence obtenus en filière plate pour un polystyrène en régime stable et en régime de défaut. On observe facilement la dissymétrie de l'écoulement à l'entrée lors de

l'apparition du défaut. Cette dissymétrie se propage ensuite dans le capillaire et perturbe l'écoulement dans celui-ci.

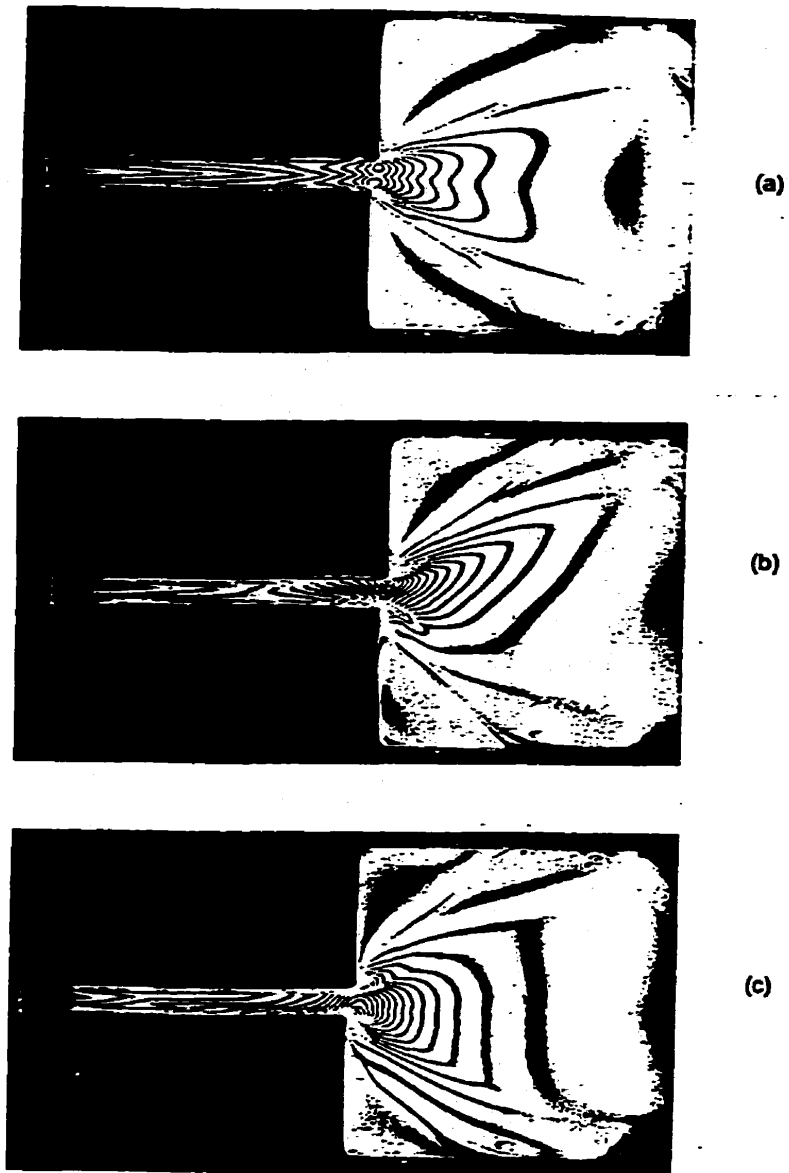


Figure 3.11 Clichés de biréfringence à l'entrée du convergent pour le polystyrène ; (a) régime stable, (b) et (c) régime instable (Agassant et *al.*, 1996).

Il est à noter que certains polymères présentent, lorsqu'ils sont extrudés au travers d'une filière cylindrique, un régime de rupture de forme régulière hélicoïdale de grande amplitude à l'entrée de la filière (Bendow et Lamb, 1963; Piau et *al.*, 1990; Vinogradov et *al.*, 1972). Lorsque le débit est augmenté, Tordella (1956) a observé que l'écoulement peut perdre sa symétrie. Un mouvement en spirale apparaît alors et l'extrudat présente le défaut hélicoïdal. Bergem (1976) a quant à lui utilisé des traceurs pour démontrer clairement que l'écoulement en forme de spirale à l'entrée de la filière est à l'origine du défaut hélicoïdal.

Ces instabilités d'écoulement à l'entrée de la filière peuvent parfois disparaître lorsque le débit est augmenté. Ballanger et *al.* (1971) a étudié l'écoulement du polypropylène et a noté que l'extrudat passe d'un aspect lisse, au défaut hélicoïdal, à un aspect lisse à nouveau, puis au défaut chaotique lorsque le taux de cisaillement est augmenté. Il a également démontré que le défaut hélicoïdal était dû à la formation d'un écoulement en spirale à l'entrée de la filière.

c) Paramètres influents

Un certain nombre d'auteurs utilisent la notion de contrainte critique d'apparition du défaut. Bien que la quantification de celle-ci soit difficile, certains paramètres semblent influencer la valeur de cette contrainte critique. On note d'abord qu'une augmentation de la masse moléculaire tend à diminuer la contrainte critique (Vlachopoulos et Alam, 1972), alors que la polymolécularité a pratiquement aucun effet (Vlachopoulos et Lidorikis, 1971). Les auteurs s'accordent également pour dire que la température a peu d'effet sur la contrainte critique (Ui et *al.*, 1964 ; Vlachopoulos et Lidorikis, 1971). Finalement, une filière plus longue permet d'atténuer significativement la gravité du défaut (Agassant et *al.*, 1996).

3.6 Résumé

De façon générale, on peut classer les défauts d'extrusion en deux grandes catégories, soient les défauts d'extrusion associés aux polymères flexibles linéaires (PEHD, PEBDL, etc.) et ceux associés aux polymères ramifiés ou à fort encombrement stérique (PEBD, PP, PS, etc.).

Les polymères flexibles linéaires ont une courbe d'écoulement qui comporte généralement deux branches stables séparées par une zone instable. Sur la première branche stable, l'extrudat est d'abord lisse à faible taux de cisaillement, puis, lorsque la contrainte à la paroi atteint la valeur critique σ_{cl} , de petites craquelures apparaissent à sa surface et s'intensifient (défaut de peau de requin). Lorsque l'écoulement est à débit imposé et que celui-ci se situe dans la zone instable, la pression et le débit à la sortie se mettent à osciller et l'extrudat présente une alternance morphologique correspondant à chacune de celles retrouvées sur les deux branches d'écoulement (segment à peau de requin et segment lisse). À très fort taux de cisaillement, l'écoulement devient extrêmement perturbé et l'extrudat est complètement distordu (défaut chaotique).

Le défaut de type peau de requin prend naissance à la sortie de la filière et est vraisemblablement dû à la rupture du polymère à la surface sous l'effet des contraintes élongationnelles locales ou à un phénomène de glissement/adhésion localisé à la sortie de la filière. Le défaut de type oscillant est, quant à lui, lié à la compressibilité du polymère dans le réservoir et est causé soit par un phénomène de glissement/adhésion du polymère à la paroi ou par une instabilité constitutive liée à la forme de la loi de comportement. Finalement, le défaut chaotique est celui qui donne à l'extrudat l'aspect le plus perturbé et est dû à une rupture du polymère à l'entrée sous des contraintes élongationnelles importantes.

Les polymères ramifiés ou à fort encombrement stérique ont une courbe d'écoulement continue qui ne comporte pas de zone d'instabilité. Les défauts de type hélicoïdal et chaotique apparaissent et s'amplifient au fur et à mesure que le taux de cisaillement augmente. Ces défauts sont causés par des instabilités d'écoulement à l'entrée qui surviennent à débit élevé et qui sont dus à la présence de zones de recirculation.

La nature, l'ampleur et les conditions d'apparition de ces défauts dépendent des paramètres moléculaires du polymère, des conditions d'opération et de la géométrie d'écoulement. Beaucoup d'études ont été menées sur le sujet jusqu'à présent mais plusieurs points demeurent en litige.

4. MATÉRIAUX UTILISÉS ET CARACTÉRISATION RHÉOLOGIQUE

Le comportement des polymères en écoulement est en grande partie régi par leur structure moléculaire. Comme il a été mentionné au chapitre précédent, la masse moléculaire et la polydispersité influencent l'apparition et le développement des défauts. Il est donc important d'étudier plus d'un polymère de la même famille pour vérifier la reproductivité des résultats et tirer des conclusions significatives. La section 4.1 présente les polymères étudiés dans ce projet, et les sections suivantes sont consacrées à la caractérisation rhéologique de ces polymères avec le rhéomètre à plaques parallèles CSM, l'extrudeuse monovis et le rhéoplast.

4.1 Matériaux utilisés

Après avoir vérifié la stabilité thermique des polymères disponibles au laboratoire (voir section 4.2.1) et avoir observé la nature des défauts d'extrusion qu'ils présentent, on a retenu deux PEHD et un PEBDL. Ces trois polymères (tableau 4.1) présentent de façon claire les défauts de type peau de requin et oscillant, tout en étant stables thermiquement. Un troisième PEHD (DMDC-6400 de Pétromont) a été retenu malgré le fait qu'il soit plus sensible à la dégradation, car il présente un comportement très particulier dans la zone oscillante, qui sera intéressant de caractériser.

Les mesures de densité, conductivité et chaleur spécifique de ces polymères sont présentées à l'annexe A.

Tableau 4.1 Polymères étudiés

PEHD	DOW	2027
PEHD	DOW	4352N
PEHD	PÉTROMONT	DMDC-6400
PEBDL	NOVACOR	49851

4.2 Rhéomètre à plaques parallèles CSM

Le rhéomètre à plaques parallèles CSM est utilisé pour mesurer la viscosité complexe η^* , le module élastique G' et le module de perte G'' à faible fréquence (0,02 à 188 rad/s). Pour ce faire, les trois étapes suivantes doivent être suivies: vérifier la stabilité thermique du polymère; déterminer le domaine de déformation linéaire; effectuer un balayage en fréquence. Le mode de fonctionnement du rhéomètre, la démarche expérimentale utilisée pour préparer les pastilles et les réglages nécessaires pour faire ces mesures sont présentés à l'annexe B.

Seuls les tests de dégradation et les mesures du module élastique et du module de perte (G' et G'') sont présentés dans cette section. Les mesures de viscosité (η^*) seront superposées aux résultats obtenus en extrusion à la section 4.3.

4.2.1 Mesure de la dégradation

La figure 4.1 présente l'évolution de la viscosité complexe (η^*) de chaque polymère en fonction du temps. La viscosité est exprimée en terme de pourcentage de la valeur initiale mesurée par le rhéomètre (η^*/η^*_{mi}) pour faciliter la comparaison entre

les polymères. La fréquence arbitraire imposée est de 1 Hz (6,3 rad/s), la température est maintenue à 207 °C (valeur maximale utilisée au cours des manipulations sur l'extrudeuse) et la déformation cible est fixée à 5%.

On observe une forte évolution de la viscosité complexe du PEHD DMDC-6400 dans le temps. Des additifs ont été ajoutés pour tenter de stabiliser le polymère, mais ceux-ci se sont avérés inefficaces. Étant donné que les mesures à faibles fréquences durent environ 400 s, la viscosité complexe de ce polymère ne pourra être mesurée avec le rhéomètre et on se limitera dans ce cas aux mesures faites en écoulement capillaire (Rhéoplast). Les trois autres polymères sont suffisamment stables pour que les mesures puissent être réalisées sans engendrer d'erreurs de mesure trop importantes.

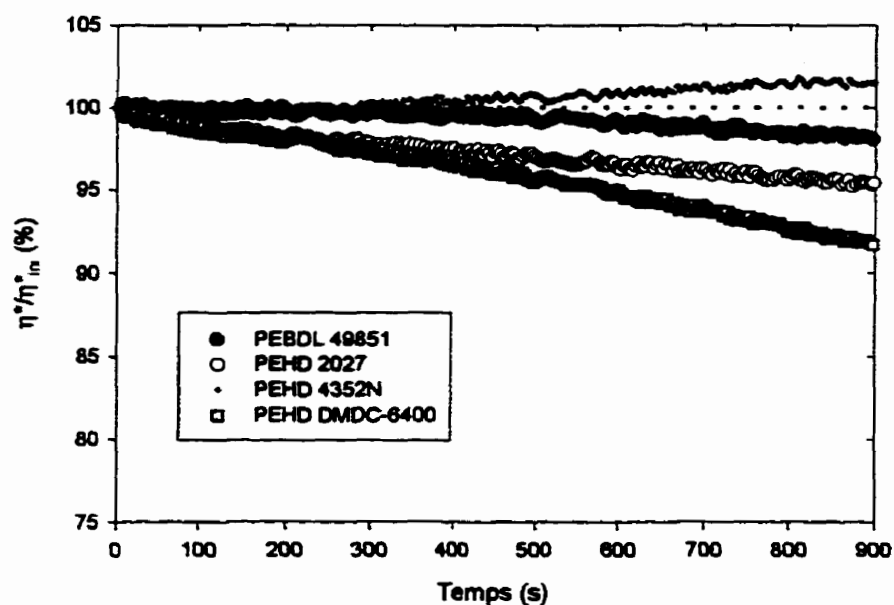


Figure 4.1 Test de dégradation des polymères; variation de la mesure de la viscosité complexe η^* en fonction du temps (rhéo. PP CSM, 207 °C, 1 Hz, déformation de 5%).

4.2.2 Module élastique et module de perte

Le module élastique G' et le module de perte G'' permettent de représenter le caractère viscoélastique du polymère. Lorsque le module de perte est plus grand que le module élastique, le caractère visqueux du polymère domine et les effets viscoélastiques doivent être considérés. Inversement, si le module élastique est beaucoup plus grand que le module de perte, le polymère se comporte principalement de façon élastique et les effets visqueux peuvent être négligés. La figure 4.2 présente l'évolution des modules G' et G'' du PEBDL 49851 avec la fréquence d'oscillation (les résultats des PEHD 2027 et 4352N sont à l'annexe B).

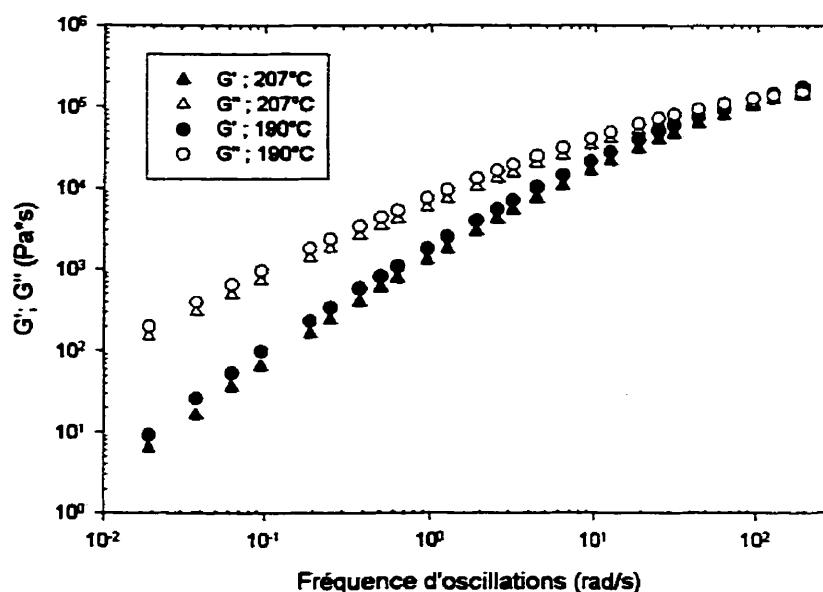


Figure 4.2 Module élastique et module de perte du PEBDL 49851 en fonction de la fréquence d'oscillation et de la température (déformation 5%).

À faible fréquence, le module de perte est supérieur au module élastique et les effets viscoélastiques sont alors importants. Cependant, plus la fréquence est grande, plus le module élastique prend de l'importance, et dépasse même le module de perte lorsque la fréquence est supérieure à 94 rad/s (à 190 °C). Selon Barone et *al.* (1998), le point d'intersection des deux modules permet de déterminer le temps de relaxation caractéristique τ^* du polymère qui est égale à la réciproque de la fréquence correspondante (ω^*). Ce temps de relaxation sera utile lors de l'analyse du défaut à peau de requin. Le tableau 4.2 présente les résultats obtenus pour les trois polymères.

Tableau 4.2 Temps de relaxation des polymères étudiés

PEBDL 49851	190	94±6	0,0106±0,0007
	207	132±7	0,0076±0,0004
PEHD 2027	190	625±150	0,0016±0,0004
PEHD 4352N	190	625±150	0,0016±0,0004

La valeur de τ^* calculée pour les PEHD est très imprécise car on doit extrapoler les courbes de G' et G'' pour déterminer le point d'intersection. Les résultats démontrent tout de même que le PEBDL a un temps de relaxation beaucoup plus grand que les deux PEHD. On remarque également que τ^* diminue lorsque la température augmente.

4.3 Extrusion

L'extrudeuse monovis a été utilisée pour faire les mesures de viscosité à haut taux de cisaillement du PEBDL 49851, et des PEHD 2027 et 4352N. Cet appareil permet de travailler à un débit beaucoup plus élevé que le rhéomètre capillaire et

maintient des conditions en amont de la filière, qui sont stables contrairement au rhéomètre dont le réservoir se vide en cours de mesure. Cependant, l'extrudeuse ne permet pas de fixer la pression ou le débit et ceux-ci doivent donc être mesurés simultanément. Le traitement des données est également plus long et les résultats sont moins précis. De plus, la température est beaucoup plus difficile à contrôler et une incertitude d'au moins deux degrés celsius doit être considérée. On a choisi tout de même d'utiliser l'extrudeuse car celle-ci correspond aux conditions réelles de cisaillement que subit le polymère en industrie.

La section 4.3.1 décrit la démarche suivie pour faire les mesures (montage expérimental, filières utilisées, conditions opératoires) et la section suivante présente les résultats obtenus.

4.3.1 Démarche expérimentale

a) Montage

Le montage expérimental est composé, en plus de l'extrudeuse, d'un mélangeur statique, d'un système de vannes, d'un réservoir et de la filière (figure 4.3). Le mélangeur statique permet d'homogénéiser la température. Le système de vannes permet de contrôler le débit sans modifier la vitesse de rotation de la vis (15 tr/min). On évite ainsi de modifier les conditions de cisaillement et de dégradation. Le réservoir permet d'augmenter le volume de polymère en amont de la filière et augmente ainsi la période des oscillations du défaut de type oscillant. C'est au niveau du réservoir que sont mesurées la pression (à la paroi) et la température du polymère fondu (au centre). La température est contrôlée à l'aide d'un système d'éléments chauffants et de thermocouples positionnés le long du fourreau, du mélangeur statique et de la filière.

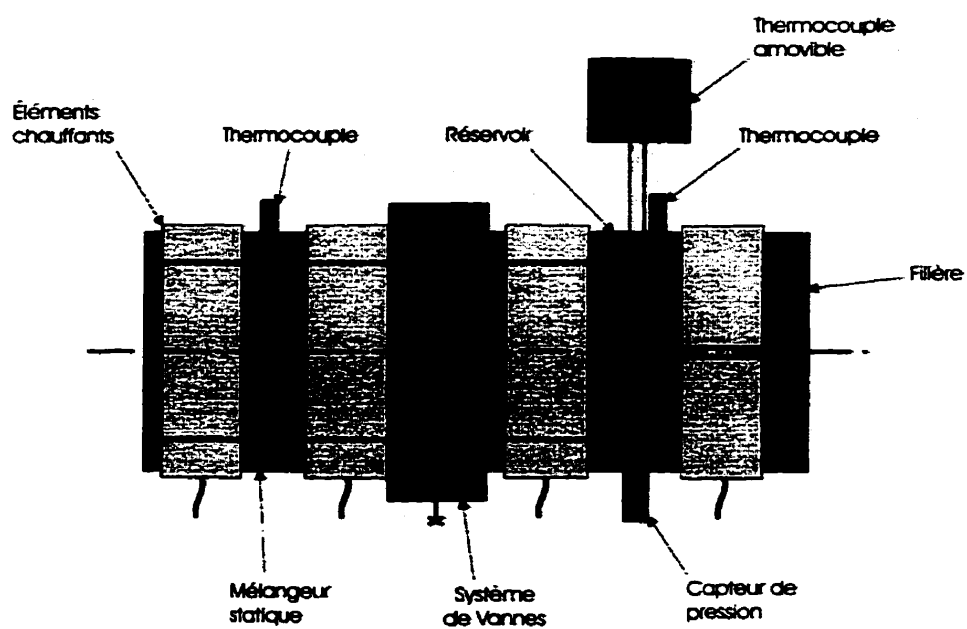


Figure 4.3 Schéma du montage expérimental (extrusion).

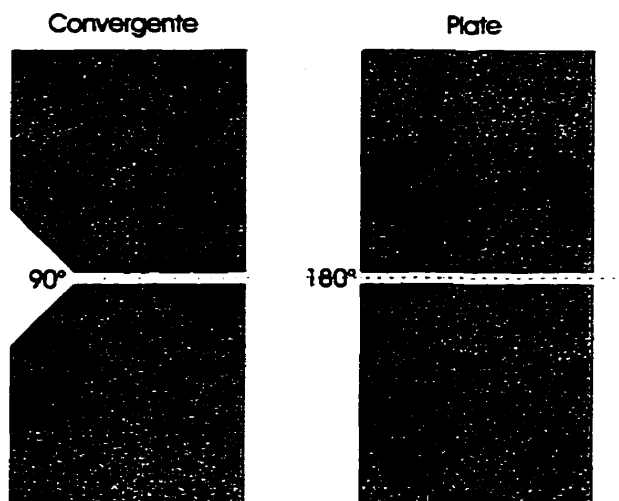


Figure 4.4 Schéma de la géométrie des filières.

b) Filières et conditions opératoires

Plusieurs filières en acier inoxydable de géométrie différente sont utilisées pour étudier l'effet de l'angle d'entrée (figure 4.4), du diamètre et du rapport longueur/diamètre sur l'apparition et le développement des défauts (tableau 4.3).

Tableau 4.3 Géométrie des filières utilisées.

90° (convergente)	1,6	0
		4
		8
		16
180° (plate)	1,6	8
		12
		16
	1,07	8
		12
		16

Au total, 18 expériences ont été menées sur l'extrudeuse, soit 12 avec le PEBDL 49851, trois avec le PEHD 2027 et les trois dernières avec le PEHD 4352N (tableau 4.4).

Un seule série de filières sera utilisée avec les deux PEHD, car ces expériences (13 à 18) ont pour but seulement de comparer l'allure général des défauts pour différents polymères.

La température a été fixée à 190 °C à l'exception des expériences 5 à 8 qui ont été menées à 207 °C.

Tableau 4.4 Résumé des expériences réalisées sur l'extrudeuse.

1	PEBDL 49851	90° (convergente)	1,6	190	0
2					4
3					8
4					16
5				207	0
6					4
7					8
8					16
9		180° (plate)	1,6	190	8
10					16
11			1,07	190	8
12					16
13	PEHD 2027	180° (plat)	1,07	190	8
14					12
15					16
16	PEHD 4352N	180° (plat)	1,07	190	8
17					12
18					16

Au moins trois filières de rapport L/D différent doivent être utilisées pour chaque polymère afin de corriger les effets de bouts et déterminer la courbe de viscosité.

c) Méthode

La démarche expérimentale consiste à mesurer la pression dans le réservoir en fonction du débit massique de polymère dans la filière. La pression est enregistrée sur

un ordinateur et le débit est mesuré en pesant la masse de polymère recueillie sur une période de 30 secondes. La pression et le débit massique permettent de mesurer la contrainte et le taux de cisaillement à la paroi tel que décrit à la section 3.2. On obtient ainsi la courbe d'écoulement du polymère ou la courbe de viscosité correspondante en divisant la contrainte par le taux de cisaillement.

Une attention particulière doit être portée à la température du polymère à l'entrée de la filière qui est très sensible à l'ouverture et la fermeture des vannes.

4.3.2 Courbes de viscosité

a) Correction des effets de bouts

La première étape de calcul consiste à déterminer la perte de pression associée aux effets de bouts ΔP_{end} , qui doit être soustraite à la pression mesurée dans le réservoir P_R , afin de calculer la contrainte de cisaillement réelle σ_c que subit le polymère à la paroi de la filière. Comme le démontre la figure 4.5, la méthode de Bagley telle que décrite au chapitre 3 comporte une grande incertitude.

Afin de contourner le problème, il est préférable de supposer que les effets de bouts suivent une loi de puissance en fonction du taux de cisaillement apparent (équation 4.1).

$$\Delta P_{end} = m(\dot{\gamma}_{app})^r \quad (4.1)$$

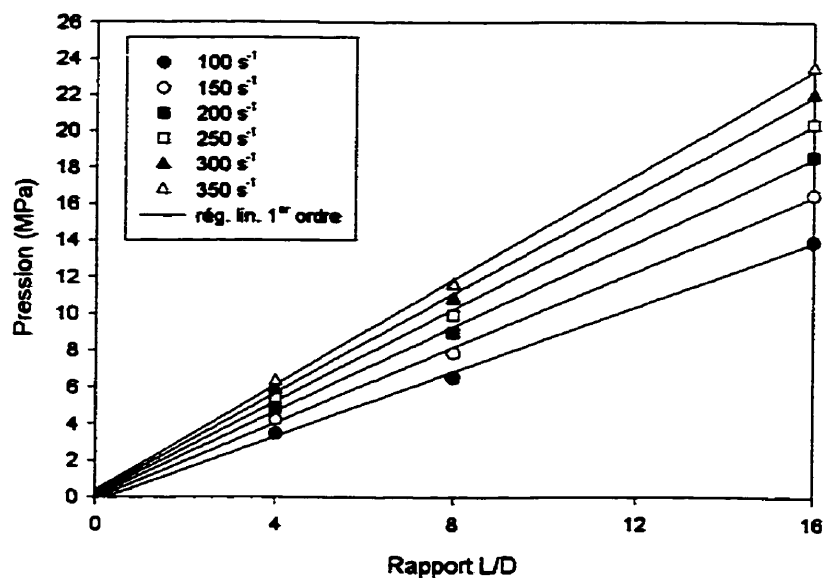


Figure 4.5 Correction d'entrée par la méthode de Bagley; pression dans le réservoir en fonction du rapport L/D de la filière (PEBDL 49851, 190 °C, 1,6 mm, convergente, branche I de la courbe d'écoulement).

L'indice n est posé comme étant égale à la pente de la droite obtenue en traçant la pression dans le réservoir P_R en fonction du cisaillement apparent $\dot{\gamma}_{app}$ en échelles log-log; et l'indice m est estimé de façon à ce que les courbes de viscosité obtenues avec des filières de rapport L/D différent se superposent. Cette méthode comporte une incertitude importante lorsque la fonction est extrapolée pour des valeurs de taux de cisaillement élevées mais donnent, dans ce cas-ci, des résultats plus satisfaisants que la méthode de Bagley.

La même méthode (loi de puissance) a été utilisée pour calculer la contrainte réelle pour un écoulement en branche II (après le défaut oscillant) et le tableau 4.5 résumant les paramètres n et m estimés pour chaque expérience.

Tableau 4.5 Paramètres n et m de la loi de puissance de la perte de pression à l'entrée de la filière en fonction du taux de cisaillement apparent.

I	PEBDL 49851	180°(plate)	190	1,07	0,448	4,92
				1,6	0,437	4,74
		90°(conv.)	190	1,6	0,463	4,53
			207	1,6	0,503	4,13
	PEHD 2027	180° (plate)	190	1,07	0,482	5,19
	PEHD 4352N	180° (plate)	190	1,07	0,490	4,00
II	PEBDI 49851	180° (plate)	190	1,07	0,410	5,26
				1,6	0,410	5,17
		90° (plate)	190	1,6	0,400	5,21
			207	1,6	0,420	5,05
	PEHD 2027	180° (plate)	190	1,07	0,482	4,60
	PEHD 4352N	180° (plate)	190	1,07	0,490	4,50

Les résultats démontrent que les effets de bouts diminuent lorsque le diamètre de la filière augmente (diminution du rapport de contraction) et lorsque la température augmente (diminution de la viscosité). Également, ces effets sont moins importants lorsque la filière est convergente.

b) Correction du caractère non-newtonien

En supposant qu'il n'y a pas de glissement pour un écoulement en branche I (avant l'apparition du défaut de type oscillant), l'analyse de Rabinovitsch a été appliquée pour calculer le taux de cisaillement réel à la paroi de la filière. L'hypothèse

du contact collant peut se justifier entre autres par le fait que les courbes de viscosité obtenues avec des filières de diamètre différent se superposent, ce qui correspond à un glissement nul selon la méthode de Mooney.

c) Modèle de comportement rhéologique

Le modèle utilisé pour représenter la viscosité en fonction du taux de cisaillement est celui de Carreau modifié par Yasuda (équation 4.2) en incluant l'effet de la température (équations 4.3 et 4.4).

$$\eta = \frac{\eta_o A(T)}{\left[1 + \left[\tau_o B(T) \dot{\gamma}^p\right]^{(1-n)/p}\right]} \quad (4.2)$$

$$A(T) = \exp\left[\left(E_1 / R\right)\left(1/T\right) - \left(1/T_R\right)\right] \quad (4.3)$$

$$B(T) = \exp\left[\left(E_2 / R\right)\left(1/T\right) - \left(1/T_R\right)\right] \quad (4.4)$$

où η_o représente le plateau de viscosité du polymère à bas taux de cisaillement, τ_o est le temps caractéristique, E_1 et E_2 sont les énergies d'activation, T_R est la température de référence, n et p sont des constantes propres à chaque polymère, et finalement R représente la constante des gaz parfaits. Le tableau 4.6 résume les paramètres du modèle pour chaque polymère.

Tableau 4.6 Paramètres du modèle de Carreau-Yasuda.

η_o	(Pa.s)	11620	2430	2476
τ_o	(s)	0,054	0,020	0,008
η	(-)	0,239	0,300	0,269
p	(-)	0,4875	0,6520	0,4740
E_1/R	(K)	3800	2900	2900
E_2/R	(K)	3833	3250	3250
T_R	(K)	463	463	463

d) Courbes maîtresses de viscosité

Les figures 4.6, 4.7 et 4.8 présentent la courbe maîtresse de viscosité à 190 °C du PEBDL 49851, du PEHD 2027 et du PEHD 4352N respectivement. Les mesures de viscosité complexe η^* effectuées avec le rhéomètre à plaques parallèle et celles faites avec l'extrudeuse ont été superposées en considérant la loi de Cox-Merx (équation 4.5).

$$\eta^*(\omega) = \eta(\dot{\gamma})_{\dot{\gamma}=\omega} \quad (4.5)$$

On observe dans l'ensemble une bonne continuité des mesures faites avec le rhéomètre et l'extrudeuse, ce qui démontre que les effets de bouts ont bien été corrigés et que la loi de Cox-Merx s'applique aux polymères étudiés.

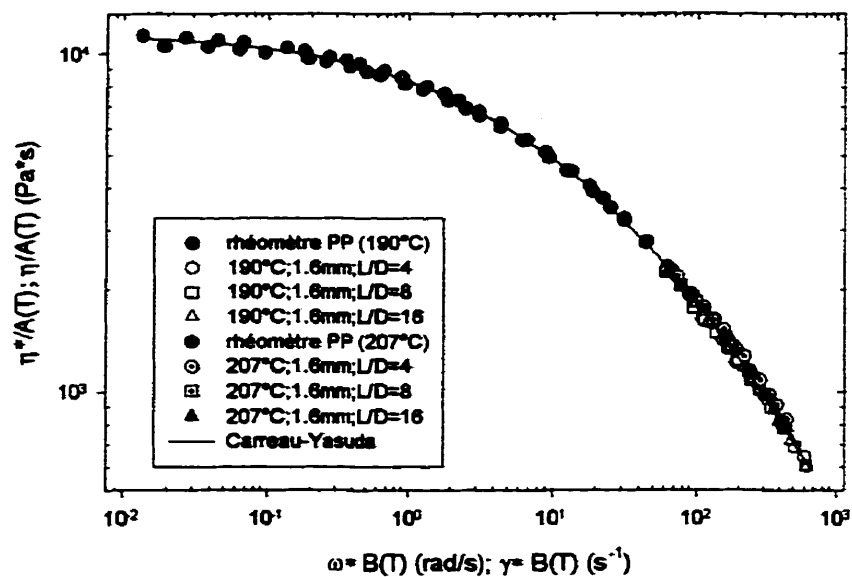


Figure 4.6 Courbe maîtresse de viscosité du polyéthylène basse densité linéaire (PEBDL) 49851.

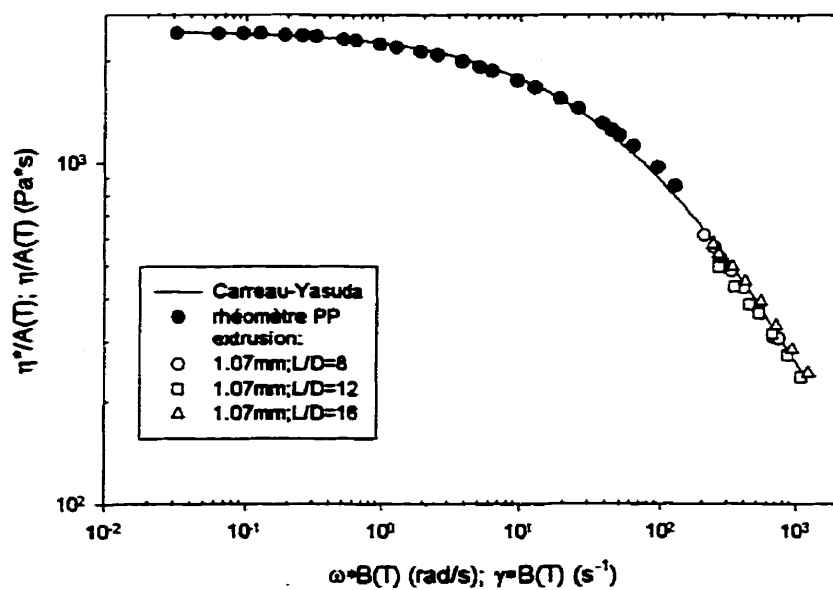


Figure 4.7 Courbe maîtresse de viscosité du polyéthylène haute densité (PEHD) 2027.

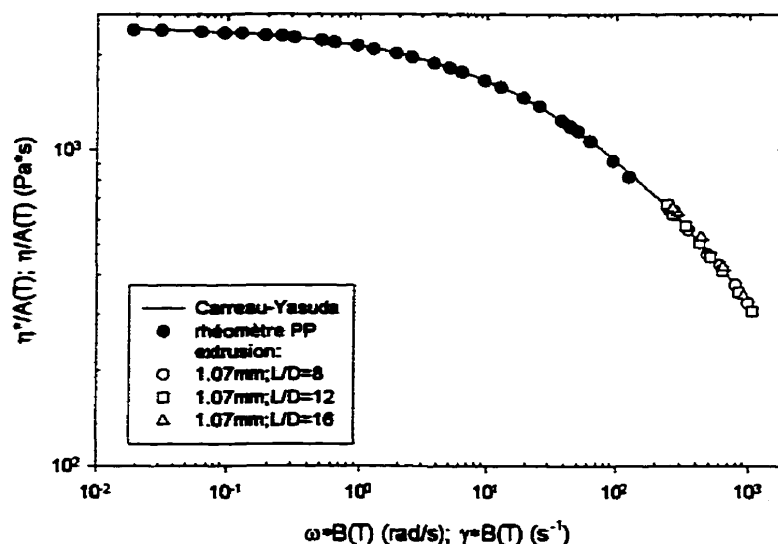


Figure 4.8 Courbe maîtresse de viscosité du polyéthylène haute densité (PEHD) 4352N.

Les mesures de viscosité du PEHD DMDC-6400 ont été menées sur un appareil nommé Rhéoplast et seront présentées à la section suivante.

4.4 Courbe de viscosité du PEHD DMDC-6400

Le PEHD DMDC-6400 a été caractérisé au Centre de Mise en Forme des Matériaux (CEMEF) de l'École des mines de Nice. L'appareil utilisé est un rhéomètre nommé Rhéoplast qui permet un pré-cisaillement de la matière avant qu'elle ne soit injectée dans le capillaire. Le mode de fonctionnement de l'appareil est décrit à l'annexe C.

Les mesures de viscosité ont été faites à deux températures (190 °C et 210 °C) avec deux séries de filières convergentes (90°) de diamètre différent (0.93 mm et 1.39 mm). Trois rapports L/D étaient disponibles pour chaque diamètre (4, 8 et 16).

Étant donné que les mesures de viscosité à faible cisaillement ne sont pas disponibles, on se limite à l'utilisation de loi de puissance (équation 4.6) pour caractériser le comportement rhéologique de ce polymère.

$$\eta = m \exp \left[\left(\frac{E}{R} \right) \left(\frac{1}{T} \right) - \left(\frac{1}{T_R} \right) \right] \dot{\gamma} \quad (4.6)$$

Après avoir corrigé les effets d'entrée et avoir appliqué la correction de Rabinovitsch, on obtient la courbe maîtresse de viscosité à 190 °C (figure 4.9).

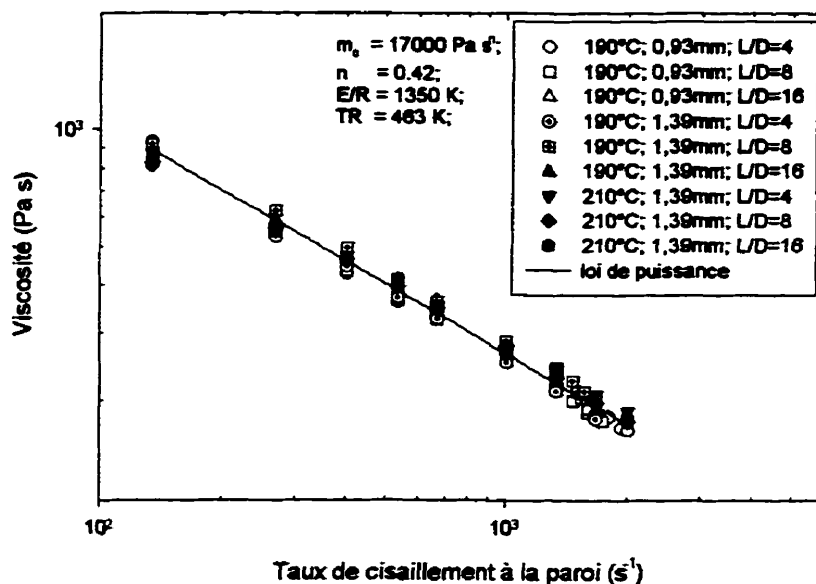


Figure 4.9 Courbe maîtresse de viscosité du polyéthylène haute densité (PEHD) DMDC-6400.

La section suivante sera consacrée à l'étude du défaut de type peau de requin que présentent trois de ces polymères.

5 ÉTUDE DU DÉFAUT DE TYPE PEAU DE REQUIN

Comme il a été mentionné au chapitre 2, le défaut de type peau de requin est généralement le premier à apparaître (pour les polyéthylènes) lorsque le débit d'extrusion est augmenté. De petites rides ou craquelures apparaissent à la surface de l'extrudat et gagnent de l'amplitude au fur et à mesure que le débit augmente.

Plusieurs études ont démontré que ce défaut est initié à la sortie de la filière où des contraintes élongationnelles s'ajoutent aux contraintes en cisaillement dû à la réorganisation du profil de vitesse. La plupart des auteurs (Sorngerger et al (1987), Beaufils et al. (1989), Piau et al. (1990), Moynihan et al. (1990)) proposent que le défaut est dû à une fracture du polymère à la surface de l'extrudat lorsque la contrainte à la paroi dépasse la limite d'élasticité de polymère. Cependant, Barone et al. (1998) ont récemment proposé que le défaut est dû à l'apparition, près de la sortie, d'un cycle d'enchevêtrement-désenchevêtrement du polymère à la paroi qui fait osciller le gonflement de l'extrudat lorsque la contrainte atteint une valeur critique. Ils ont également relié la période du défaut avec le temps caractéristique de relaxation du polymère τ^* .

Afin de faire le point sur ces deux mécanismes, ce chapitre présente une étude détaillée de l'évolution du défaut de type peau de requin en fonction de la géométrie d'écoulement et des conditions opératoires. La quantification du défaut est faite à l'aide d'un microscope électronique à balayage (MEB), et un laser est également utilisé pour mesurer la vitesse de l'extrudat à la sortie de la filière. Ces expériences ont pour but de cibler les paramètres qui ont une influence marquée sur le défaut, observer l'état de la surface de l'extrudat et vérifier la stabilité de l'écoulement. À partir des résultats obtenus, on discutera du mécanisme de formation du défaut.

La section 5.1 décrit la méthode expérimentale utilisée pour faire les mesures. Les observations générales sont présentées à la section 5.2. On y présente l'aspect général du défaut, les conditions critiques d'apparition et d'organisation, les mesures de vitesse ainsi qu'une étude du gonflement. La section 5.3 est consacrée à l'étude de l'effet des conditions opératoires sur l'apparition et le développement du défaut. Finalement, la section 5.4 présente un résumé des résultats obtenus.

5.1 Méthode expérimentale

Cette section présente d'abord les polymères qui ont été choisis pour étudier le défaut de type peau de requin. La méthode expérimentale utilisée pour réaliser l'étude est ensuite décrite à la section 5.1.2.

5.1.1 Choix des polymères

Parmi les polymères caractérisés (tableau 4.1), seul le PEHD DMDC-6400 ne présente pas le défaut de type peau de requin. Celui-ci présente par contre une instabilité semblable au défaut de type hélicoïdal qui sera étudiée à la section 6.4. Le PEBDL 49851 ainsi que les PEHD 2027 et 4352N présentent, quant à eux, le défaut de façon très apparente. L'étude est basée principalement sur les défauts du PEBDL. Les deux PEHD sont étudiés uniquement pour comparer les conditions critiques d'apparition et l'allure générale du défaut.

5.1.2 Méthode expérimentale

a) Conditions opératoires

L'influence des paramètres d'écoulement sur l'apparition et le développement du défaut est étudiée en utilisant les différentes filières disponibles au laboratoire (tableau 4.3). Les variables étudiées sont la géométrie d'entrée, le diamètre, le rapport L/D et la température. Avec 10 filières de géométrie différente disponibles, deux températures d'extrusion et trois polymères, un total de 60 expériences peuvent être réalisées. Les 14 expériences choisies sont résumées au tableau 5.1.

Tableau 5.1 Description des expériences réalisées sur l'extrudeuse monovis dans l'étude du défaut de type peau de requin.

1					0
2	PEBDL 49851	90° (conv.)	1,6	190	4
3					8
4					16
5					0
6		180° (plate)	1,6	207	4
7					8
8					16
9					8
10	PEHD 2027	180° (plate)	1,6	190	16
11					8
12		180° (plate)	1,07	190	16
13					16
14	PEHD 4352N	180° (plate)	1,07	190	16

b) Échantillonnage

Pour chaque expérience, des échantillons ont été recueillis et observés au microscope (MEB) pour déterminer les conditions critiques d'apparition du défaut, et pour mesurer l'évolution de la période et de l'amplitude avec la contrainte à la paroi (ou le taux de cisaillement correspondant).

Les échantillons sont recueillis à l'aide d'une tige métallique à la sortie de la filière et refroidis à l'air libre (figure 5.1). La région étudiée de l'échantillon a été choisie de façon à minimiser les risques de déformation du défaut, c'est-à-dire le plus loin possible de la tige où le polymère est étiré par sa masse et à au moins un centimètre de l'extrémité de l'échantillon où des déformations peuvent survenir lors de la coupe.

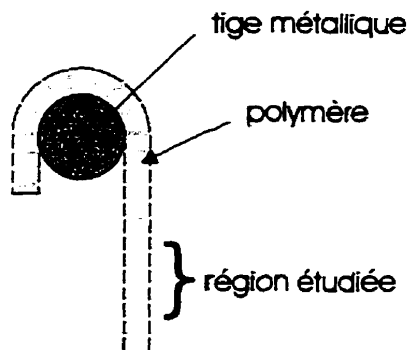


Figure 5.1 Méthode de récupération de l'échantillon à la sortie de la filière.

c) Quantification au MEB

Préparation de l'échantillon

Une fois solidifiée, la partie étudiée de l'échantillon est coupée puis fixée sur une plaque de cuivre à l'aide d'un ruban de cuivre adhésif et de colle de graphique.

Étant donné la faible conductivité des polymères, un dépôt d'or et de palladium est ensuite nécessaire pour obtenir une image claire au microscope. Le dépôt se fait sous vide à 50°C pendant une heure, puis l'échantillon est prêt à être observé au microscope.

Méthode de mesure

Les mesures effectuées sont l'amplitude et la période du défaut ainsi que le diamètre moyen de l'échantillon. Elles sont prises directement sur le moniteur à l'aide d'une règle à mesurer en utilisant l'échelle de grossissement affichée au bas de l'écran.

L'amplitude représente la distance radiale entre le creux et la crête du défaut. Elle est mesurée au bord de l'échantillon en maximisant le grossissement du défaut à l'écran pour obtenir une mesure précise. Plusieurs mesures sont effectuées et la moyenne est calculée. *La période* est mesurée en prenant la moyenne sur plusieurs crêtes consécutives (au moins cinq) de façon à obtenir une valeur représentative de l'ensemble du défaut. Finalement, *le diamètre* est estimé en incluant environ la moitié de la crête du défaut de chaque côté de l'échantillon afin d'obtenir une valeur moyenne.

Des photos sont également prises pour observer la forme du défaut. Le grossissement généralement choisi est de 100X ; ce qui permet de conserver une vue d'ensemble du défaut tout en permettant de visualiser les détails et l'état de la surface.

d) Mesure de vitesse

Un laser a également été utilisé pour certaines expériences afin de mesurer la vitesse de l'extrudat à la sortie de la filière et ainsi vérifier la stabilité de l'écoulement (figure 5.2). Un support métallique est utilisé pour maintenir l'extrudat dans l'axe de la filière. La mesure est effectuée à environ 0,5 cm de la sortie. Le mode de fonction du laser est présenté à l'annexe E.

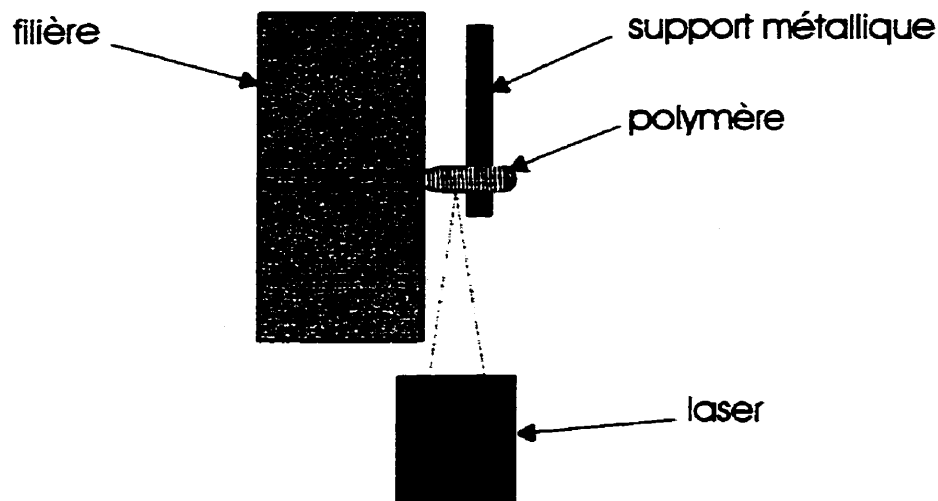


Figure 5.2 Mesure de la vitesse de l'extrudat ; vue de haut du montage expérimental.

La section suivante décrit le comportement général du polymère observé pour l'ensemble des expériences en présentant l'aspect du défaut, les critères d'apparition et le gonflement à la sortie. Le mécanisme de formation du défaut est également proposé à partir des résultats obtenus.

5.2 Observations générales

La section 5.2.1 présente l'évolution générale du défaut observée au microscope pour le polyéthylène basse densité linéaire et pour les polyéthylènes haute densité. Les conditions critiques d'apparition et d'organisation du défaut sont ensuite présentées à la section 5.2.2. Les mesures de vitesse de l'extrudat font l'objet de la section 5.2.3. La section 5.2.4 est ensuite consacrée à l'étude du gonflement de l'extrudat. Finalement, un mécanisme de formation du défaut est proposé à la section 5.2.5.

5.2.1 Aspect et évolution du défaut

Une analyse des échantillons au microscope a permis de suivre l'évolution du défaut avec la contrainte à la paroi. On présente d'abord l'évolution générale observée avec le PEBDL, puis on la compare avec celle observée avec les deux PEHD.

Polyéthylène basse densité linéaire

L'évolution du défaut du type peau de requin avec la contrainte à la paroi est sensiblement la même pour les 12 expériences réalisées avec le PEBDL. Les figures 5.3a à 5.3g permettent de suivre cette évolution en comparant les échantillons tirés de l'expérience #4 (PEBDL, 190 °C, $D=1,6$ mm, $L/D=16$, entrée convergente) pour différentes valeurs de la contrainte de cisaillement. Les photos sont toutes à un grossissement identique de 100X et le sens de l'écoulement est vers la droite. Ainsi, à une contrainte inférieure à 0,13 MPa, l'extrudat présente un aspect très lisse (figure 5.3a). Cependant, lorsque la contrainte à la paroi atteint cette valeur critique ($0,13 \pm 0,01$ MPa selon les conditions d'écoulement), de petites ondulations de moins de un micron d'amplitude apparaissent à la surface (figure 5.3b). D'abord désordonnées et invisibles à l'oeil nu, ces ondulations gagnent rapidement de l'amplitude (figure 5.3c) et adoptent une certaine périodicité à partir d'une contrainte d'environ 0,19 MPa ($\pm 0,02$ MPa). Elles se regroupent ensuite pour former des rides perpendiculaires au sens de l'écoulement (figure 5.3d) dont l'amplitude et la période continuent de progresser avec la contrainte (figure 5.3e à 5.3f), jusqu'à ce que le défaut de type oscillant survienne (figure 5.3g).

Ces photos permettent de faire des observations très significatives. D'abord, en observant attentivement l'aspect de la surface de l'extrudat (figure 5.3g), on remarque que le côté droit de la crête du défaut, qui est associé à une augmentation brusque du diamètre, est lisse, alors que le côté gauche, qui est associé à une diminution du

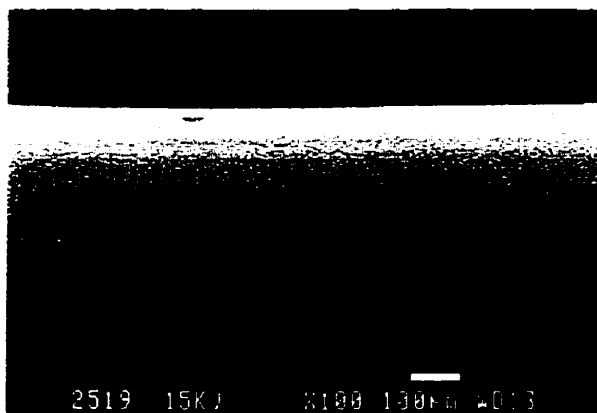
diamètre, est plus rugueux. L'aspect de la surface semble donc être différent selon que le diamètre augmente ou diminue. Cette observation met également en doute l'hypothèse que le défaut est dû à une fracture du polymère.

La figure 5.3g permet d'étudier le passage du défaut de type peau de requin au défaut de type oscillant. On s'aperçoit que le diamètre de l'extrudat lorsque le défaut de type oscillant apparaît correspond au sommet des crêtes du défaut de type peau de requin. De plus, l'extrudat présente alors une surface lisse identique à celle observée du côté droit des crêtes. Étant donné qu'il est généralement reconnu que le défaut de type oscillant est dû à un glissement du polymère à la paroi, ces observations visuelles permettent de croire que le défaut de type peau de requin pourrait être lui aussi dû à un phénomène de glissement/adhésion. Cette hypothèse s'approche donc davantage de celle de Barone et *al.* (1998) qui proposent eux aussi un phénomène oscillatoire à la paroi.

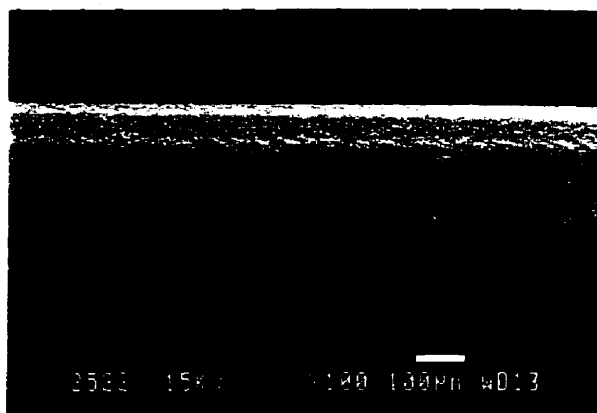
Polyéthylènes haute densité

Pour les deux polyéthylènes hautes densité (PEHD), l'évolution de l'aspect du défaut est semblable à celle observée avec le polyéthylène basse densité linéaire (PEBDL). On observe d'abord une surface lisse, puis de petites ondulations apparaissent, s'amplifient, et s'organisent avec une augmentation de la contrainte. La figure 5.4 présente l'aspect du défaut du PEHD 4352N à une contrainte de $0,42 \pm 0,01$ MPa (190 °C, $D=1,07$ mm, $L/D=16$, entrée plate).

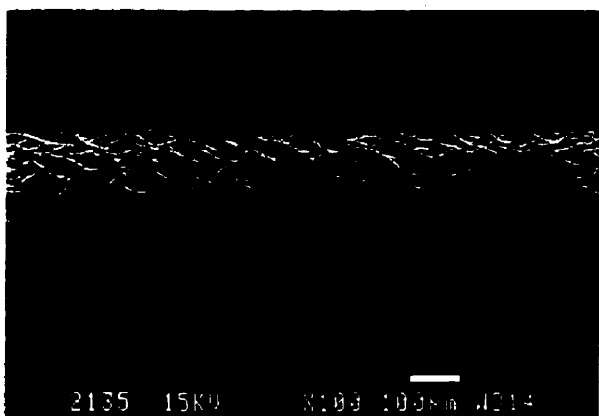
a)



b)



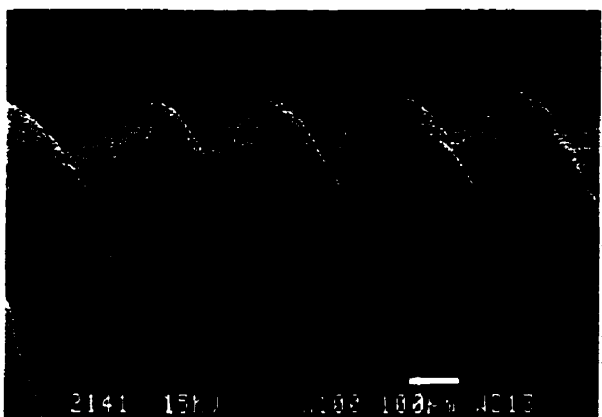
c)



d)



e)



f)



g)

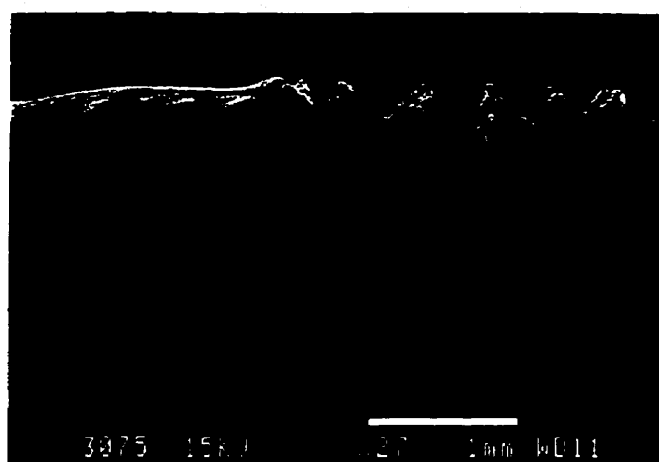


Figure 5.3 Évolution de l'aspect du défaut de type peau de requin en fonction de la contrainte de cisaillement corrigée à la paroi (PEBDL, 190 °C, $D=1,6$ mm, $L/D=16$, entrée convergente) (a) 0,11 MPa; b) 0,12 MPa; c) 0,16 MPa; d) 0,23 MPa; e) 0,28 MPa; f) 0,35 MPa; g) 0,38 MPa).

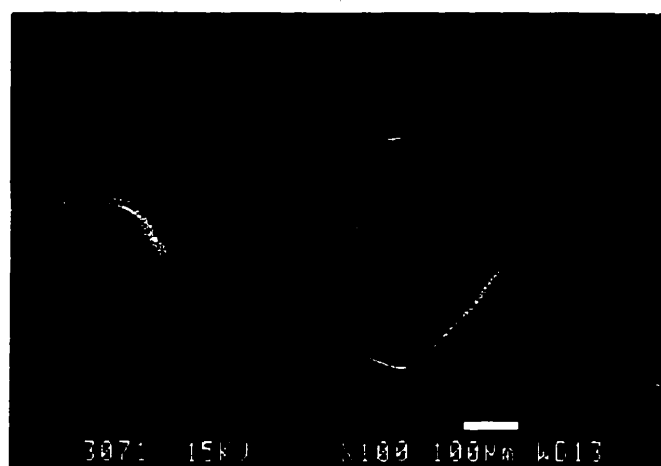


Figure 5.4 Aspect du défaut de type peau de requin (PEHD 4352N, 190 °C, $D=1,07$ mm, $L/D=16$, entrée plate, 0,42 MPa).

On remarque que le défaut n'est pas aussi bien défini qu'avec le PEBDL. Le passage du creux à la crête du défaut est moins abrupte et on observe pas vraiment de changement de l'état de la surface. Cette différence peut être due à la présence d'additifs dans le polymère qui modifient les conditions d'écoulement à la paroi. Par exemple, il a été démontré que certains additifs fluorés peuvent migrer à la paroi pour former une couche lubrifiante qui favorise le glissement (Xing et Schreiber, 1996). La faible viscosité des PEHD comparativement à celle du PEBDL peut également influencer la formation du défaut. En effet, pour une même contrainte à la paroi, le taux de cisaillement est beaucoup plus élevé avec les deux PEHD. Les chaînes de polymère risquent donc d'être orientées davantage dans le sens de l'écoulement et il est possible que cette orientation modifie le comportement en élongation du polymère. Également, le taux de cisaillement élevé peut favoriser le glissement entre des couches de polymère plutôt qu'un glissement à la paroi comme cela semble être le cas avec le PEBDL. Ceci expliquerait le fait qu'il n'y a pas de changement d'état de la surface. Cette hypothèse peut être vérifiée en répétant les mesures avec des filières de rugosité différentes. La rugosité de la filière devrait avoir un effet important sur le défaut seulement si le glissement survient entre le polymère et la paroi.

Les contraintes d'apparition $\sigma_c(A)$ et d'organisation $\sigma_c(T)$ du défaut mesurées pour le PEHD 2027 sont semblables à celles mesurées avec le PEBDL, soient $0,13 \pm 0,01$ et $0,19 \pm 0,02$ MPa. Cependant, avec le PEHD 4352N, l'apparition est repoussé à une contrainte plus élevée (environ 0,18 MPa). Il est possible que cette différence soit due à la structure moléculaire des polymères. Aji et *al.*, 1993 ont noté que le défaut apparaît à un taux de cisaillement plus élevé lorsque la longueur des branchements diminue (étude réalisée avec le PEBDL). Ils ont également observé que l'apparition du défaut dépend de la masse moléculaire minimale dans la distribution de masse du polymère. Plus celle-ci augmente, plus le défaut est repoussé à un taux de cisaillement plus élevé.

Les figures 5.5a et 5.5b comparent l'évolution de l'amplitude et de la période du défaut en fonction de la contrainte pour les trois polymères étudiés.

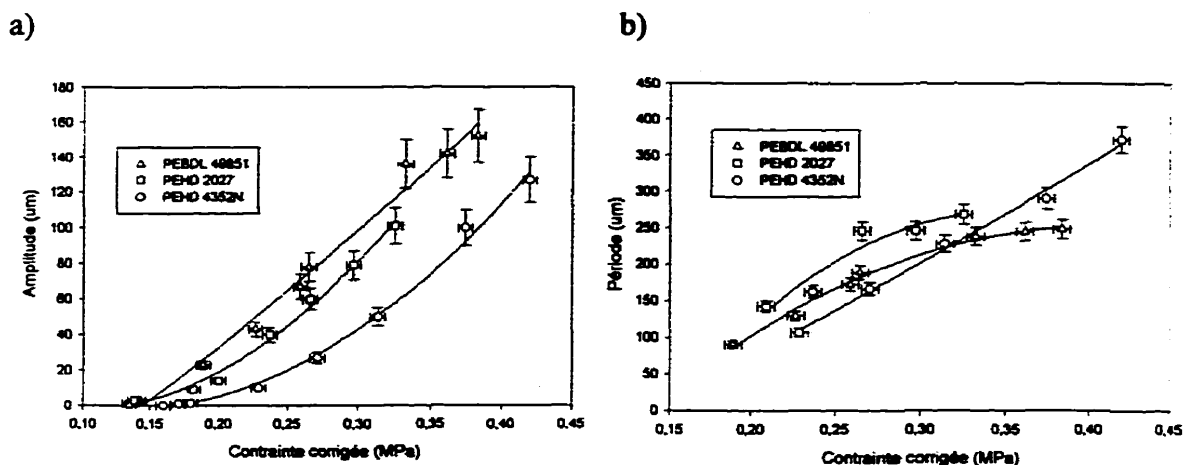


Figure 5.5 Évolution du défaut en fonction de la contrainte de cisaillement à la paroi; comparaison des polymères PEBDL 49851, PEHD 2027 et PEHD 4352N (190 °C, $D=1,07$ mm, $L/D=16$, entrée plate).

À une contrainte donnée, le PEBDL présente le défaut le plus gros tandis que le PEHD 4352N présente le défaut le plus petit (figure 5.5a).

En observant la figure 5.5b, on constate que le PEBDL et le PEHD 2027 présentent une évolution similaire de la période avec la contrainte, c'est-à-dire une augmentation rapide qui tend vers un plateau de 250 μm à 275 μm . Par contre, pour le PEHD 4352N, la période augmente continuellement avec la contrainte.

Ces différences de comportement entre ces trois polymères sont difficiles à expliquer, car on ne connaît pas leur structure moléculaire. On verra cependant à la section 5.2.3 que la différence de gonflement de ces polymères peut, en partie, expliquer les résultats obtenus.

5.2.2 Conditions critiques d'apparition et d'organisation du défaut

Le tableau 5.2 résume, pour chaque expérience réalisée, les contraintes corrigées à la paroi et les taux de cisaillement apparents qui correspondent à l'apparition des ondulations à la surface de l'extrudat ($\sigma_c (A)$ et $\dot{\gamma}_c (A)$), ainsi qu'au début de l'organisation du défaut ($\sigma_c (T)$ et $\dot{\gamma}_c (T)$).

Tableau 5.2 Contraintes (corrigées) et taux de cisaillement (apparents) critiques d'apparition et d'organisation du défaut de type peau de requin.

1	PEBDL 49851	90°	190	1,6	0	---	45±5	---	88±24
2					4	0,118±0,010	56±5	0,198±0,018	131±8
3					8	0,130±0,010	56±5	0,203±0,019	140±8
4					16	0,121±0,010	50±5	0,194±0,032	114±7
5			207	1,6	0	---	50±5	---	110±24
6					4	0,118±0,010	80±6	0,218±0,018	189±10
7					8	0,142±0,010	66±5	0,186±0,026	147±9
8					16	0,143±0,010	90±6	0,213±0,013	190±10
9		180°	190	1,6	8	0,118±0,010	53±5	0,172±0,025	98±7
10					16	0,121±0,010	62±5	0,179±0,027	110±7
11				1,07	8	0,125±0,010	88±13	0,211±0,028	168±17
12					16	0,136±0,010	60±12	0,166±0,024	90±14
13	PEHD 2027	180°	190	1,07	16	0,129±0,010	236±17	0,200±0,029	472±26
14	PEHD 4352N	180°	190	1,07	16	0,178±0,010	263±19	0,196±0,014	349±22

On remarque que les taux de cisaillement critiques $\dot{\gamma}_c(A)$ $\dot{\gamma}_c(T)$ augmentent avec la température et sont beaucoup plus élevés avec les deux PEHD (exp. #13 et 14), contrairement aux contraintes $\sigma_c(A)$ et $\sigma_c(T)$ qui varient peu d'une expérience à l'autre. Ces résultats démontrent que l'apparition et le développement du défaut sont contrôlés principalement par la contrainte à la paroi. L'apparition du défaut survient généralement à une contrainte comprise entre 0,12 MPa et 0,14 MPa selon les conditions d'écoulement, et il adopte une périodicité à partir d'une contrainte comprise entre 0,17 et 0,21 MPa. L'expérience #14 réalisée avec le PEHD 4352N fait cependant exception avec une contrainte d'apparition d'environ 0,18 MPa. L'effet des conditions d'écoulement sur ces contraintes critiques est discuté plus en détails à la section 5.3.

Certains auteurs (Tordella, 1969; Petrie et Denn, 1976; Boudreaux et Cuculo, 1978) considèrent que l'apparition du défaut peut être relié à la valeur de cisaillement recouvrable S_R du polymère. Connaissant les valeurs de η_o et τ^* , les valeurs moyennes de S_R correspondantes aux contraintes critiques d'apparition du défaut sont les suivantes (tableau 5.3).

Tableau 5.3 Cisaillement recouvrable critique correspondant à l'apparition du défaut de type peau de requin.

PEBDL 49851	190	11620	0,0106±0,0007	0,11±0,02
	207	8690	0,0076±0,0004	0,12±0,02
PEHD 2027	190	2430	0,0016±0,0004	0,12±0,04
PEHD4352N	190	2480	0,0016±0,0004	0,08±0,03

Les résultats démontrent que le cisaillement recouvrable est du même ordre de grandeur pour les trois polymères lors de l'apparition du défaut. Cependant, les

incertitudes sont trop grandes pour qu'on puisse tirer une conclusion définitive sur le rôle qu'il peut jouer dans la formation du défaut.

La section suivante présente une étude du gonflement de l'extrudat à la sortie de la filière. Celui-ci peut influencer la formation du défaut et il est important de bien le quantifier.

5.2.3 Gonflement de l'extrudat

Le gonflement de l'extrudat à la sortie de la filière induit des contraintes élongationnelles qui influencent l'apparition et le développement du défaut. Afin de pouvoir discuter de l'apport de ces contraintes sur le défaut, on a mesuré le diamètre de chacun des échantillons à l'état solide pour déterminer un taux de gonflement ($D_{\text{extrudat}}/D_{\text{filière}}$). La figure 5.6 présente, pour chacune des expériences réalisées avec le PEBDL, l'évolution du taux de gonflement avec le temps de séjour dans la filière.

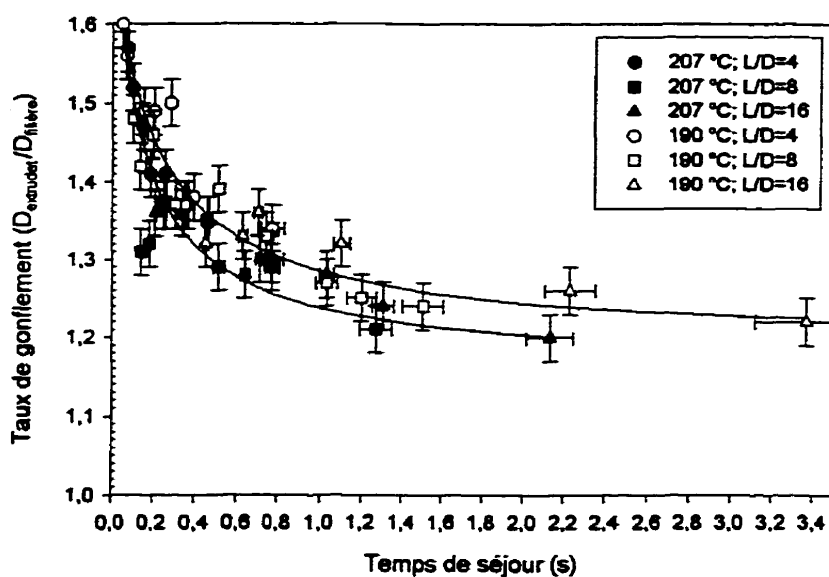


Figure 5.6 Gonflement de l'extrudat en fonction du temps de séjour dans la filière (PEBDL).

Compte tenu des incertitudes, on observe peu de différence de gonflement d'une expérience à l'autre. Celui-ci chute rapidement avec une augmentation du temps de séjour, puis se stabilise à une valeur d'environ 1,2. Pour un même temps de séjour, le gonflement diminue légèrement avec une hausse de température et avec un diamètre plus grand. Ces effets de la température et du diamètre sont dus en partie à une diminution de l'importance des déformations élongationnelles à l'entrée de la filière.

La figure 5.7 permet de comparer le gonflement des trois polymères étudiés. La même filière est utilisée pour les trois expériences ($D=1,07$ mm, $L/D=16$, entrée plate), et la température est de 190 °C.

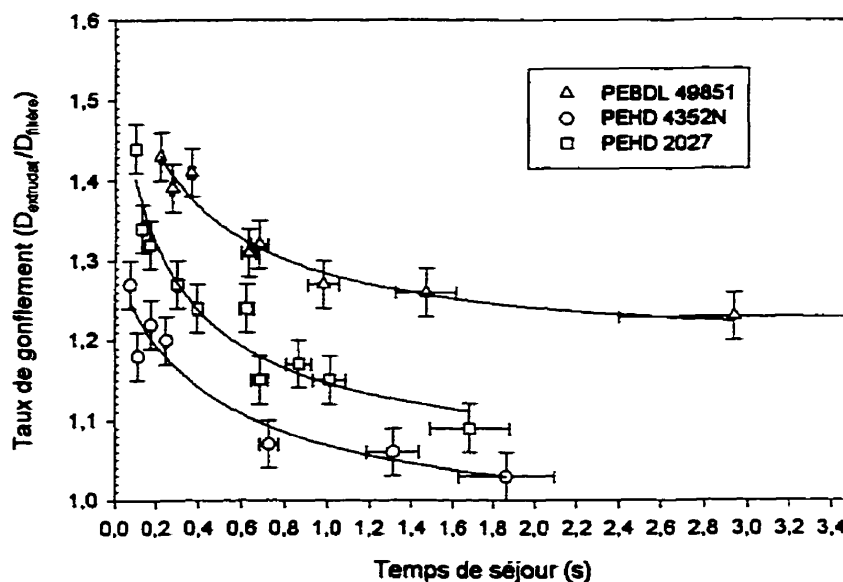


Figure 5.7 Comparaison des courbes du taux de gonflement de l'extrudat en fonction du temps de séjour dans la filière pour le PEBDL, le PEHD 2027 et le PEHD 4352N (190 °C, $D=1,07$ mm, $L/D=16$, entrée plate).

Pour un même temps de séjour, le PEBDL présente le gonflement le plus important tandis que le PEHD 4352N est celui qui gonfle le moins. Cette différence ne peut être reliée au temps de relaxation des effets d'entrée, car pour un temps de séjour élevé, le gonflement ne tend pas vers la même valeur pour les trois polymères. En plus des effets d'entrée, le gonflement dépend aussi des contraintes normales exercées sur le polymère le long de la filière. Ces contraintes créent une pression additionnelle à la paroi qui est libérée à la sortie de la filière. Il est difficile de bien évaluer ces contraintes normales, mais les mesures de gonflement laissent supposer qu'elles sont plus élevées avec le PEBDL, et plus faibles avec le PEHD 4352N.

Pour une même contrainte de cisaillement à la paroi, le taux de gonflement à la sortie de la filière et l'amplitude du défaut sont plus élevés avec le PEHD 2027 qu'avec le PEHD 4352N. Étant donné que les contraintes élongationnelles augmentent avec le gonflement, ces résultats appuient donc l'hypothèse que ces contraintes favorisent la formation du défaut.

Avant de discuter du mécanisme de formation du défaut, la section suivante présentera les mesures de vitesse effectuées à la sortie de la filière. Ces mesures permettent de vérifier la stabilité de l'écoulement.

5.2.4 Mesure de la vitesse de l'extrudat

Comme il a été mentionné à la section 5.1, un laser à effet Doppler a été utilisé pour tenter de vérifier le phénomène de glissement/adhésion à la paroi. Ces mesures ont été réalisées avec le PEBDL, car celui-ci présente un défaut bien défini.

On a donc mesuré la vitesse de l'extrudat à la sortie de la filière pour des conditions d'écoulement où le défaut est bien développé. La figure 5.8 présente, pour

une des mesures effectuées, l'histogramme de la distribution de la vitesse mesurée (5.8a) ainsi que le profil de vitesse dans le temps (5.8b). Cette mesure a été réalisée à 190 °C avec la filière convergente de 1,6 mm de diamètre et de rapport L/D de 16. La contrainte de cisaillement corrigée à la paroi est de $0,36 \pm 0,01$ MPa et le taux de cisaillement apparent correspondant est égale à 403 ± 9 s⁻¹.

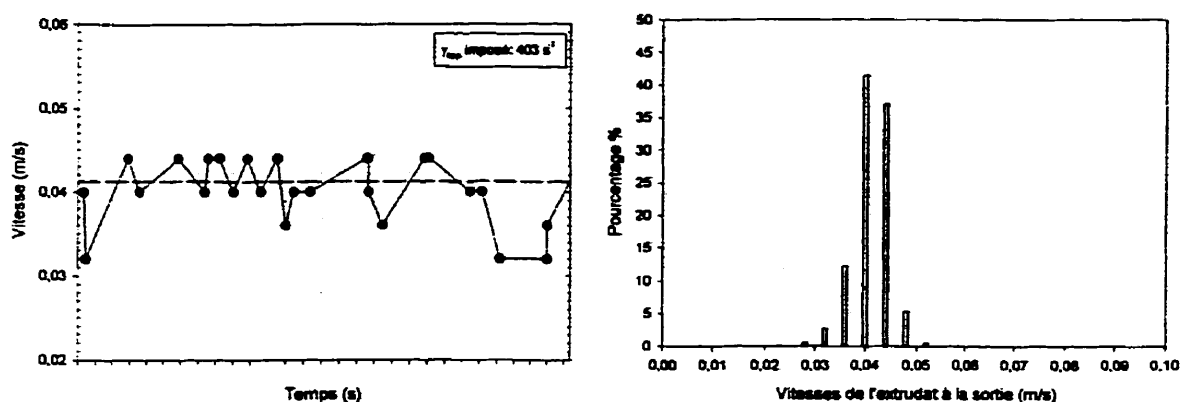


Figure 5.8 Vitesse de l'extrudat à la sortie de la filière (a) distribution; b) profil dans le temps) (PEBDL, $\sigma=0,36$ MPa, 190 °C, $D=1,6$ mm, $L/D=16$, entrée convergente).

Les résultats obtenus sont peu convaincants. On observe une certaine oscillation régulière dans la partie gauche de la figure 5.8, mais on réalise dans la partie de droite que les mesures sont plutôt aléatoires. La vitesse moyenne obtenue est de 0,041 m/s avec un écart type de 0,0047 m/s. Comme il sera démontré au chapitre 6 consacré à l'étude du défaut de type oscillant, la vitesse de l'extrudat augmente d'au moins 0,02 à 0,03 m/s lorsque le glissement se généralise. Le fait qu'on ne mesure pas cette variation de vitesse lors de la formation de la crête ne veut pas dire pour autant que le défaut n'est pas dû à un glissement. D'abord, les photos démontrent que le défaut n'est pas parfaitement perpendiculaire à l'écoulement, ce qui signifie qu'il ne survient pas sur toute la circonférence en même temps. Une partie de l'extrudat colle à la paroi

pendant qu'une autre glisse. Également, il est possible que les mesures soient tout simplement prises trop loin de la sortie pour que la variation de vitesse puisse être mesurée. Il faudrait répéter les mesures en rapprochant le faisceau laser de la sortie. Cependant, ces mesures sont difficiles à réaliser dû à un problème de réflexion avec la filière.

L'hypothèse que l'extrudat accélère lors de la formation du défaut n'a donc pu être confirmée par les mesures de vitesse, mais les résultats obtenus ne permettent pas de la rejeter non plus.

5.2.5 Mécanisme de formation du défaut

À partir des observations faites au microscope, le défaut semble davantage être dû à un phénomène de glissement/adhésion plutôt qu'à une rupture du polymère. D'abord, on observe que la surface de l'extrudat devient lisse lorsque le diamètre augmente (formation de la crête), puis redevient rugueux lorsque le diamètre diminue. Également, le défaut de type oscillant, qui est généralement reconnu pour être dû à un glissement à la paroi (section 6), est initié au sommet d'une crête. De plus, le diamètre de l'extrudat lorsque le glissement se généralise correspond avec le sommet des crêtes du défaut et la surface est alors lisse comme celle observée lors de la formation de la crête. En considérant ces observations, on peut proposer le mécanisme de formation suivant.

Comme il est clairement établi dans la littérature (section 3.4.1), le défaut est initié à la sortie de la filière où des contraintes élongationnelles viennent s'ajouter aux contraintes de cisaillement. Ces contraintes sont dues en partie au gonflement de l'extrudat et elles augmentent rapidement près de la sortie (Barone et *al.*, 1998). On peut penser que lorsque la contrainte totale atteint une certaine valeur critique, les forces

exercées deviennent suffisantes pour rompre l'adhésion du polymère à la paroi et initier le glissement. Celui-ci se propage ensuite très rapidement le long de la filière, tant que les contraintes sont suffisantes pour briser les liens entre le polymère et la paroi. Ainsi, pour une même contrainte de cisaillement, on peut penser que plus les contraintes élongationnelles sont importantes, plus le glissement se propage loin dans la filière, ce qui augmente l'amplitude et la période du défaut. Cette hypothèse a été utilisée pour justifier la différence d'amplitude mesurée entre les deux PEHD. La rupture soudaine des liens entre le polymère et la paroi a pour effet de créer un déséquilibre des forces exercées sur le polymère. Malgré le fait que les mesures de vitesse avec le laser n'aient pu le confirmer, il est permis de croire que le polymère accélère alors rapidement et est évacué à l'extérieur de la filière pour former le défaut. L'aspect lisse du côté droit de la crête appuie cette hypothèse. L'accélération du polymère permet de libérer les contraintes élongationnelles et le polymère adhère alors de nouveau à la paroi, comme le démontre le passage de l'aspect lisse à l'aspect rugueux de la surface au sommet de la crête. Le cycle recommence ensuite et une série de vagues perpendiculaires à l'écoulement apparaît à la surface de l'extrudat pour former le défaut de type peau de requin.

Ainsi, les observations générales présentées dans cette section (5.2) permettent de croire que la formation du défaut est due à un phénomène de glissement/adhésion à la paroi, près de la sortie de la filière plutôt qu'à une rupture du polymère à la sortie. Il est possible également que le glissement survienne entre deux couches de polymère plutôt qu'à la paroi lorsque le polymère est peu visqueux, mais le principe de formation du défaut est tout de même basé sur l'accélération de la surface de l'extrudat.

En considérant ce mécanisme de formation, la section suivante discute de l'effet des conditions opératoires sur le défaut.

5.3 Effets des conditions opératoires

L'amplitude, la période et les conditions d'apparition du défaut peuvent être influencées par les conditions d'écoulement. On étudiera dans cette section les effets qu'ont la géométrie d'entrée, le diamètre, le rapport L/D ainsi que de la température sur le défaut.

5.3.1 Géométrie d'entrée

Comme il a été mentionné à la section 3.4.3b, deux modes de déformation contribuent à la perte de pression à l'entrée, soit la composante P_{Eent} due aux déformations élongationnelles et la composante P_{Sent} due aux déformations en cisaillement. Eggen et Hinrichsen (1996) ont démontré qu'une augmentation de l'angle d'entrée du convergent a pour effet d'augmenter la composante élongationnelle et de diminuer celle en cisaillement. En additionnant ces deux tendances, ils ont observé que la perte de pression totale à l'entrée atteint un minimum pour un angle situé entre 20° et 30°.

Afin de vérifier si ces déformations à l'entrée influencent le défaut à la sortie, on a comparé les courbes d'amplitude et de période du défaut obtenues pour des filières de géométrie d'entrée différente (90° (convergente) ou 180° (plate)). Le figure 5.9 compare les expériences #3 (90°) et #9 (180°).

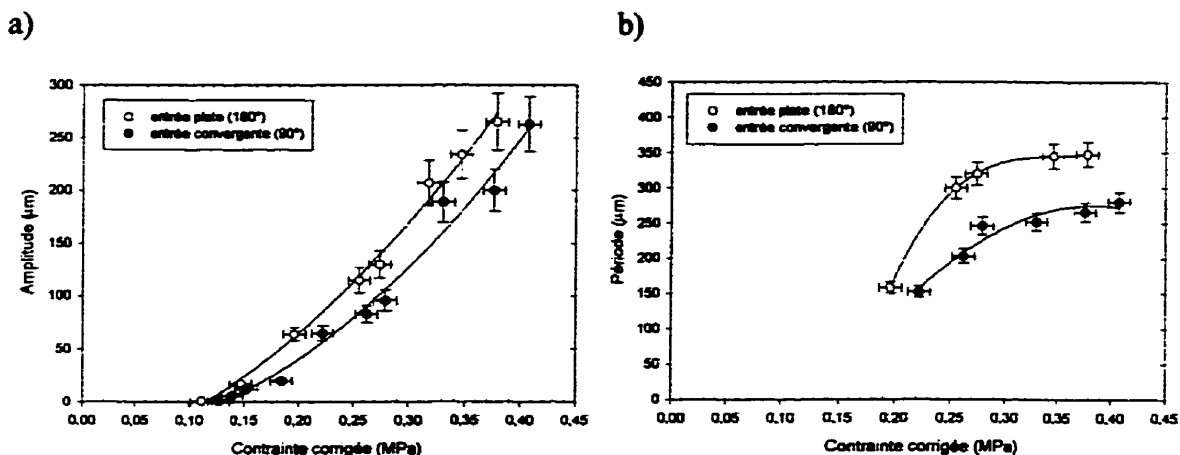


Figure 5.9 Effet de l'angle d'entrée; Évolution du défaut de type peau de requin en fonction de la contrainte de cisaillement à la paroi (a) amplitude; b) période) (PEBDL, 190 °C, $D=1,6$ mm, $L/D=8$).

Compte tenue des incertitudes, l'angle d'entrée n'a pas d'influence significative sur la contrainte critique d'apparition du défaut $\sigma_c(A)$. Elle se situe entre 0,12 MPa et 0,13 MPa pour les deux expériences. Cependant, l'organisation du défaut ($\sigma_c(T)$) semble être légèrement retardée avec la filière convergente (90°). On note également que les valeurs de l'amplitude et de la période à une contrainte donnée sont plus faibles avec cette filière. Étant donné que les déformations élongationnelles subies à l'entrée sont plus importantes avec une filière plate, les résultats confirment que ces déformations favorisent la formation du défaut en élevant le niveau de contrainte à la paroi. Des résultats semblables ont été obtenus par Wang et *al.* avec des filières de 60° et 180°.

En comparant les résultats des expériences #4 et #10, réalisées avec des filières plus longues (L/D égale à 16), on n'observe plus d'effet de la géométrie d'entrée et les courbes se superposent (figure 5.10). Le temps de séjour du polymère dans les filières longues ($L/D=16$) semble donc être suffisant pour permettre aux contraintes

élongationnelles associées à l'entrée de relaxer, ce qui n'est pas le cas dans les filières courtes.

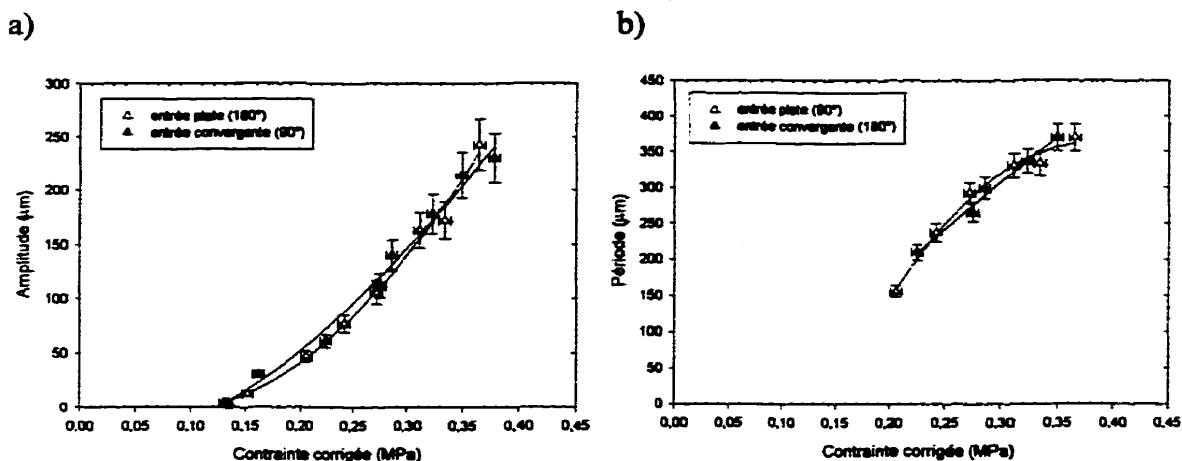


Figure 5.10 Effet de l'angle d'entrée; Évolution du défaut de type peau de requin en fonction de la contrainte de cisaillement à la paroi (a) amplitude; b) période) (PEBDL, 190 °C, $D=1,6$ mm, $L/D=16$).

Le temps nécessaire au polymère pour relaxer de ces contraintes est estimé à partir du temps de séjour **minimal** pour lequel l'entrée n'a pas d'effet (expériences avec les filières longues), et du temps de séjour **maximal** pour lequel l'entrée a un effet (expériences avec les filières courtes). Pour les expériences réalisées avec les filières longues, la valeur minimale calculée est de 0,27 s, alors que la valeur maximale calculée pour les filières courtes est de 0,10 s. On peut donc conclure que le temps critique de relaxation des contraintes est compris entre ces deux valeurs. Il faut cependant rappeler que ces valeurs représentent un temps de séjour moyen et sous-estime donc le temps réel alloué au polymère près de la paroi pour relaxer. On utilise tout de même ces valeurs à titre indicatif. Ainsi, lorsque le temps de séjour moyen est supérieur à 0,25 s, on peut supposer que les effets d'entrée sont négligeables.

Le temps critique de relaxation des effets d'entrée est souvent relié au temps caractéristique de relaxation τ^* du polymère qui est égal pour le PEBDL à environ 0,0106 s à 190 °C (tableau 4.2). Par contre, les résultats ont démontré qu'un temps de séjour beaucoup plus long est nécessaire pour que les effets d'entrée disparaissent.

5.3.2 Diamètre

Compte tenue des incertitudes, on n'observe pas d'effet marqué du diamètre sur les contraintes critiques d'apparition $\sigma_c(A)$ et d'organisation $\sigma_c(T)$ du défaut. Les valeurs moyennes de $\sigma_c(A)$ et de $\sigma_c(T)$ pour les filières de 1,6 mm de diamètre sont respectivement de $0,12 \pm 0,01$ MPa et $0,19 \pm 0,03$ MPa, et sont environ 0,01 MPa plus élevées avec les filières de 1,07 mm.

L'amplitude et la période des défauts mesurés pour les filières de 1,07 mm de diamètre sont plus faibles que celles mesurées pour les filières de 1,6 mm. Par contre, les résultats se superposent bien en divisant l'amplitude et la période par le diamètre de l'extrudat, comme le démontre la figure 5.11.

La proportion du défaut par rapport au diamètre de l'extrudat semble donc être indépendante du diamètre de la filière. Ainsi, on peut penser que l'augmentation de la période et de l'amplitude avec le diamètre de la filière est causée par l'augmentation des contraintes élongationnelles subit par le polymère à la surface de l'extrudat. Pour un même taux de gonflement, la surface de l'extrudat subi une déformation beaucoup plus importante avec la filière de 1,6 mm de diamètre. Le glissement se propage donc plus loin dans la filière et une plus grande quantité de polymère est évacuée, ce qui a pour effet d'augmenter l'amplitude et la période du défaut. Ceci explique également le fait que le défaut apparaît à une contrainte légèrement plus faible avec la filière de 1,6 mm. Wang et *al.* ont également observé une augmentation des défauts de surface avec le diamètre.

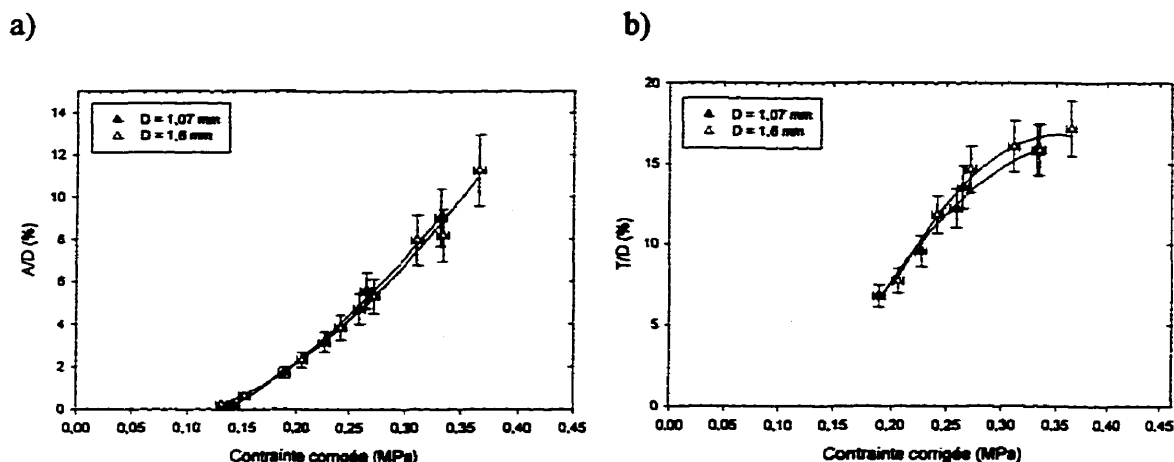


Figure 5.11 Effet du diamètre; Évolution du défaut de type peau de requin en fonction de la contrainte de cisaillement à la paroi (a) amplitude; b) période) (PEBDL, 190 °C, $L/D=16$, entrée plate).

5.3.3 Température

En comparaison avec les mesures à 190 °C, on mesure à 207 °C une légère augmentation de la contrainte critique d'apparition $\sigma_c(A)$ du défaut (de 0,123 MPa à 0,135 MPa) tandis que la contrainte critique d'organisation du défaut $\sigma_c(T)$ demeure sensiblement la même. En considérant les incertitudes sur ces valeurs, qui sont de l'ordre de 0,01 MPa, on ne peut confirmer qu'une augmentation de la température repousse l'apparition du défaut à une contrainte plus élevée.

La figure 5.12 permet de comparer l'évolution de l'amplitude et de la période du défaut, en fonction de la contrainte, pour deux expériences réalisées avec la même filière ($D=1,6$ mm; $L/D=16$; entrée convergente,) mais à une température différente (exp. #4 à 190 °C et exp. #8 à 207 °C).

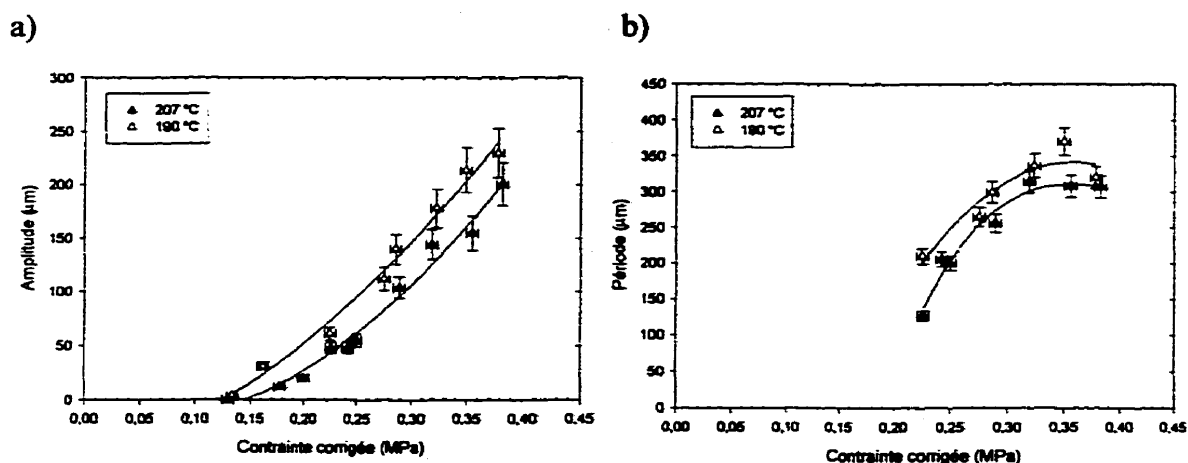


Figure 5.12 Effet de la température; Évolution du défaut de type peau de requin en fonction de la contrainte de cisaillement à la paroi (a) amplitude; b) période) (PEBDL, $D=1,6$ mm, $L/D=16$, entrée convergente).

L'amplitude du défaut diminue beaucoup avec une augmentation de la température. Pour une même valeur de la contrainte de cisaillement, l'amplitude du défaut à 207 °C est de 20% à 30% plus faible que celle à 190 °C.

L'effet de la température sur la période n'est pas très clair. Alors qu'on observe une diminution de la période avec la température pour un rapport L/D égale 16 (figure 5.12b), les résultats obtenus avec les filières de rapport L/D égale à 4 et 8 sont confondus, ce qui ne permet pas de tirer de conclusions significatives.

La figure 5.13 présente l'aspect du défaut à 207 °C pour une contrainte de cisaillement à la paroi de $0,25 \pm 0,01$ MPa (PEBDL, $D=1,6$ mm, $L/D=16$, entrée convergente).

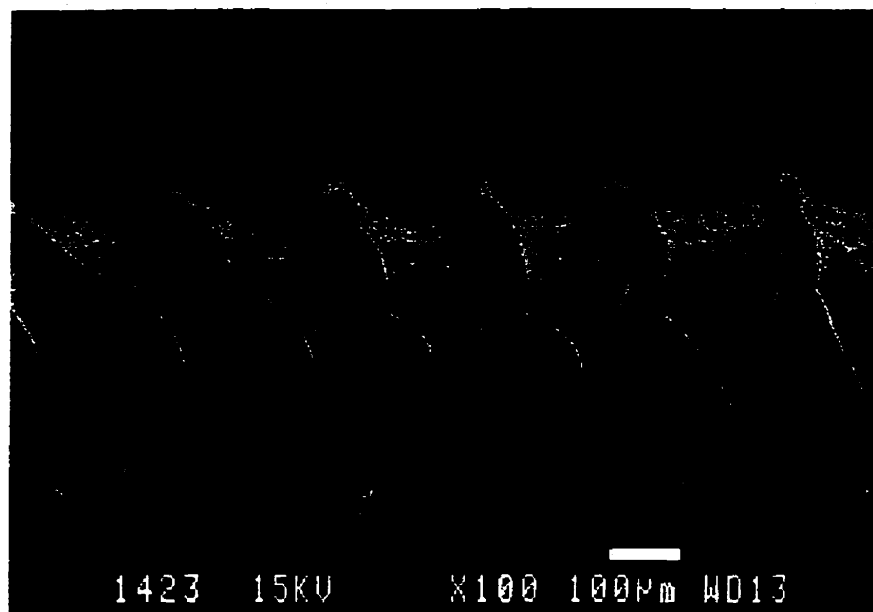


Figure 5.13 Aspect du défaut de type peau de requin (PEBDL, 207 °C, $D=1,6\text{mm}$, $L/D=16$, entrée plate, 0,25 MPa).

En comparant ce défaut avec celui observé à 190 °C pour des conditions d'écoulement semblables (PEBDL, $D=1,6\text{ mm}$, $L/D=16$, entrée convergente, 0,23 MPa) (figure 5.3d), on remarque que les crêtes sont moins bien définies à 207 °C et que le changement d'aspect de la surface est moins apparent.

Il est possible que cet effet de la température puisse encore une fois être dû à la différence de viscosité du polymère à la paroi. Pour une même contrainte de cisaillement à la paroi, une diminution de la viscosité réduit le temps de séjour et augmente par conséquent le taux de gonflement. Par exemple, pour une contrainte de $0,320\pm0,005\text{ MPa}$, une augmentation de la température de 190 °C à 207 °C a pour effet de réduire le temps de séjour de $0,45\pm0,01\text{ s}$ à $0,36\pm0,01\text{ s}$ et d'augmenter le taux de gonflement de $1,32\pm0,03$ à $1,37\pm0,03$ (exp. #4 et #8). Les contraintes élongationnelles augmentent donc légèrement avec la température. Cependant, plus la

température est élevée, plus le taux de cisaillement à la paroi est grand ($462 \pm 20 \text{ s}^{-1}$ à 207°C versus $373 \pm 17 \text{ s}^{-1}$ à 190°C). Il est donc possible que les chaînes de polymère soient orientées davantage dans le sens de l'écoulement et que la résistance en élongation du polymère augmente. Ceci expliquerait le fait que le défaut apparaît à une contrainte légèrement plus élevée à 207°C et que l'amplitude est plus faible à cette température. Également, le fait que le défaut est moins bien défini à 207°C peut être dû au fait que le glissement survienne entre deux couches de polymère plutôt qu'entre la paroi et le polymère lorsque le taux de cisaillement est élevé.

5.3.4 Rapport L/D

La figure 5.14 présente l'effet du rapport L/D sur l'évolution de l'amplitude et de la période du défaut. Ces résultats sont basés sur les expériences réalisées à 190°C avec la série de filières convergentes de 1,6 mm de diamètre (exp. #2 à #4).

Ainsi, la contrainte critique d'apparition du défaut $\sigma_c(A)$ ne semble pas dépendre du rapport L/D . On observe également peu de différence d'amplitude entre les filières de rapport L/D de 8 et de 16. Toutefois, la filière courte (L/D égale 4) présente un défaut légèrement plus petit.

La période du défaut est par contre plus sensible au rapport L/D . Plus celui-ci est grand, plus la période est grande. L'évolution avec la contrainte demeure toutefois la même pour les trois rapport L/D , c'est-à-dire une augmentation rapide de la période qui se stabilise ensuite à une contrainte d'environ 0,35 MPa.

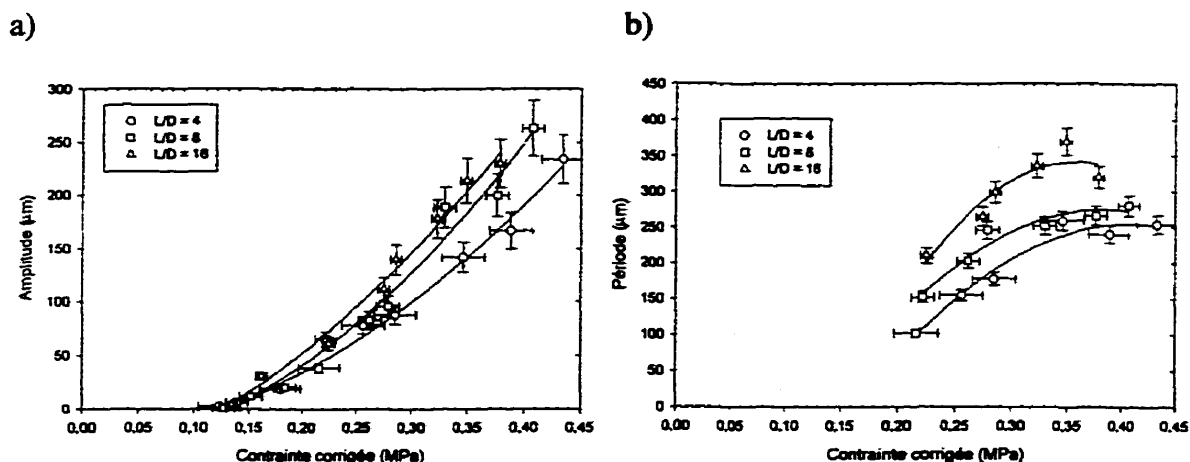


Figure 5.14 Effet du rapport L/D ; Évolution du défaut de type peau de requin en fonction de la contrainte de cisaillement à la paroi (a) amplitude; b) période) (PEBDL, 190 °C, $D=1,6$ mm, entrée convergente).

Les expériences réalisées avec ces mêmes filières à 207 °C, ainsi que celles réalisées avec les séries de filières à entrée plate, donnent des résultats semblables à ceux obtenus avec les filières convergentes à 190 °C (annexes F); on observe peu d'écart entre les courbes des filières de rapport L/D de 8 et de 16; et l'ampleur du défaut est légèrement plus petit avec la filière de rapport L/D de 4 (à 207 °C). La période augmente également avec le rapport L/D à 207 °C, mais l'effet est moins clair qu'à 190 °C.

La figure 5.15 présente l'évolution de l'aspect du défaut avec le rapport L/D pour une même valeur de taux de cisaillement apparent et une même contrainte à la paroi (environ 200 s^{-1} et $0,28 \text{ MPa}$).

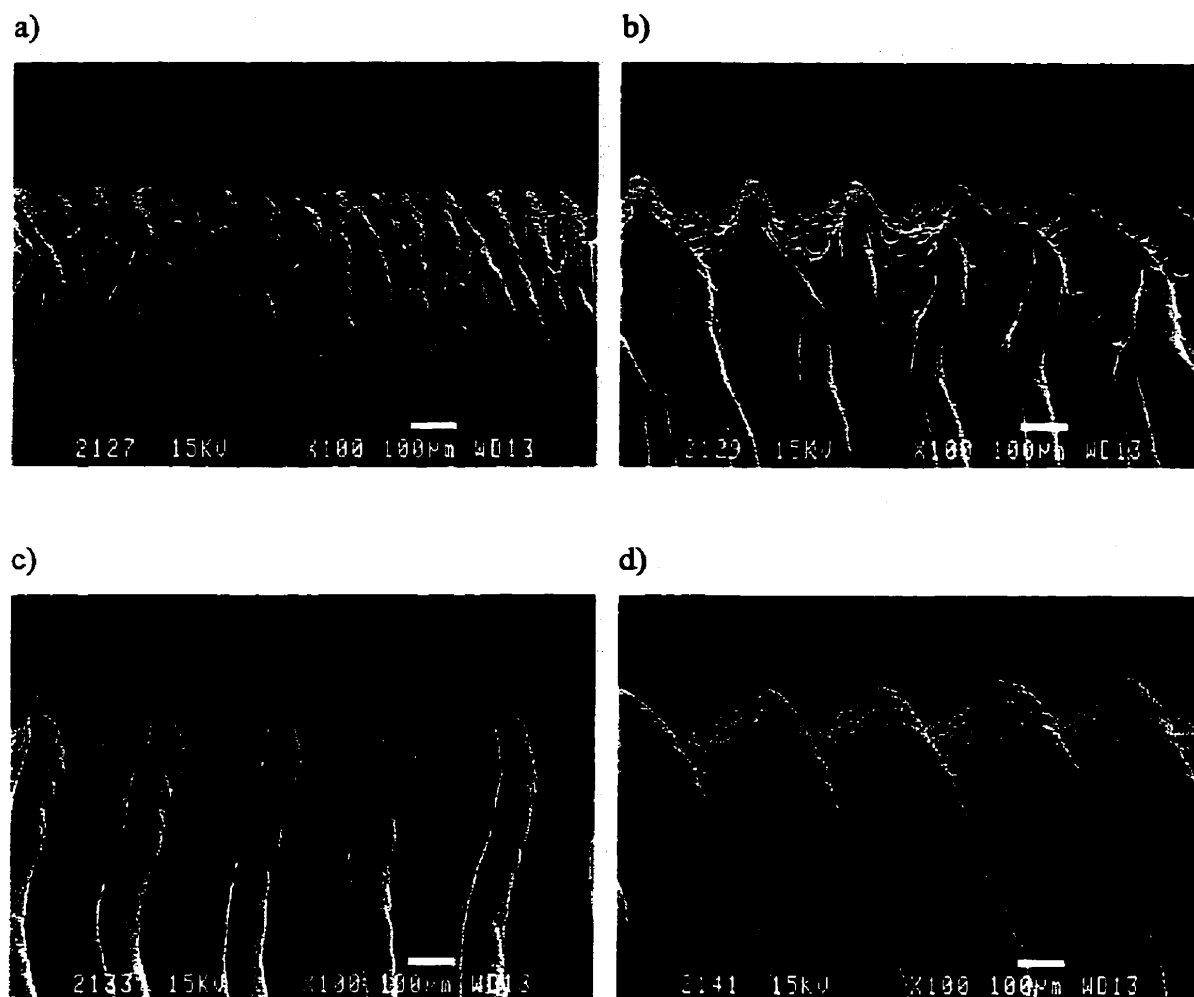


Figure 5.15 Aspect du défaut de type peau de requin (PEBDL, 190 °C, $D=1,6$ mm, entrée convergente, $\dot{\gamma}_{app} \approx 200 \text{ s}^{-1}$, $\sigma_c \approx 0,28 \text{ MPa}$) (a) $L/D=0$; b) $L/D=4$; c) $L/D=8$; d) $L/D=16$).

On voit clairement que le défaut est de plus en plus développé au fur et à mesure que la longueur de la filière augmente. Ces effets du rapport L/D sur le défaut sont difficiles à expliquer. D'abord, le rapport L/D influence directement le temps de séjour du polymère dans la filière. Pour une même valeur de la contrainte, plus le rapport L/D est grand, plus le temps de séjour est long. Ainsi, les effets d'entrée, qui favorisent la

formation du défaut, sont beaucoup plus importants avec les filières courtes ($L/D=4$). Or, ces filières présentent un défaut moins importants que les filières longues ($L/D=8$ et 16). Cet écart ne peut donc pas être expliqué à partir des effets d'entrée.

Comme il a été mentionné, le taux de gonflement est grandement influencé par le temps de séjour lorsque celui-ci est petit (figure 5.6). À une contrainte de cisaillement donnée, le gonflement est donc beaucoup plus important avec la filière courte et les contraintes élongationnelles sont par conséquent plus élevées. Étant donné que ces contraintes favorisent la formation du défaut, l'effet du rapport L/D n'est donc pas dû à la différence de gonflement.

Comme les résultats de la section 5.3.3 le démontrent, une augmentation de la température a pour effet de diminuer l'amplitude et la période du défaut. Des simulations numériques ont donc été faites pour vérifier s'il y a un écart important de température à la paroi près de la sortie pour des filières de rapport L/D différent (annexe D). Les simulations ont été réalisées en se basant sur les mesures expérimentales. Pour chaque filière, on a choisi un point expérimental dont la contrainte de cisaillement à la paroi est semblable (environ $0,38 \pm 0,01$ MPa). Étant donné que la température du polymère à l'entrée (environ 190 °C), celle de la paroi (environ 179 °C) ainsi que le débit massique ont été notés, on peut simuler l'échauffement visqueux et l'échange thermique avec la paroi pour déterminer le profil de température à la sortie. Puisque la conductivité thermique des polymères est faible, on a considéré une condition isotherme à la paroi qui simplifie les calculs sans engendrer d'erreur importante. Ainsi, le tableau 5.4 présente la température « bulk » mesuré à l'entrée, celle calculée à la sortie de la filière ainsi que la température moyenne calculée dans une couche d'environ 300 μm d'épaisseur près de la paroi à la sortie.

Tableau 5.4 Température à l'entrée et à la sortie des filières de rapport L/D différent (PEBDL, $D=1,6$ mm, entrée convergente, $\approx 0,38$ MPa).

4	192 $\pm$ 1	191,1	187,4
8	191 $\pm$ 1	190,2	186,7
16	192 $\pm$ 1	190,6	186,5

La température calculée à la sortie pour ces conditions est donc à peine plus élevée avec la filière courte (moins de un degré celsius). Cette différence de température ne peut donc pas justifier à elle seule l'écart entre les valeurs d'amplitude (et de période) mesurées pour ces filières. De plus, il faut rappeler que la condition isotherme à la paroi représente le cas idéal où le coefficient d'échange de chaleur entre le polymère et la paroi est très élevé. En réalité, cet échange est limité et la température à la paroi est plus élevée que celle calculée. Plus la filière est longue, plus cet écart est important. Ainsi, la température à la paroi près de la sortie augmente probablement un peu avec le rapport L/D plutôt que de diminuer. On ne peut donc pas se baser sur la thermique pour justifier l'effet du rapport L/D sur le défaut.

Étant donné que la formation du défaut est localisé près de la sortie. La différence de pression associée au rapport L/D ne peut justifier à elle seule l'effet du L/D sur le défaut.

L'orientation des chaînes à la paroi peut également être influencée par le rapport L/D . Une filière longue favorise davantage l'orientation des chaînes de polymère dans le sens de l'écoulement. Cependant, cette orientation devrait augmenter la résistance en élongation de la surface de l'extrudat et, par conséquent, diminuer l'amplitude et la période du défaut, ce qui n'est pas le cas.

Comme il a été mentionné au chapitre 3, il n'y a pas de consensus établi sur l'effet du rapport L/D sur le défaut. Certains auteurs trouvent que l'augmentation du rapport L/D repousse l'apparition du défaut à des débits plus élevés (Moynihan et *al.*, 1990) et en diminue l'amplitude (Lai et Knight, 1992 ; Hatzikiriakos et Dealy, 1994), d'autres observent exactement le contraire (Ballenger et *al.*, 1971 ; Constantin, 1984). Wang et *al.* (1993) ont également observé une augmentation de l'amplitude des défauts de surface avec le rapport L/D . Cependant, la majorité des travaux publiés démontrent que le rapport L/D n'a pas d'effet sur l'apparition du défaut (Tordella, 1969 ; Cook, 1989 ; Ramamurthy, 1989, Hatzikiriakos et Dealy, 1991 ; Kurtz, 1992 ; El Kissi et *al.*, 1994 ; Rosenbaum et *al.*, 1995 ; Venet, 1996). Cet effet est difficile à expliquer et d'autres expériences devront être menées pour tenter d'éclairer ce sujet.

5.4 Résumé

Les observations faites au microscope ont permis de bien suivre l'évolution du défaut de type peau de requin avec la contrainte de cisaillement. Ainsi, on a constaté que de petites ondulations de moins de un micron d'amplitude apparaissent à la surface de l'extrudat à une certaine contrainte de cisaillement critique. Ces ondulations gagnent rapidement de l'amplitude et s'organisent au fur et à mesure que la contrainte de cisaillement augmente, jusqu'à ce que le défaut de type oscillant survienne.

On a mis en évidence un changement de l'aspect de la surface de l'extrudat lors de la formation de la crête du défaut. Celle-ci devient alors lisse et le diamètre augmente rapidement pour former le défaut. Au sommet de la crête, la surface redevient rugueuse et le diamètre diminue progressivement, jusqu'à ce que le cycle recommence. Cette observation favorise l'hypothèse que le défaut soit dû à un phénomène de glissement/adhésion localisé près de la sortie de la filière, comme le

soutiennent Barone *et al.* (1998), plutôt qu'à une rupture du polymère. Le fait que le défaut de type oscillant, qui est reconnu pour être dû à un glissement du polymère à la paroi, soit initié au sommet de la crête renforce cette hypothèse. Cependant, les mesures de vitesse réalisées avec le laser n'ont pu le confirmer.

Les résultats démontrent que l'apparition du défaut dépend essentiellement du niveau de contrainte à la surface près de la sortie. En comparant les résultats obtenus avec les deux PEHD, on a démontré que, pour une même contrainte de cisaillement, l'amplitude du défaut augmente avec le taux de gonflement. Ainsi, en plus des contraintes de cisaillement, les contraintes élongationnelles semblent contribuer à former le défaut. Ces contraintes sont dues essentiellement aux déformations subies à l'entrée et au gonflement à la sortie.

La géométrie de la filière influence peu les contraintes de cisaillement critiques correspondant à l'apparition et à l'organisation du défaut. Celles-ci sont respectivement égales à $0,13 \pm 0,01$ MPa et $0,19 \pm 0,01$ MPa pour le PEBDL (à 190 °C). Cependant, l'amplitude et la période du défaut sont grandement influencées.

L'effet de la géométrie d'entrée dépend du temps de séjour du polymère dans la filière. Lorsque celui-ci est faible (inférieur à environ 0,25 s), l'amplitude et la période mesurées pour les filières à entrée plate (180°) sont supérieures à celles mesurées avec les filières à entrée convergente (90°). Par contre, cet effet disparaît lorsque le temps de séjour est plus grand. Ceci démontre que les déformations élongationnelles subies à l'entrée favorisent la formation du défaut lorsqu'elles n'ont pas le temps de relaxer.

Les résultats démontrent que le défaut est directement proportionnel au diamètre de la filière. L'amplitude et la période augmentent avec celui-ci, mais les valeurs relatives au diamètre de l'extrudat demeurent constantes.

On a également observé une augmentation importante de l'amplitude et de la période du défaut avec le rapport L/D . Cet effet est cependant difficile à expliquer.

Finalement, l'augmentation de la température a pour effet de retarder l'apparition et le développement du défaut. Cet effet a également été observé par plusieurs auteurs.

6 ÉTUDE DU DÉFAUT DE TYPE OSCILLANT ("SLIP-STICK")

On observe souvent, pour les polymères flexibles linéaires, une plage de débit pour laquelle l'écoulement devient instable. La pression et le débit oscillent alors de façon régulière et l'extrudat présente une succession de segments lisses et à peau de requin. Ce défaut est communément appelé : défaut de type oscillant ("slip-stick"). Il est reconnu dans la littérature que cette instabilité est due à un phénomène de glissement/adhésion du polymère à la paroi. Lyngaae-Jorgensen et Marcher (1985), ainsi que El Kissi et Piau (1990) ont mis en évidence un glissement en visualisant le mouvement de traceurs, tandis que Lim et Schowalter (1989) et Atwood et Schowalter (1989) ont mesuré des taux de transfert de chaleur à la paroi.

Il est généralement proposé dans la littérature que le défaut est caractérisé par une oscillation de l'écoulement entre deux branches stables. Cette hypothèse est basée principalement sur les mesures de pression et l'aspect que présente l'extrudat. Cependant, peu de mesures directes du débit ont été réalisées jusqu'à présent pour confirmer cette hypothèse.

Un des objectifs de cette recherche est de mettre en évidence l'accélération du polymère lors de l'initiation du glissement à la paroi par une mesure directe de la vitesse de l'extrudat à la sortie de la filière. Ces mesures permettront de mieux comprendre le cycle de l'écoulement dans la zone oscillante. On étudiera également l'effet des conditions opératoires sur les conditions d'apparition du défaut ainsi que sur la période et l'amplitude des oscillations. Le microscope électronique à balayage sera de nouveau utilisé pour observer l'aspect du défaut. Il permettra d'étudier en détails les zones de transition entre la peau de requin et le glissement.

Ce chapitre est divisé en 5 sections. La section 6.1 décrit la méthode expérimentale utilisée pour étudier le défaut. La section 6.2 présente l'aspect général du défaut observé au microscope. On y retrouve également les conditions critiques d'apparition du défaut, les mesures de vitesse ainsi que l'évolution de la période des oscillations avec le taux de cisaillement. La section 6.3 est consacrée à l'étude de l'effet des conditions opératoires sur le défaut. La section 6.4 présente un défaut de type oscillant très particulier observé avec un des polymères étudiés. Finalement, la section 6.5 résume les résultats obtenus.

6.1 Méthode expérimentale

La section 6.1.1 explique le choix des polymères qui ont été utilisés pour étudier le défaut de type oscillant. La section 6.1.2 décrit ensuite les expériences qui ont été menées sur l'extrudeuse monovis.

6.1.1 Choix des polymères

Les quatre polymères étudiés (tableau 4.1) présentent une zone instable où la pression et le débit oscillent. Le comportement du PEHD DMDC-6400 est très particulier et ne peut être analysé de la même façon que celui des trois autres polymères. L'instabilité présentée par ce polymère est donc analysée séparément à la section 6.4. Le PEBDL ainsi que les PEHD 2027 et 4352N ont un comportement typique de la plupart des polymères flexibles linéaires, soit un défaut caractérisé par une alternance de zones lisses et à peau de requin.

L'étude du comportement de l'écoulement dans la zone instable est basée principalement sur le PEBDL. Les segments lisses et à peau de requin observés avec ce

polymère sont faciles à repérer à l'oeil nu et la période d'oscillation est un peu plus grande que celle des deux PEHD. Les PEHD 2027 et 4352N seront étudiés principalement pour comparer les conditions critiques d'apparition du défaut.

6.1.2 Méthode expérimentale

Les conditions critiques d'apparition et de disparition du défaut ont été notées durant la caractérisation rhéologique des polymères au chapitre 4. Les conditions d'écoulement de chacune des expériences sont résumées au tableau 4.4. Ces expériences permettent d'étudier l'effet de la température, du diamètre, du rapport L/D et de la géométrie d'entrée sur l'apparition du défaut. Cette série d'expériences permet également de comparer l'apparition du défaut pour trois polymères différents (PEBDL 49851, PEHD 2027 et 4352N).

Une série de huit expériences ont par la suite été réalisées pour étudier, à l'aide du laser, le comportement du polymère dans la zone oscillante (tableau 6.1).

Tableau 6.1 Description des expériences réalisées sur l'extrudeuse monovis dans l'étude de l'écoulement du polymère dans la zone instable .

1r	90° (conv.)	1,6	190	0
2r				4
3r				16
4r			207	16
5r	180° (plate)	1,6	190	8
6r				16
7r		1,07	190	16
8r		2	190	24

Les variables étudiées sont encore une fois la géométrie d'entrée, le diamètre, le rapport L/D ainsi que la température. On a également étudié l'influence du volume du réservoir sur la période du défaut.

Le montage expérimental utilisé est le même que celui présenté au chapitre 4 (figure 4.3). La vitesse de l'extrudat est mesurée à la sortie de la filière et la pression est enregistrée dans un fichier. Pour les expériences 1r à 7r, la vitesse de rotation de la vis est maintenue à une valeur d'environ 8 trm, soit la valeur minimale recommandée pour maintenir le débit et la pression à la sortie de la vis stables. À cette vitesse de rotation, le débit dans les filières de 1,07 mm et 1,6 mm est trop grand pour qu'on puisse observer le défaut de type oscillant. On doit donc ouvrir partiellement les vannes pour diminuer le débit dans la filière. La purge de polymère en amont du réservoir peut avoir une influence sur la période d'oscillations du défaut. Cependant, elle n'affecte pas les conditions critiques d'apparition du défaut, car celles-ci dépendent principalement de la contrainte à la paroi de la filière.

Afin d'éliminer l'effet de la purge, on a repris des mesures avec une filière de 2 mm de diamètre et de rapport L/D de 24. Un système d'acquisition de la pression plus rapide a été utilisé pour cette expérience afin d'obtenir davantage de points de mesure durant la dynamique du défaut. On peut ainsi superposer les oscillations de pression aux oscillations de débit pour mieux suivre l'écoulement le long des branches d'écoulement. La géométrie de cette filière comporte plusieurs avantages. D'abord, le débit dans la filière pour lequel le défaut apparaît est suffisamment élevé pour qu'on puisse fermer complètement les vannes et mieux contrôler le débit imposé dans la filière. Également, la période d'oscillations est plus longue et facilite ainsi le suivi du cycle d'écoulement. Par contre, la longueur de cette filière rend le contrôle de la température plus difficile et la correction de Bagley ne peut être appliquée, car un seul rapport L/D est disponible pour ce diamètre.

Pour chaque expérience, on a étudié l'évolution de la période avec le taux de cisaillement apparent moyen et on a observé au microscope électronique à balayage (MEB) les zones de transition entre le glissement et la peau de requin.

6.2 Observations générales

La section 6.2.1 présente la courbe d'écoulement typique observée avec le PEBDL. La section 6.2.2 présente l'évolution générale de l'aspect du défaut. La section 6.2.3 discute ensuite des conditions critiques d'apparition du défaut. Finalement, la section 6.2.4 présente les mesures de vitesse et l'étude de la période du défaut.

6.2.1 Courbe d'écoulement

Comme il a été mentionné au chapitre 3, la courbe d'écoulement des polymères flexibles linéaires est composée de deux branches stables séparées par une zone instable (figure 3.3). Lorsqu'on opère à débit imposé, l'écoulement est stable si le taux de cisaillement est inférieur à une valeur critique $\dot{\gamma}_{C2}$ (écoulement le long de la branche I) ou supérieur à $\dot{\gamma}_{C3}$ (écoulement le long de la branche II). Cependant, si le taux de cisaillement "imposé" se situe entre ces deux valeurs, la pression et le débit oscillent et le défaut de type oscillant apparaît ("slip-stick"). Le taux de cisaillement apparent "imposé" représente la valeur moyenne mesurée sur une longue période de temps. Bien que le débit de purge (expériences #1r à #7r) représente moins de 10% du débit dans la filière, celui-ci varie avec les oscillations de pression dans le réservoir et affecte donc la valeur du débit moyen imposé dans la filière. Cet effet est cependant minimisé lorsque le débit de purge est faible (avec les filières de 1,6 mm de diamètre) et lorsque les variations de pression sont de faible amplitude, comme c'est le cas avec le PEBDL.

La figure 6.1 présente la courbe d'écoulement du PEBDL obtenue avec quatre filières de géométries différentes.

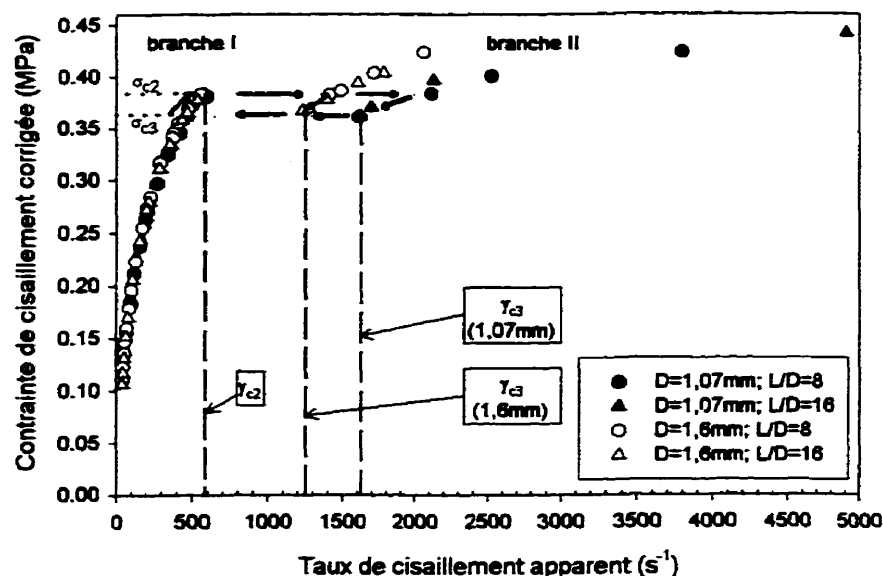


Figure 6.1 Courbe d'écoulement du PEBDL à 190 °C en fonction de la géométrie de la filière (entrée plate).

On peut facilement localiser la zone oscillante qui sépare les branches I et II de la courbe d'écoulement. Lorsque le taux de cisaillement apparent moyen se situe dans cette zone instable, il est généralement admis que l'écoulement oscille entre les deux branches comme l'indique les flèches sur la figure 6.1. Les mesures obtenues avec le laser tenteront de vérifier cette hypothèse.

Avec ce polymère, on remarque que la variation du taux de cisaillement apparent au cours du cycle du défaut est beaucoup plus importante que celle de la contrainte. Ainsi, lorsque le défaut survient, on observe une grande oscillation du débit. Cependant, la pression varie peu. L'ampleur de la zone oscillante dépend des

conditions opératoires et du polymère utilisé. On discutera plus en détails de ces effets à la section 6.3.

Un autre point important à mentionner est l'effet du diamètre de la filière sur l'écoulement en branche II. Alors que les branches I obtenues avec les quatre filières se superposent bien, on observe un écart important entre les branches II des filières de 1,07 mm et 1,6 mm. Le taux de cisaillement apparent associé à une même contrainte de cisaillement à la paroi est beaucoup plus élevé avec les filières de 1,07 mm. En considérant la méthode développée par Mooney (section 3.2.2), ces résultats démontrent que l'écoulement en branche II est caractérisé par un glissement important à la paroi, contrairement à l'écoulement en branche I. À partir de l'équation 3.11 (équation de Mooney), on estime une vitesse de glissement d'environ $0,15 \pm 0,02$ m/s. Étant donné qu'à l'extrémité de la branche II, c'est-à-dire à un taux de cisaillement égale à $\dot{\gamma}_{cs}$, la vitesse moyenne du polymère est comprise entre 0,21 m/s et 0,25 m/s (selon la géométrie de la filière), on réalise que le glissement peut représenter jusqu'à 75% de l'écoulement total en branche II. Wang et al. (1993) ont utilisé une filière comportant deux canaux de même rapport L/D , mais de diamètre différent pour mesurer le glissement. En utilisant la méthode de Mooney, ils ont, quant à eux, obtenu une vitesse de glissement de 0,13 m/s avec un PEHD.

La section suivante présente le cycle morphologique suivi par le polymère dans la zone instable. On étudiera attentivement le passage entre les zones lisses et à peau de requin.

6.2.2 Aspect général du défaut

Pour le PEBDL et les PEHD 2027 et 4352N, le défaut se présente comme une succession de segments lisses et à peau de requin comme l'illustre la figure 6.2 ($\dot{\gamma}_{\text{moy}}$

représente le taux de cisaillement apparent moyen mesuré sur une période de 30 secondes).

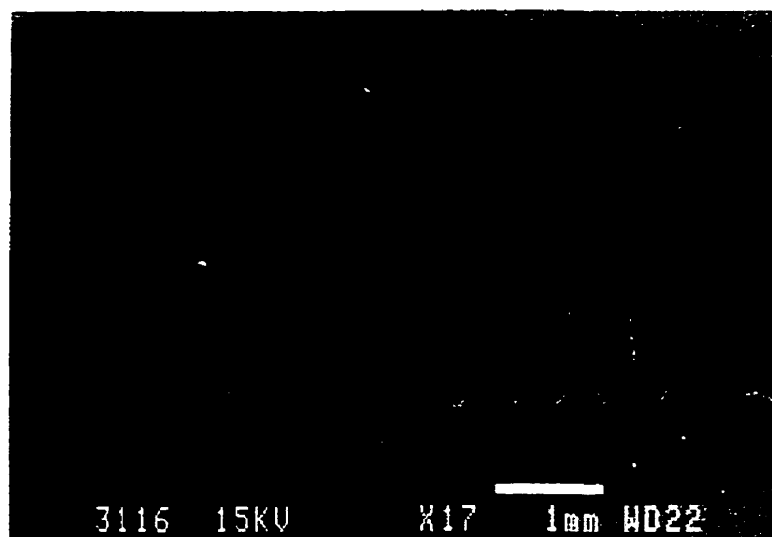


Figure 6.2 Défaut de type oscillant (PEBDL, 190 °C, $D=1,6$ mm, $L/D=16$, entrée convergente, $\dot{\gamma}_{\text{moy}}=1124 \text{ s}^{-1}$).

La longueur respective des segments dépend du taux de cisaillement apparent imposé. Le segment lisse peut être très court lorsque $\dot{\gamma}_{\text{moy}}$ est près de l'extrémité de la branche I (figure 6.1), mais celui-ci gagne rapidement de l'importance au fur et à mesure que $\dot{\gamma}_{\text{moy}}$ se rapproche de l'extrémité de la branche II. On discutera plus en détails de l'évolution de la période du défaut à la section 6.2.4.

La figure 6.3 permet d'observer le passage du segment à peau de requin au segment lisse.

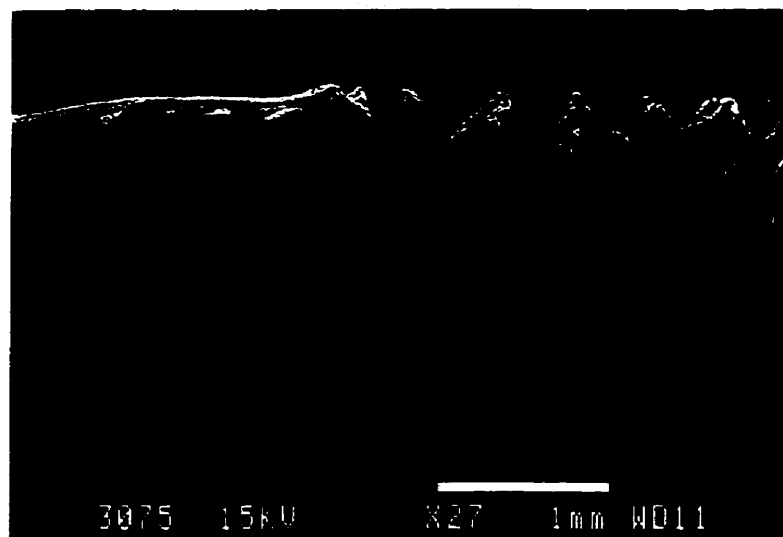


Figure 6.3 Défaut de type oscillant; Passage du segment à peau de requin au segment lisse (PEBDL, 190 °C, $D=1,6$ mm, $L/D=16$, entrée convergente, $\dot{\gamma}_{\text{moy}} = 544 \text{ s}^{-1}$).

Cette transition survient lorsque la contrainte à la paroi atteint une certaine valeur critique (section 6.2.3). On remarque d'abord que la transition ne survient pas sur toute la circonférence de la filière en même temps. Elle est initiée à un endroit, puis se propage sur l'ensemble de la filière. Également, on croit que le glissement est initié au sommet d'une des crêtes du défaut de type peau de requin, ce qui laisse supposer que le mécanisme de formation de la crête est à l'origine du glissement continu. Cette hypothèse que le glissement est initié à la sortie s'appuie également sur deux faits. D'abord, le gonflement engendre des contraintes élongationnelles qui "tirent" le polymère à la paroi vers la sortie. Également, on peut penser que plus la pression est faible, moins le contact entre le polymère et la paroi est bon, ce qui facilite la rupture de l'adhésion. Wang et *al.* (1993) ont cependant mesuré la variation de pression le long d'une filière plate lorsque le glissement est initié et leurs résultats laissent supposer que le glissement est initié près de l'entrée de la filière. Des mesures semblables devront

être reprises avec un système d'acquisition de pression très rapide pour confirmer la localisation de la région d'initialisation du glissement.

Une fois le glissement établi sur l'ensemble de la circonférence, l'extrudat présente une surface lisse et régulière jusqu'à ce que le défaut de type peau de requin réapparaisse (figure 6.4).



Figure 6.4 Défaut de type oscillant; Passage du segment lisse au segment à peau de requin (PEBDL, 190 °C, $D=1,6$ mm, $L/D=16$, entrée convergente, $\dot{\gamma}_{\text{moy}}=544 \text{ s}^{-1}$).

La transition entre le glissement et la peau de requin est caractérisée par une augmentation de la rugosité de la surface et par une diminution du diamètre de l'extrudat. Ces observations appuient l'hypothèse que cette transition est due à l'adhésion du polymère à la paroi. Cette adhésion survient presque instantanément sur l'ensemble de la filière.

6.2.3 Conditions critiques d'apparition

Le tableau 6.2 présente, pour chaque expérience réalisée, la valeur des contraintes de cisaillement corrigées à la paroi (σ_{c2} et σ_{c3}) et des taux de cisaillement apparents correspondants ($\dot{\gamma}_{c2}$ et $\dot{\gamma}_{c3}$) qui délimitent la zone oscillante de la courbe d'écoulement.

Tableau 6.2 Conditions critiques d'apparition du défaut de type oscillant.

1	PEBDL 49851	90°	1,6	190	0	—	—	—	—	
2					4	0,38±0,02	607±13	0,37±0,02	1200±23	
3					8	0,38±0,01	608±13	0,36±0,01	1268±24	
4					16	0,38±0,01	558±12	0,38±0,01	1209±23	
5				207	0	—	—	—	—	
6					4	0,40±0,02	912±18	—	—	
7					8	0,39±0,01	956±19	0,38±0,01	1657±31	
8					16	0,39±0,01	831±17	0,38±0,01	1541±29	
9		180°	1,6	190	8	0,38±0,01	591±17	0,36±0,01	1413±35	
10					16	0,38±0,01	579±17	0,36±0,01	1230±35	
11				1,07	190	8	0,38±0,01	556±12	0,37±0,01	1618±27
12						16	0,38±0,01	533±11	0,37±0,01	1619±23
13	PEHD 2027	180°	1,07	190	8	0,42±0,01	1705±39	0,45±0,01	3743±77	
14					12	0,42±0,01	2010±45	—	—	
15					16	0,42±0,01	2115±47	0,45±0,01	368776±	
16	PEHD 4352N	180°	1,07	190	8	0,44±0,01	1831±42	0,40±0,01	3783±80	
17					12	0,42±0,01	1801±42	0,40±0,01	3840±81	
18					16	0,42±0,01	1732±40	0,40±0,01	3598±76	

On remarque, encore une fois, que les valeurs des contraintes σ_{c2} et σ_{c3} varient peu d'une expérience à l'autre tandis que celles des taux de cisaillement apparents $\dot{\gamma}_{c2}$ et $\dot{\gamma}_{c3}$ augmentent avec la température et semblent également dépendre du rapport L/D .

Ces résultats démontrent que l'apparition du défaut de type oscillant dépend essentiellement du niveau de contrainte à la paroi.

Pour le PEBDL, le glissement se généralise lorsque la contrainte atteint une valeur d'environ $0,38 \pm 0,01$ MPa et l'adhésion avec la paroi se rétabli à une contrainte légèrement inférieure ($0,37 \pm 0,01$ MPa). Ces contraintes sont un peu plus élevées avec les deux PEHD. Il est possible que cette différence entre les deux PEHD et le PEBDL soit, en partie, due à la grande différence de viscosité entre ces polymères. Comme il a été discuté au chapitre 5, pour une même contrainte de cisaillement à la paroi, le taux de cisaillement est beaucoup plus élevé avec les deux PEHD. Ce cisaillement à la paroi favorise l'orientation des chaînes dans le sens de l'écoulement et peut modifier l'interaction entre le polymère et la paroi. La structure moléculaire ou la présence d'additifs peut également influencer grandement l'initiation du glissement (Xing et Schreiber, 1996).

On a également estimé la valeur du cisaillement recouvrable S_R correspondant à l'apparition du défaut à partir des équations 3.1 et 3.2 (tableau 6.3).

Tableau 6.3 Cisaillement recouvrable critique correspondant à l'apparition du défaut de type oscillant.

PEBDL 49851	190	11620	$0,0106 \pm 0,0007$	$0,35 \pm 0,04$
	207	8690	$0,0076 \pm 0,0004$	$0,34 \pm 0,03$
PEHD 2027	190	2430	$0,0016 \pm 0,0004$	$0,28 \pm 0,08$
PEHD4352N	190	2480	$0,0016 \pm 0,0004$	$0,27 \pm 0,08$

Ainsi, les défauts de types peau de requin et oscillant surviennent pour une valeur de cisaillement recouvrable bien inférieure à 1. Tordella (1969), Petrie et Denn (1976) et Boudreaux et Cuculo (1978) avaient généralisé que les « distortions » de

l'extrudat (terme général utilisé dans l'article) survenaient pour une valeur de S_R comprise entre 1 et 10 (Larson, 1992). Les résultats obtenus rejettent donc cette hypothèse. Il semble également que le glissement survienne à une valeur de S_R plus faible avec les deux PEHD. Cependant, les incertitudes sur ces valeurs sont encore une fois trop grandes pour tirer une conclusion sur le rôle du cisaillement recouvrable dans l'apparition du défaut.

6.2.4 Mesures de vitesse et période d'oscillations

Le laser a été utilisé pour mesurer la vitesse de l'extrudat à la sortie de la filière. On peut ainsi suivre l'évolution du débit dans le temps et vérifier si celui-ci oscille en suivant les deux branches d'écoulement. On discutera dans un premier temps de la relation qui existe entre la vitesse de l'extrudat et le taux de cisaillement apparent. On présentera ensuite les mesures effectuées pour l'expérience #8r, puis on terminera cette section en présentant les résultats obtenus pour les expériences #1r à #7r.

a) Relation entre la vitesse et le taux de cisaillement apparent

Avant d'étudier l'écoulement dans la zone instable, on doit mesurer la vitesse de l'extrudat pour des conditions d'écoulement stables afin d'établir une corrélation entre les mesures de vitesse et le taux de cisaillement apparent à la paroi de la filière (calculé à partir du débit massique). Cette corrélation permet d'exprimer les mesures de vitesse en terme de taux de cisaillement apparent et facilite ainsi le suivi de l'écoulement le long de la courbe d'écoulement. La figure 6.5 présente les corrélations obtenues pour les expériences #4r (PEBDL, 190 °C, $D=1,6$ mm, $L/D=16$, entrée convergente), #6r (PEBDL, 190 °C, $D=1,6$ mm, $L/D=16$, entrée plate), #7r (PEBDL, 190 °C, $D=1,07$ mm, $L/D=16$, entrée plate) et #8r (PEBDL, 190 °C, $D=2$ mm, $L/D=24$, entrée plate).

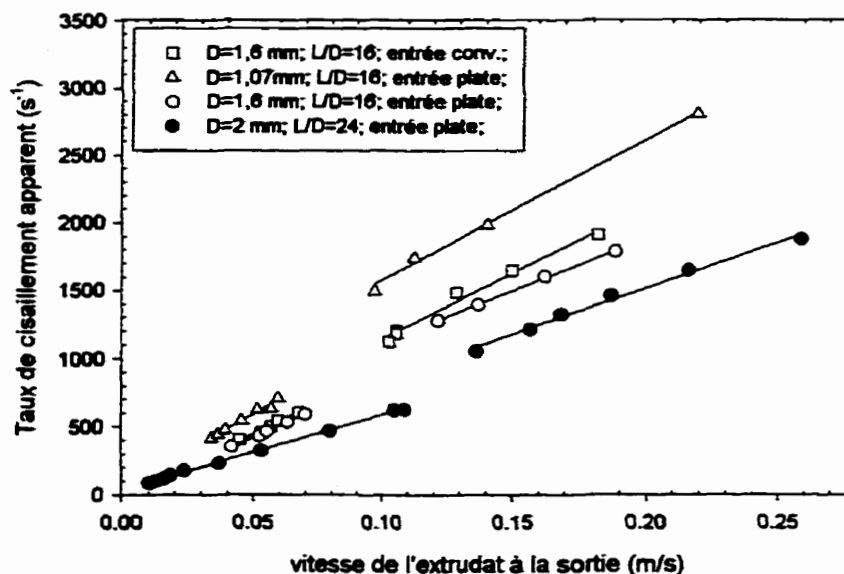


Figure 6.5 Taux de cisaillement apparent moyen à la paroi de la filière en fonction de la vitesse de l'extrudat mesurée à la sortie.

La vitesse de l'extrudat, mesurée à l'aide du laser (voir méthode de mesure à la section 5.1.2d), et le taux de cisaillement apparent peuvent être reliés par une relation linéaire du premier ordre de part et d'autre de la zone instable (les coefficients de la régression sont indiqués au tableau 6.4). On peut difficilement estimer le cisaillement lorsque la vitesse est comprise entre les deux branches. Il faut cependant rappeler que ces vitesses intermédiaires correspondent généralement à une transition entre les deux branches et la précision sur ces mesures n'est, par conséquent, pas importante.

Tableau 6.4 Coefficients de la régression linéaire du taux de cisaillement apparent à la paroi en fonction de la vitesse de l'extrudat à la sortie.

—	a_0	a_1	r^2	a_0	A_1	r^2
4r	-21	9259	0,976	159	9804	0,981
6r	-8	8561	0,998	350	7659	0,999
7r	38	11029	0,982	544	10329	0,994
8r	36	5499	0,999	167	6746	0,990

Maintenant que la corrélation entre la vitesse et le taux de cisaillement apparent est établie, on peut étudier l'écoulement dans la zone instable.

b) Résultats de l'expérience #8r ($D=2$ mm; $L/D=24$, entrée plate)

On présentera dans un premier temps les résultats obtenus pour l'expérience #8r, car un système d'acquisition de la pression à haute vitesse a été utilisé pour cette expérience et permet de suivre avec plus de précision le cycle d'écoulement du polymère.

La figure 6.6 présente la courbe d'écoulement du polymère associée à cette expérience (#8r). Les valeurs de $\dot{\gamma}_{c2}$ et $\dot{\gamma}_{c3}$ qui délimitent la zone instable sont respectivement égales à $625 \pm 24 \text{ s}^{-1}$ et $1050 \pm 38 \text{ s}^{-1}$. En imposant le taux de cisaillement moyen entre ces deux valeurs, le défaut de type oscillant apparaît. Les mesures de vitesse et de pression ont été répétées en augmentant progressivement le taux de cisaillement apparent moyen de $\dot{\gamma}_{c2}$ à $\dot{\gamma}_{c3}$.

La figure 6.7 présente les oscillations de pression et de vitesse mesurées pour un taux de cisaillement apparent moyen de $851 \pm 16 \text{ s}^{-1}$, soit environ au centre de la zone instable.

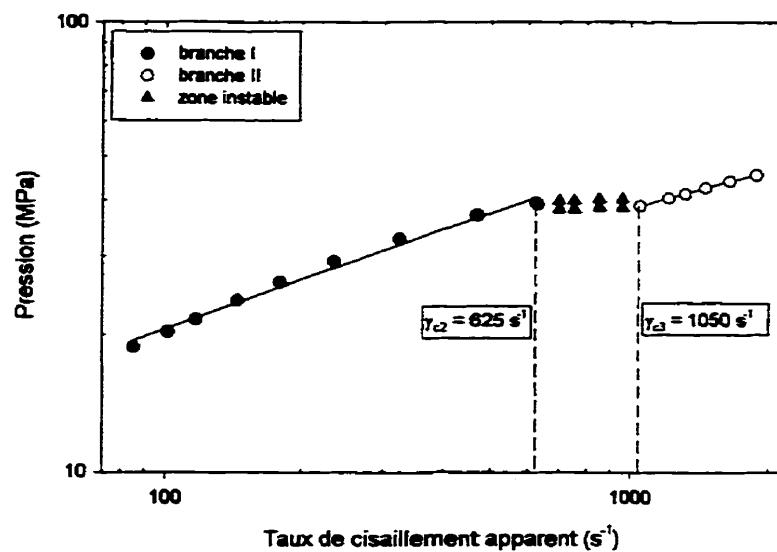


Figure 6.6 Évolution de la pression dans le réservoir en fonction du taux de cisaillement apparent moyen à la paroi (PEBDL, 190 °C, $D=2$ mm, $L/D=24$, entrée plate).

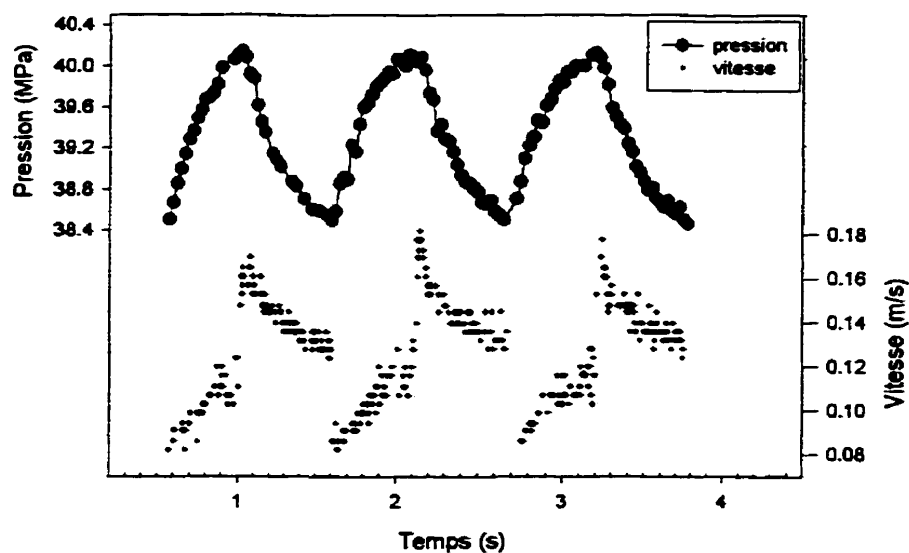


Figure 6.7 Évolution de la pression et de la vitesse de l'extrudat à la sortie de la filière (PEBDL, 190 °C, $D=2$ mm, $L/D=24$, entrée plate, $\dot{\gamma}_{moy}=851 s^{-1}$)

Ces résultats démontrent que l'écoulement dans la zone instable suit un cycle d'oscillation régulier où la pression et le débit (la vitesse) évoluent conjointement. Lors de la phase de compression dans le réservoir, on mesure une augmentation régulière de la vitesse de l'extrudat de 0,08 m/s jusqu'à une valeur critique d'environ 0,12 m/s. Rendue à ce point critique, la vitesse augmente subitement à une valeur de près de 0,18 m/s et la phase de décompression du réservoir est amorcée. La pression et la vitesse diminuent alors progressivement jusqu'à un deuxième point critique où la vitesse ressaute à une valeur d'environ 0,08 m/s. En posant l'hypothèse que l'écoulement suit les branches I et II de la courbe d'écoulement, on peut utiliser les corrélations présentées à la figure 6.5 pour estimer le taux de cisaillement apparent correspondant à ces vitesses. Ainsi, celui-ci augmente de 475 s^{-1} (0,29 g/s) à environ 690 s^{-1} (0,42 g/s) durant la phase de compression, puis diminue de 1380 s^{-1} (0,84 g/s) à environ 1050 s^{-1} (0,64 g/s) durant la phase de décompression. Ces valeurs sont approximatives, mais permettent tout de même de démontrer que l'écoulement oscille de part et d'autre de la valeur moyenne imposée (851 s^{-1} ou 0,52 g/s).

Les figures 6.8 et 6.9 présentent l'évolution de la pression et de la vitesse pour un taux de cisaillement apparent moyen de 752 s^{-1} et 959 s^{-1} respectivement. On constate que plus le taux de cisaillement apparent moyen se rapproche de la branche II, plus la phase de décompression est grande comparativement à celle de compression. La figure 6.10 illustre bien cet effet de $\dot{\gamma}_{\text{moy}}$ sur la forme des oscillations. Bien que le taux de cisaillement apparent imposé modifie la forme des oscillations, le cycle suivi par l'écoulement demeure le même comme le démontre la figure 6.11. Ces résultats semblent confirmer l'hypothèse que l'écoulement oscille entre les deux branches d'écoulement comme l'illustre la figure 6.1. La vitesse augmente le long de la branche I au fur et à mesure que la pression dans le réservoir augmente, jusqu'à ce que le glissement survienne à une contrainte critique (pression critique). La vitesse augmente alors subitement à pression constante, puis diminue le long de la branche II

dû à la décompression du réservoir. L'écoulement retourne ensuite à la branche I lors de l'adhésion à la paroi et le cycle recommence.

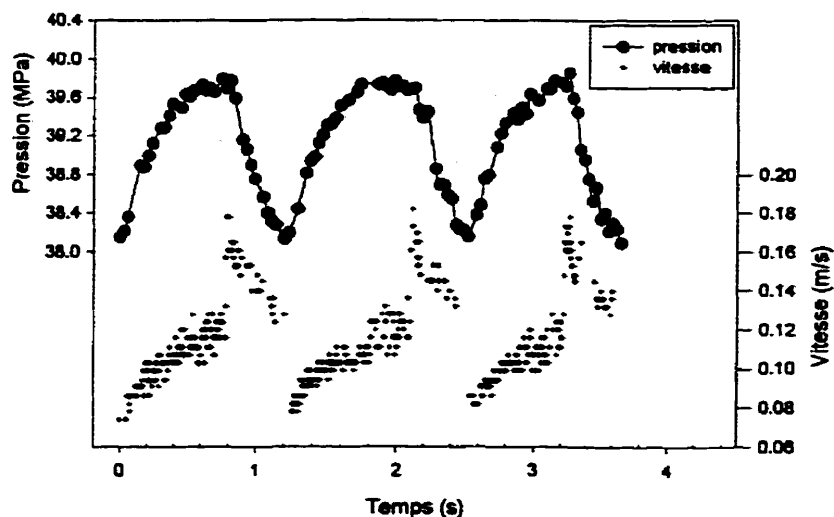


Figure 6.8 Évolution de la pression et de la vitesse de l'extrudat à la sortie de la filière (PEBDL, 190 °C, $D=2$ mm, $L/D=24$, entrée plate, $\dot{\gamma}_{\text{moy}}=752 \text{ s}^{-1}$).

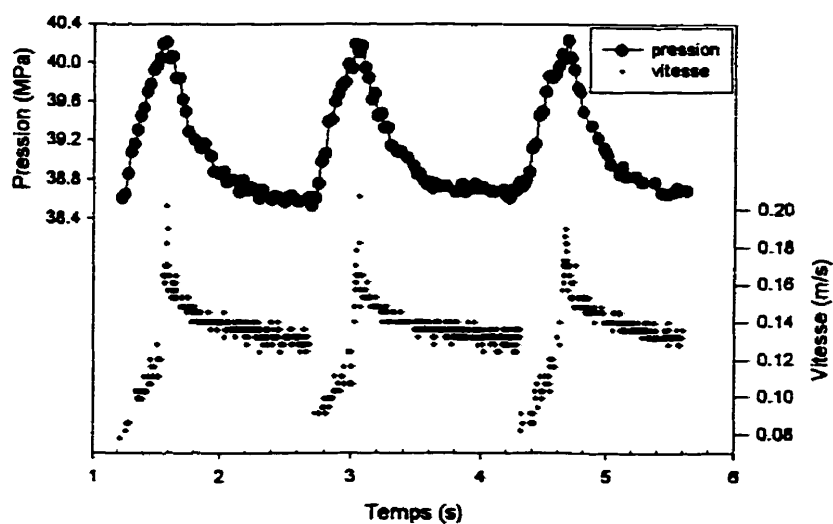


Figure 6.9 Évolution de la pression et de la vitesse de l'extrudat à la sortie de la filière (PEBDL, 190 °C, $D=2$ mm, $L/D=24$, entrée plate, $\dot{\gamma}_{\text{moy}}=959 \text{ s}^{-1}$).

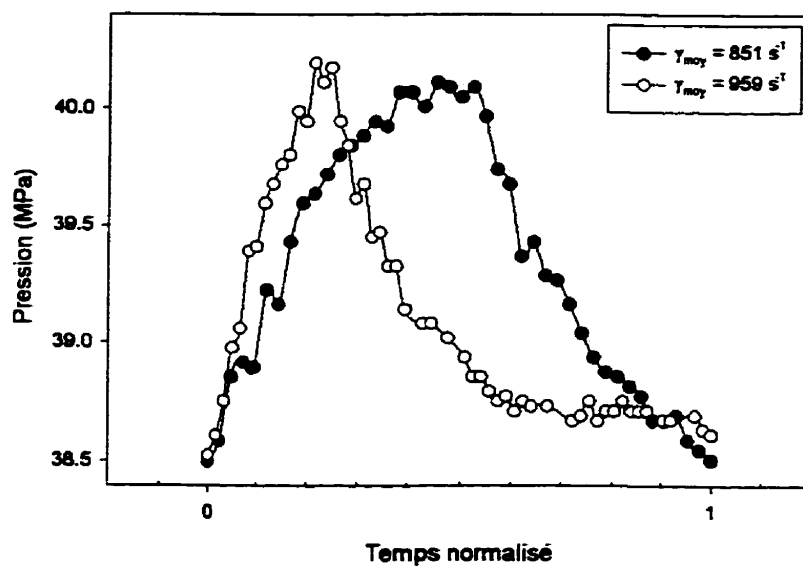


Figure 6.10 Profils de pression normalisés pour deux taux de cisaillement apparents imposés (PEBDL, 190 °C, $D=2$ mm, $L/D=24$, entrée plate).

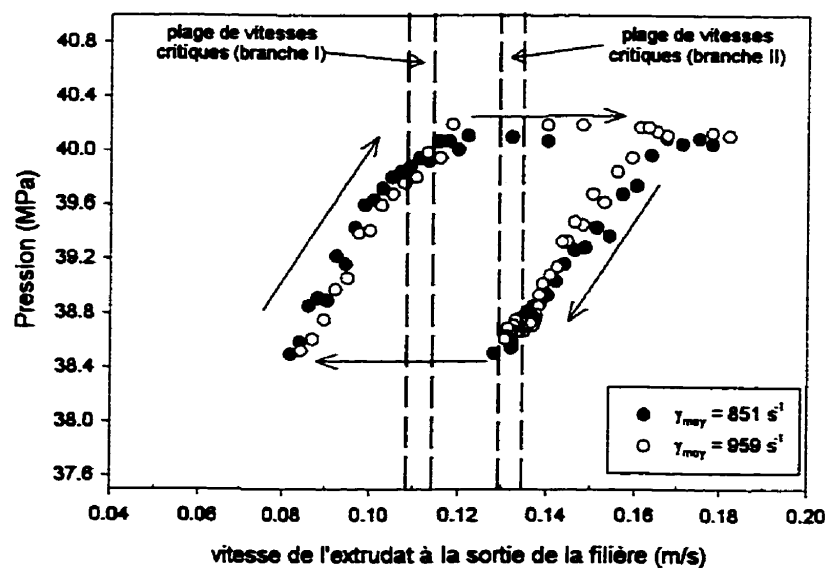


Figure 6.11 Évolution de l'écoulement dans la zone instable pour deux valeurs de taux de cisaillement apparent imposé (PEBDL, 190 °C, $D=2$ mm, $L/D=24$, entrée plate).

Le tableau 6.5 permet de comparer, pour différents taux de cisaillement apparent moyen, la durée de la phase de compression T_C et de décompression T_D du polymère dans le réservoir ainsi que la période totale du cycle T_T .

Tableau 6.5 Période d'oscillations en fonction du taux de cisaillement apparent moyen (PEBDL, 190 °C, $D=2$ mm, $L/D=24$, entrée plate).

$\dot{\gamma}_{\text{moy}} \text{ (s}^{-1}\text{)}$	$T_C \text{ (s)}$	$T_D \text{ (s)}$	$T_T \text{ (s)}$
752±14	0,76±0,02	0,46±0,02	1,22±0,04
851±16	0,49±0,02	0,58±0,02	1,07±0,04
959±18	0,41±0,02	1,08±0,03	1,47±0,05

Ainsi, une augmentation du taux de cisaillement apparent moyen a pour effet de diminuer le temps de compression et d'augmenter celui de décompression. La période totale semble également atteindre un minimum au centre de la zone instable.

Cet effet du débit imposé est tout simplement relié au taux de compression et de décompression du polymère dans le réservoir. Lorsque l'écoulement est sur la branche I, le débit dans la filière est inférieur au débit imposé et le polymère s'accumule dans le réservoir jusqu'à ce que la contrainte de cisaillement à la paroi soit suffisante pour initier le glissement. Le débit devient alors supérieur au débit imposé et le polymère décompresse dans le réservoir jusqu'à ce que l'écoulement retourne sur la branche I (adhésion à la paroi). La période d'oscillations dépend de la quantité de polymère qui peut s'accumuler dans le réservoir ainsi que de la vitesse à laquelle il s'accumule. Plus le débit imposé est faible, plus le taux d'accumulation dans le réservoir est faible de sorte qu'un temps plus long est nécessaire pour atteindre la pression critique qui initie le glissement. Par contre, une fois le glissement initié, la différence entre le débit dans la filière et le débit imposé devient très grande et le polymère décompresse rapidement (l'effet inverse est observé lorsque le débit imposé est près de la branche II).

La quantité de polymère qui s'accumule dans le réservoir durant la phase de compression, puis qui est évacuée durant la phase de décompression, dépend du volume du réservoir, de la compressibilité du polymère et de l'amplitude des oscillations de pression (équation 6.1).

$$\Delta M_A = \left. \frac{\partial \rho}{\partial P} \right|_{\bar{P}, \bar{T}} \Delta P_R V_R \quad (6.1)$$

L'amplitude des oscillations de pression mesurées durant l'écoulement correspond avec l'extrémité des branches I et II. On peut donc estimer le terme de pression à partir des valeurs de σ_{c2} et σ_{c3} (équation 6.2).

$$\Delta P_R \approx 4 (\sigma_{c2} - \sigma_{c3}) L / D \quad (6.2)$$

Le débit massique de compression moyen $\dot{Q}_C$ est estimé à partir du débit moyen mesuré lorsque l'écoulement est sur la branche I et du débit moyen imposé par l'extrudeuse. La valeur de $\dot{Q}_C$ peut être exprimée en termes de taux de cisaillement comme le démontre l'équation 6.3.

$$\dot{Q}_C = \frac{\bar{\rho} D^3 \pi}{32} (\dot{\gamma}_{\text{moy}} - \bar{\dot{\gamma}}_I) \quad (6.3)$$

où D est le diamètre de la filière, $\bar{\rho}$ représente la densité moyenne dans la filière et $\bar{\dot{\gamma}}_I$ représente le taux de cisaillement apparent moyen durant la phase de compression.

De la même façon, le débit de décompression $\dot{Q}_D$ lorsque l'écoulement est sur la branche II est égal à l'expression suivante.

$$\dot{Q}_D = \frac{\bar{\rho} D^3 \pi}{32} (\bar{\dot{\gamma}}_{II} - \dot{\gamma}_{moy}) \quad (6.4)$$

Le temps de compression T_C (ou le temps de décompression T_D) est tout simplement égal à la masse totale de polymère accumulé ΔM_A divisé par le débit de compression $\dot{Q}_C$ (ou le débit de décompression $\dot{Q}_D$) (équations 6.5 et 6.6).

$$T_C = \Delta M_A / \dot{Q}_C \quad (6.5)$$

$$T_D = \Delta M_A / \dot{Q}_D \quad (6.6)$$

En additionnant ces deux expressions, on obtient l'expression de la période totale T_T du cycle d'oscillation du défaut (équation 6.7).

$$T_T \approx \frac{128 L V_R \frac{\partial \rho}{\partial P} \Big|_{\bar{P}, \bar{T}} (\sigma_{c2} - \sigma_{c3})}{\pi \bar{\rho} D^4} \left(\frac{1}{\dot{\gamma}_{moy} - \dot{\gamma}_I} + \frac{1}{\dot{\gamma}_{II} - \dot{\gamma}_{moy}} \right) \quad (6.7)$$

Cette équation démontre d'abord que la période du défaut augmente avec le volume du réservoir. Également, en tracant cette équation (figure 6.12), on constate que la période est minimale lorsque le taux de cisaillement imposé est situé au centre de la zone instable, et augmente rapidement lorsqu'on s'approche de l'extrémité des branches d'écoulement.

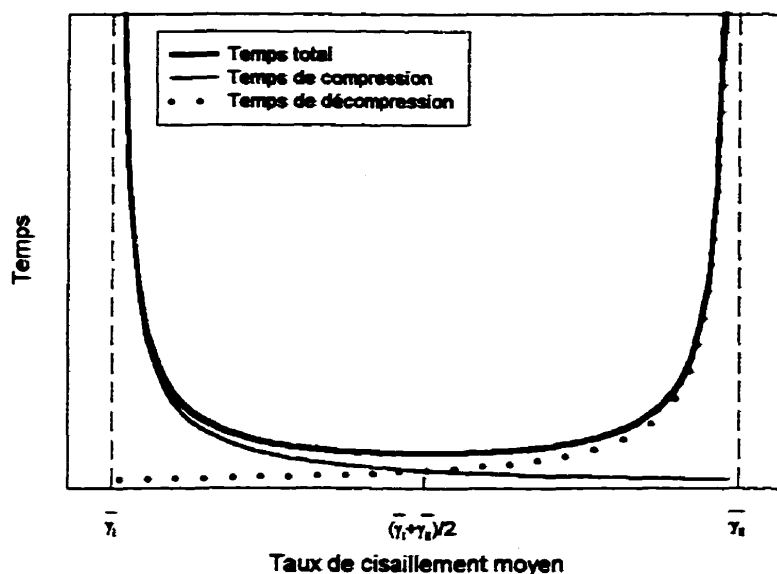


Figure 6.12 Évolution théorique de la période du défaut de type oscillant en fonction de la valeur du taux de cisaillement apparent moyen.

Étant donné que les oscillations de pression sont transmises le long du montage et sont même parfois ressenties le long de la vis d'extrusion, il est difficile d'estimer convenablement la valeur de V_R pour calculer une période théorique d'oscillations à partir de l'équation 6.7. On peut cependant estimer ce volume effectif à partir des mesures de périodes présentées au tableau 6.5. Le tableau 6.6 résume les valeurs des constantes utilisées dans l'équation 6.7. À partir de ces valeurs, on peut estimer le volume effectif du réservoir calculé pour chaque valeur du taux de cisaillement apparent moyen (tableau 6.7). Les résultats obtenus sont imprécis mais démontrent tout de même que le volume effectif de polymère qui est compressé durant le cycle d'oscillation est beaucoup plus grand que le volume réel du réservoir qui est d'environ 45 mL en incluant la vanne. Ceci justifie le fait que les oscillations de pression sont ressenties jusque dans la zone de pompage le long de la vis.

Tableau 6.6 Valeurs numériques des constantes utilisées dans le calcul du volume effectif du réservoir.

L/D	24
D (m)	0,002
$\Delta\sigma_c$ (MPa)	0,015±0,002
$\bar{\rho}$ (kg/m ³)	775±3
$\frac{\partial\rho}{\partial P}$ (kg/m ³ MPa)	0,66±0,01
$\bar{\gamma}_I$ (s ⁻¹)	585±15
$\bar{\gamma}_{II}$ (s ⁻¹)	1213±15

Tableau 6.7 Volume effectif du réservoir calculé à partir des mesures de période et du taux de cisaillement apparent moyen (PEBDL, 190 °C, $D=2$ mm, $L/D=24$, entrée plate).

$\dot{\gamma}_{\text{moy}}$ (s ⁻¹)	T_T (s)	V_R (mL)
752±14	1,22±0,09	96±28
851±16	1,07±0,06	105±29
959±18	1,47±0,14	142±51

Des mesures ont également été reprises avec différents volumes de réservoir. On observe une augmentation significative de la période lorsque le volume augmente. La figure 6.13 présente l'évolution de la période mesurée au centre de la zone instable en fonction du volume réel du réservoir (en incluant la vanne s'il y a lieu). On présente également dans cette figure les volumes théoriques correspondant à ces périodes (calculés à partir de l'équation 6.7).

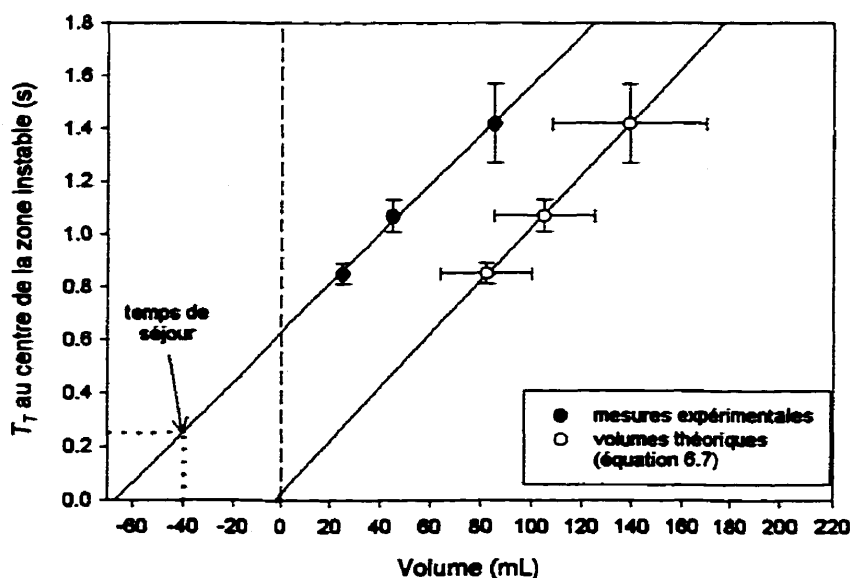


Figure 6.13 Période d'oscillations en fonction du volume du réservoir (PEBDL, 190 °C, $D=2$ mm, $L/D=24$, entrée plate).

Une relation linéaire semble relier les trois points. La pente des deux droites est sensiblement la même, mais la droite des données expérimentales ne tend pas vers zéro comme l'équation 6.7 le prévoit. Comme il a été mentionné, ceci est dû en partie au fait que les oscillations de pression se propagent en amont du réservoir et augmentent, par conséquent, le volume effectif de polymère compressé. Cependant, Durand et *al.* (1993) ont également obtenu des résultats semblables sur un rhéomètre capillaire. Ce phénomène n'a pas été expliqué jusqu'à présent, mais Kalika (1987) a proposé que la réadhésion du polymère ne se produit que lorsque tout le polymère concerné par le glissement a été expulsé hors de la filière. La période minimale est donc, selon lui, de l'ordre du temps de séjour du fluide dans la filière. Dans ce cas-ci, le temps de séjour moyen est d'environ 0,25 s. En extrapolant la droite jusqu'à cette valeur, on estime que le volume additionnelle de polymère compressé en amont du réservoir est d'environ 40 mL. Cette valeur est très approximative et des études plus approfondies devront être menées sur ce sujet.

c) Résultats des expériences #1r à #7r

Le volume effectif du réservoir ne peut être estimé à partir des expériences réalisées avec les filières de 1,07 mm et 1,6 mm, car la purge amorti les oscillations de pression. Les résultats obtenus avec ces filières permettent tout de même d'obtenir des informations importantes sur l'effet de la géométrie sur la période d'oscillations.

D'abord, la figure 6.14 présente l'évolution de la période du défaut en fonction du taux de cisaillement apparent moyen pour l'expérience #4 (PEBDL, 190 °C, $D=1,6$ mm, $L/D=16$, entrée convergente).

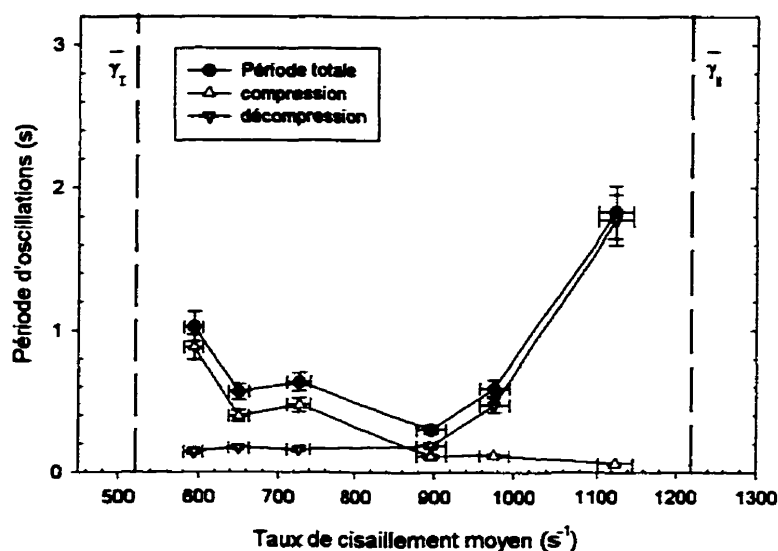


Figure 6.14 Évolution de la période du défaut de type oscillant en fonction de la valeur du taux de cisaillement moyen (PEBDL, 190 °C, $D=1,6$ mm, $L/D=16$, entrée convergente).

Les triangles pointant vers le haut sont associés à la phase de compression le long de la branche I, ceux pointant vers le bas correspondent à la phase de décompression (branche II), et les cercles noirs représentent la période totale.

L'effet du taux de cisaillement moyen sur la période correspond bien avec celui prévu par le modèle théorique (équation 6.7). On observe un minimum lorsque le taux de cisaillement moyen est situé au centre de la zone instable et la période augmente rapidement lorsqu'on s'approche de l'extrémité des branches d'écoulement. Les composantes de compression et de décompression évoluent également comme prévu. La composante de compression est faible lorsque le taux de cisaillement moyen est près de l'extrémité de la branche II, et augmente au fur et à mesure que le taux de cisaillement moyen s'approche de la branche I (effet inverse pour la composante de décompression).

Les périodes ne sont pas aussi bien définies avec les filières à entrée plate et les filières courtes ($L/D=4$). L'écoulement n'oscille pas entre deux valeurs de cisaillement constantes comme c'est le cas avec la filière convergente de rapport L/D égale à 16 (expérience #4). On discutera plus en détails de ces comportements à la section 6.3, mais on peut tout de même comparer l'ordre de grandeur des périodes mesurées au centre de la zone oscillante afin de vérifier l'effet du rapport L/D (tableau 6.8).

Tableau 6.8 Période d'oscillations du défaut de type oscillant en fonction des conditions opératoires (période mesurée au centre de la zone instable).

1r				0	---	---
2r	90° (conv)	1,6	190	4	892±18	0,04±0,01
3r				16	896±18	0,30±0,06
4r			207	16	1200±23	0,43±0,08
5r	180° (plate)	1,07	190	16	936±23	0,04±0,01
6r		1,6	190	8	873±17	0,03±0,01
7r				16	912±18	0,04±0,01

Ainsi, les résultats obtenus pour les expériences #2r et #3r semblent confirmer que la période augmente avec le rapport L/D . Par contre, l'effet est beaucoup moins apparent pour les expériences #6r et #7r. Cependant, comme il a été mentionné, les oscillations avec ces deux filières sont particulières (section 6.3.1).

Bien que les oscillations de pression pour ces sept expériences (#1r à #7r) n'ont pas été mesurées avec un système d'acquisition suffisamment rapide, les mesures de vitesses effectuées permettent tout de même de confirmer que le débit oscille tel que prévu.

D'abord, la figure 6.15 présente la distribution des mesures de vitesses, obtenues pour l'expérience #3r, pour un taux de cisaillement apparent moyen de 896 s^{-1} , soit au centre de la zone instable.

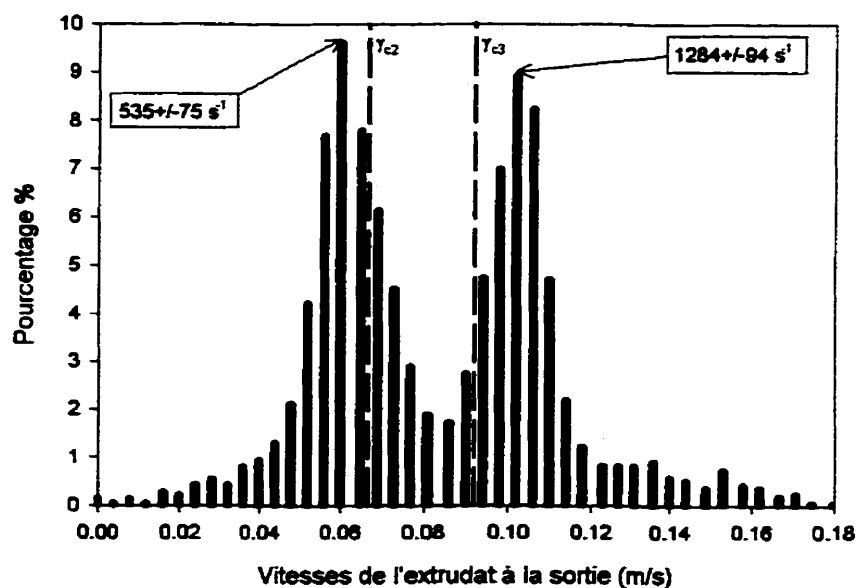


Figure 6.15 Distribution des mesures de vitesse de l'extrudat à la sortie de la filière (PEBDL, $190 \text{ }^{\circ}\text{C}$, $D=1,6 \text{ mm}$, $L/D=16$, entrée convergente, $\dot{\gamma}_{\text{moy}}=896 \text{ s}^{-1}$).

Les résultats démontrent clairement que le taux de cisaillement oscille entre deux valeurs situées de part et d'autre de la valeur moyenne ($896 \pm 18 \text{ s}^{-1}$). On observe deux pics de mesure qui correspondent à des taux de cisaillement apparents de $535 \pm 75 \text{ s}^{-1}$ et $1284 \pm 94 \text{ s}^{-1}$. En considérant les valeurs de $\dot{\gamma}_{c2}$ et $\dot{\gamma}_{c3}$ qui représentent l'extrémité des branches I et II, on constate que moins de 20% de mesures sont comprises entre ces deux valeurs. Cela démontre que l'écoulement se situe la plupart du temps sur l'une des deux branches d'écoulement.

La figure 6.16 présente l'évolution de la vitesse en fonction du temps pour la même valeur du taux de cisaillement apparent moyen ($896 \pm 18 \text{ s}^{-1}$).

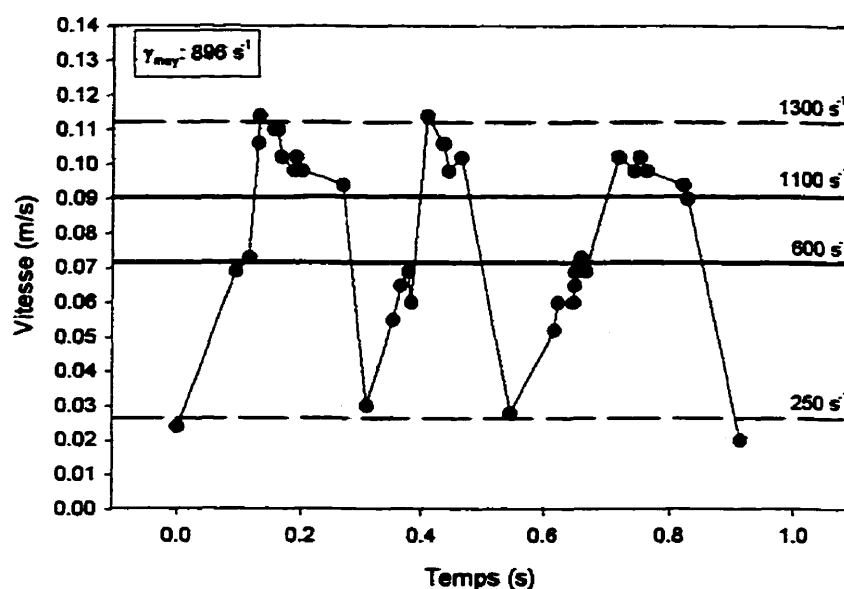


Figure 6.16 Évolution de la vitesse de l'extrudat à la sortie de la filière en fonction du temps (PEBDL, 190 °C, $D=1,6 \text{ mm}$, $L/D=16$, entrée convergente, $\dot{\gamma}_{\text{moy}}=896 \text{ s}^{-1}$).

On a utilisé les corrélations présentées à la figure 6.5 afin de pouvoir exprimer les vitesses en terme de taux de cisaillement apparent moyen. La courte période des oscillations limite le nombre de mesures que le laser peut réaliser durant un cycle d'écoulement, principalement lorsque l'écoulement est sur la branche I où les mesures sont plus difficiles. Ces résultats appuient tout de même l'hypothèse que l'écoulement suit un cycle tel que proposé à la figure 6.1. La vitesse augmente d'abord jusqu'à une certaine valeur critique (écoulement le long de la branche I), puis saute subitement à une valeur très élevée (saut de la branche I à la branche II). La vitesse diminue ensuite jusqu'à une deuxième valeur critique (écoulement le long de la branche II) où elle chute rapidement pour revenir à son niveau initial (saut de la branche II à la branche I).

En exprimant les vitesses en terme de taux de cisaillement apparent, on constate que le taux de cisaillement atteint, lors du saut sur la branche II, une valeur qui correspond à la contrainte σ_{c2} sur la branche II, soit environ 1300 s^{-1} . De la même façon, le taux de cisaillement devrait atteindre une valeur minimale d'environ 450 s^{-1} lors du retour sur la branche I (cette valeur correspond à la contrainte σ_{c3} sur la branche I). Or, celui-ci atteint momentanément une valeur beaucoup plus faible lors du saut, puis remonte rapidement à la valeur prédite. Ce phénomène peut être dû à la réorganisation du profil de vitesse lors de l'adhésion du polymère à la paroi. En effet, lorsqu'il y a un glissement à la paroi, l'écoulement est de type bouchon et il y a très peu de cisaillement dans le polymère. Lors de l'adhésion, un certain temps est nécessaire pour que le profil de vitesse se rétablisse dans la filière. Le taux de cisaillement tombe donc momentanément à une valeur très faible, puis remonte rapidement à la valeur prédite lorsque l'écoulement en cisaillement est rétabli.

Ce ralentissement important, lors du saut, cause une diminution du gonflement lors du passage du segment lisse au segment à peau de requin (figure 6.17). Cette diminution survient lorsque la surface passe d'un état lisse à rugueux.

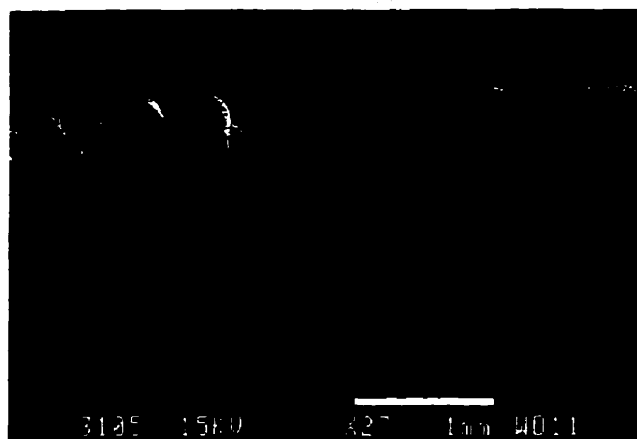


Figure 6.17 Défaut de type oscillant; Passage du segment lisse au segment à peau de requin (PEBDL, 190 °C, $D=1,6$ mm, $L/D=16$, entrée convergente, $\dot{\gamma}_{moy}=896$ s⁻¹).

Les résultats obtenus avec la filière de 1,07 mm de diamètre (exp. #12) sont moins concluants (figure 6.18 et 6.19).

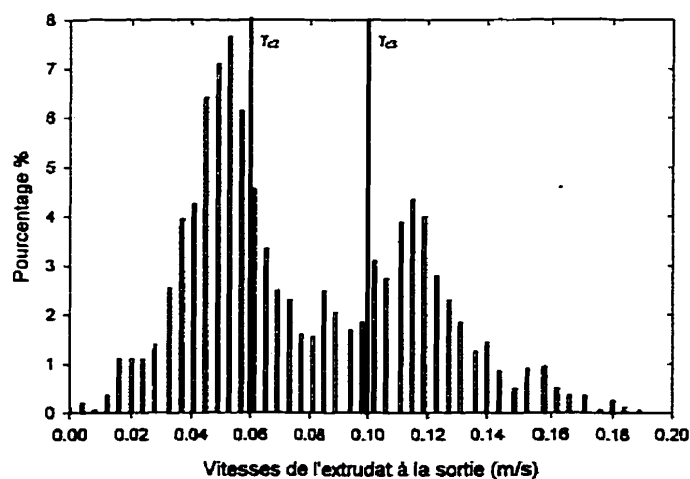


Figure 6.18 Distribution des mesures de vitesse de l'extrudat à la sortie de la filière (PEBDL, 190 °C, $D=1,07$ mm, $L/D = 16$, entrée plate, $\dot{\gamma}_{moy}=936$ s⁻¹).

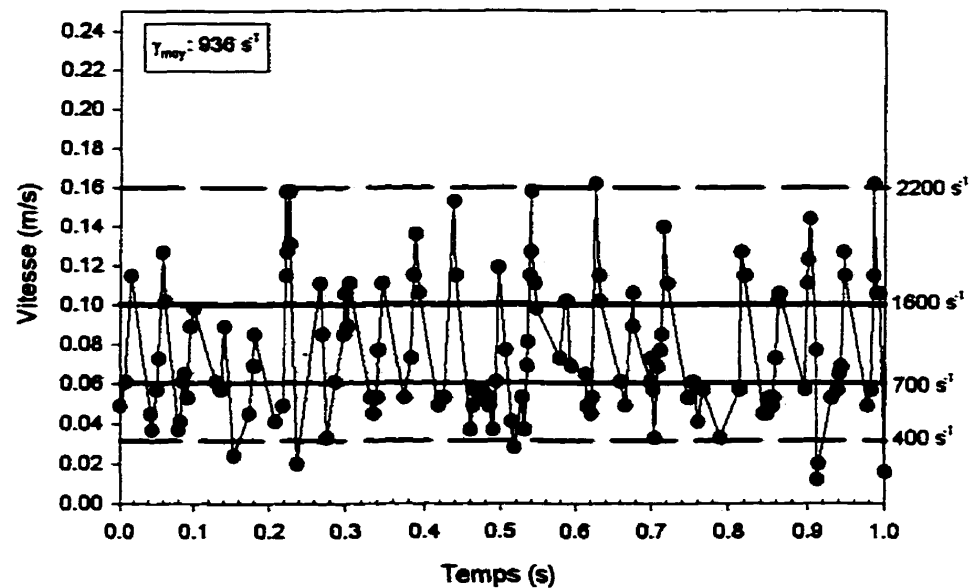


Figure 6.19 Évolution de la vitesse de l'extrudat à la sortie de la filière en fonction du temps (PEBDL, 190 °C, $D=1,07$ mm, $L/D = 16$, entrée plate, $\dot{\gamma}_{moy}=936$ s⁻¹).

L'écoulement oscille entre les deux branches d'écoulement de façon très rapide (période moyenne de 0,04 s) et les oscillations ne sont pas régulières. Il faut cependant rappeler que la purge peut avoir un effet important avec ces filières. Ces mesures démontrent tout de même que les sauts surviennent généralement près des valeurs critiques indiquées par les lignes noirs continues. Également, la vitesse maximale atteinte est de 0,16 m/s et correspond à un taux de cisaillement apparent d'environ 2200 s⁻¹ (figure 6.5). Cette valeur est près de celle prédite à la figure 6.1 (taux de cisaillement associé à une contrainte égale à σ_{c2} sur la branche II).

Ainsi, ces mesures de vitesse ont permis de renforcer l'hypothèse que le débit oscille en remontant la branche I, puis en redescendant la branche II, tel que proposé dans la littérature. Également, les mesures de vitesse, lors du retour sur la branche I, appuient l'hypothèse que ce retour est dû à l'adhésion du polymère à la surface.

6.3 Effets des conditions opératoires

En plus du taux de cisaillement imposé, la géométrie de la filière et la température influencent le comportement du polymère dans la zone instable. Les sections 6.3.1 à 6.3.4 présentent respectivement l'effet de la géométrie d'entrée, du diamètre, de la température et du rapport L/D .

6.3.1 Géométrie d'entrée

L'angle d'entrée n'a pas vraiment d'influence sur l'ampleur de la zone instable. La valeur des contraintes et des taux de cisaillement apparents critiques sont sensiblement les mêmes avec les filières à entrée plate et convergente (tableau 6.2). Cependant, le comportement dans la zone instable est différent. Avec la filière convergente de rapport L/D de 16, le défaut se présente comme une succession de segments lisses et à peau de requin bien définis. L'écoulement oscille entre les branches I et II de façon régulière en remontant la branche I, puis en redescendant la branche II. Par contre, avec une géométrie d'entrée plate, le défaut devient très irrégulier lorsque le taux de cisaillement imposé augmente. Les figures 6.20 et 6.21 présentent l'aspect de l'extrudat dans la zone instable pour des taux de cisaillement moyens de $590 \pm 12 \text{ s}^{-1}$ et $1124 \pm 22 \text{ s}^{-1}$ respectivement (le sens d'écoulement est exceptionnellement vers la gauche pour ces deux photos). À 1124 s^{-1} , le segment « lisse » est très perturbé et se confond avec la peau de requin. On peut tout de même le repérer en localisant la diminution du diamètre qui caractérise le retour sur la branche I à la droite de la figure.



Figure 6.20 Défaut de type oscillant (PEBDL, 190 °C, $D=1,6$ mm, $L/D=16$, entrée plate, $\dot{\gamma}_{\text{moy}}=590 \text{ s}^{-1}$).

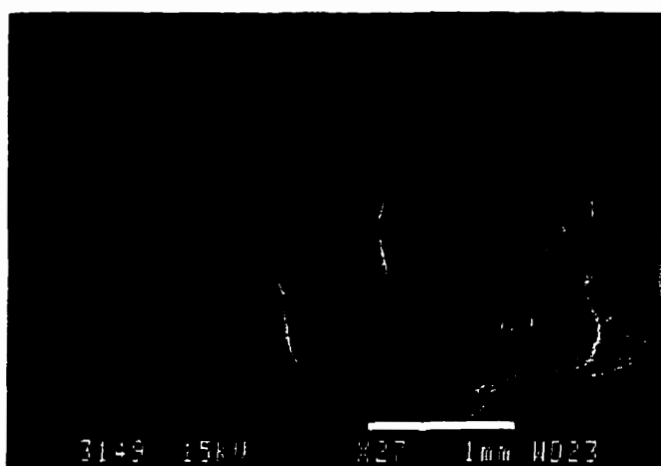


Figure 6.21 Défaut de type oscillant (PEBDL, 190 °C, $D=1,6$ mm, $L/D=16$, entrée plate, $\dot{\gamma}_{\text{moy}}=1124 \text{ s}^{-1}$).

Le profil de vitesse associé à cet échantillon est présenté à la figure 6.22. On constate que l'écoulement n'oscille plus entre deux valeurs fixes comme c'est le cas avec la filière convergente (voir figure 6.16). La vitesse se maintient à une valeur moyenne de 0,115 m/s, ce qui correspond à un taux de cisaillement compris dans la

zone instable (figure 6.5). Le fait qu'on mesure occasionnellement une chute importante de la vitesse et un rétrécissement du diamètre démontre que l'écoulement à 0,115 m/s est de type bouchon. En effet, comme il a été mentionné, la chute de vitesse est due au fait qu'un certain temps est nécessaire pour que l'écoulement en cisaillement se rétablisse lorsque l'adhésion à la paroi survient. Cependant, une fois que la vitesse a chuté, celle-ci augmente rapidement jusqu'à une valeur de plus de 0,16 m/s, puis se stabilise à nouveau à 0,115 m/s.

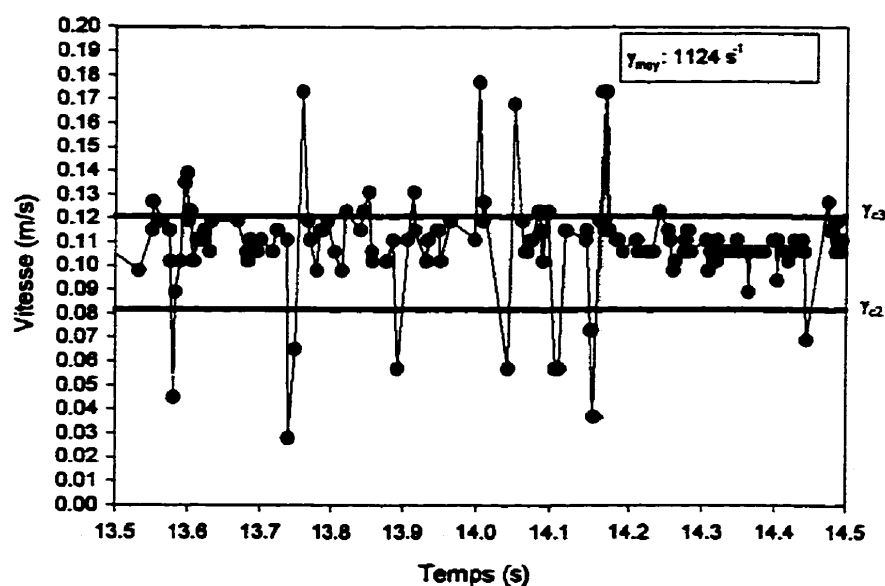


Figure 6.22 Évolution de la vitesse de l'extrudat à la sortie de la filière en fonction du temps (PEBDL, 190 °C, $D=1,6$ mm, $L/D=16$, entrée plate, $\dot{\gamma}_{moy}=1124 \text{ s}^{-1}$).

Ce comportement du polymère avec une filière à entrée plate peut être dû aux contraintes élongationnelles importantes que subit le polymère à l'entrée de la filière. Ces contraintes deviennent très grandes lors de l'accélération et peuvent causer une rupture du polymère. L'extrudat présente alors une surface très perturbée. Il est

cependant difficile d'expliquer le fait que la vitesse se maintienne à une valeur intermédiaire entre les deux branches d'écoulement.

Ces résultats confirment les travaux de Hatzikiriakos et Dealy (1992a) qui rapportent eux aussi que la géométrie d'entrée affecte l'aspect de l'extrudat, mais n'influence pas les conditions d'apparition. Wang et *al.* notent également un effet semblable de la géométrie d'entrée.

Il est à noter en terminant qu'on n'observe pas d'effet de l'entrée avec la filière à entrée plate de 2 mm de diamètre et de rapport L/D de 24. Ceci est dû au fait que le temps de séjour moyen dans cette filière est suffisant (environ 0,25 s) pour permettre au polymère de relaxer (voir section 5.3.1).

6.3.2 Diamètre

On n'observe pas vraiment d'effet du diamètre sur la contrainte critique d'apparition du défaut. D'ailleurs, il n'y a pas de consensus à ce sujet dans la littérature. Blyer et Hart, 1970 avaient noté une augmentation de σ_{C2} avec le diamètre. Par contre, Wang et *al.* (1993) ont utilisé une filière à deux canaux d'écoulement de même rapport L/D , mais de diamètre différent et ils ont observé que le glissement survenait dans le canal de grand diamètre en premier.

Le diamètre influence principalement l'écoulement du polymère sur la branche II. Comme il a été mentionné à la section 6.2.1, plus le diamètre est petit, plus la branche II est repoussée vers des valeurs de taux de cisaillement apparent plus élevées. Ceci est dû au fait que l'écoulement sur cette branche est caractérisé par un glissement important à la paroi. On observe donc une zone instable plus large avec les filières de 1,07 mm de diamètre (figure 6.1). Cependant, cet élargissement de la zone instable ne semble pas avoir d'influence sur la période du défaut (tableau 6.8).

L'aspect du défaut avec les filières de 1,07 mm de diamètre est semblable à celui observé avec les filières à entrée plate. Lorsque le taux de cisaillement imposé est faible, on observe de petits segments lisses semblables à celui présenté à la figure 6.20. Au fur et à mesure que le taux de cisaillement imposé est augmenté, le segment lisse devient chaotique et difficile à distinguer du segment à peau de requin. Cet effet du diamètre sur l'aspect de l'extrudat peut également être dû à une fracture du polymère à l'entrée de la filière lorsque l'écoulement saute sur la branche II. Comme il a été mentionné, une diminution du diamètre a pour effet d'augmenter le débit sur la branche II. Le taux de déformation à l'entrée est, par conséquent, plus important et peut causer une rupture du polymère (l'augmentation du rapport de contraction favorise également l'augmentation des contraintes élongationnelles).

6.3.3 Température

Le comportement du polymère dans la zone instable à 207°C est semblable à celui observé à 190°C. L'écoulement oscille de façon régulière en remontant la branche I et en redescendant la branche II. L'extrudat présente une succession de segments lisses et à peau de requin bien définis. On note toutefois que la zone instable est déplacée vers des valeurs de cisaillement plus élevées (tableau 6.2). Cette observation a également été faite par plusieurs auteurs auparavant (Weill, 1978 ; Vinogradov et *al.*, 1984, Lyngaae-Jorgensen et Marcher, 1985, Beaufils et *al.*, 1989). Cependant, on n'observe pas de rétrécissement de cette zone comme le rapportent certains auteurs (Ui et *al.*, 1964 ; Myerholtz, 1967 ; Torregrosa et *al.*, 1981 ; Utracki et Gendron, 1984 ; Venet, 1996).

Malgré les incertitudes, on note que les contraintes critiques σ_{c1} et σ_{c2} sont légèrement plus élevées à 207°C (tableau 6.2). La contrainte σ_{c1} passe de

$0,38 \pm 0,01$ MPa à $0,40 \pm 0,01$ MPa et σ_{c2} passe de $0,36 \pm 0,01$ MPa à $0,38 \pm 0,01$ MPa. Ces résultats appuient ceux obtenus par la plupart des auteurs dans la littérature.

Finalement, la période des oscillations augmente également légèrement avec la température, mais les incertitudes élevées ne permettent pas de tirer une conclusion significative.

6.3.4 Rapport L/D

Il est difficile d'évaluer correctement l'influence du rapport L/D sur la contrainte critique d'apparition du défaut, car son effet est masqué par l'incertitude associée aux corrections d'entrée. En considérant le fait que le défaut est dû à un glissement à la paroi, l'augmentation de la pression avec le rapport L/D devrait améliorer le contact entre le polymère et la paroi et retarder ainsi le glissement (Hatzikiriakos et Dealy, 1992a). Cependant, on n'observe pas de tendance générale des contraintes σ_{c1} et σ_{c2} en fonction du rapport L/D (tableau 6.2). Les résultats obtenus ne permettent donc pas de vérifier cette hypothèse.

L'ampleur de la zone instable augmente légèrement avec le rapport L/D et se déplace vers des valeurs de taux de cisaillement plus faibles comme le démontre la figure 6.23. Cette observation a également été rapportée par plusieurs auteurs (Ui et al., 1964 ; Metzger et Hamilton, 1964 ; Den Otter, 1970 ; Ballenger et al., 1971 ; Vinogradov et al., 1972b ; El Kissi et Piau, 1990 ; Durand et al., 1993).

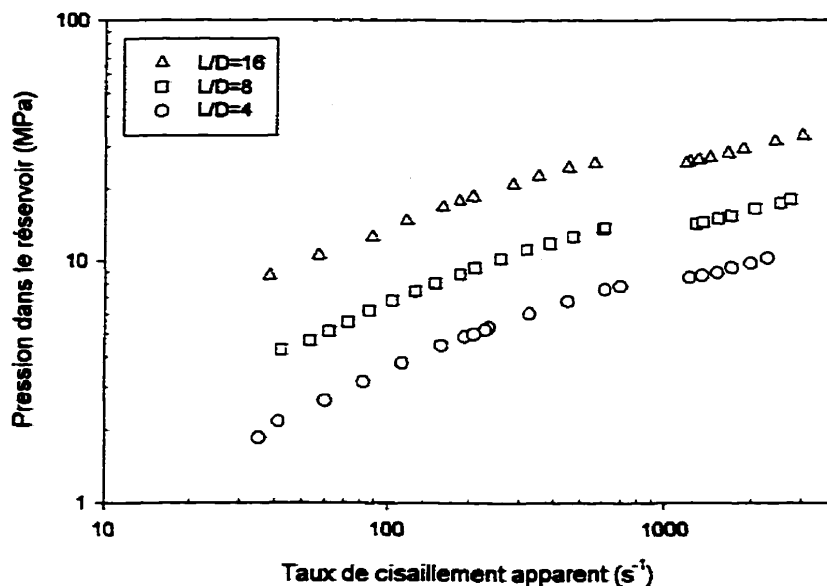


Figure 6.23 Pression dans le réservoir en fonction du taux de cisaillement apparent (PEBDL, 190 °C, 1,6 mm, $L/D=16$).

Le rapport L/D a également une influence importante sur la période du défaut. Plus la filière est courte, plus les oscillations sont rapides. La période mesurée au centre de la zone instable avec la filière de rapport L/D de 4 est près de huit fois inférieure à celle mesurée avec la filière de rapport L/D de 16 ($0,04 \pm 0,01$ s comparativement à $0,30 \pm 0,06$ s). Par conséquent, l'extrudat présente une succession de segments lisses et à peau de requin de très courte longueur (figure 6.24).

Il est à noter en terminant que le défaut de type oscillant disparaît avec la filière orifice ($L/D=0$). On n'observe pas de discontinuité de la courbe d'écoulement et l'extrudat présente seulement le défaut de type peau de requin.

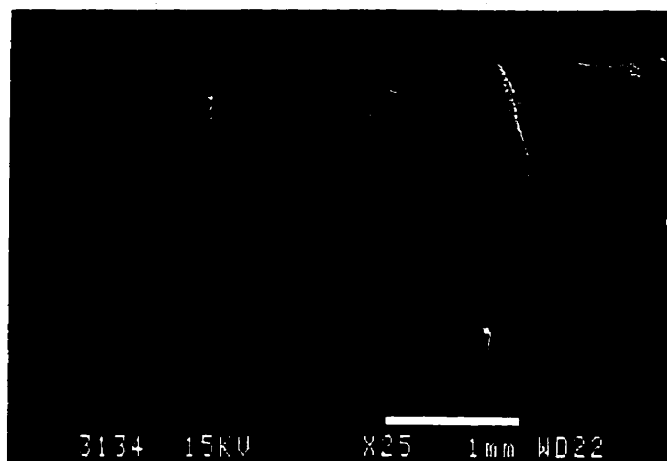


Figure 6.24 Défaut de type oscillant (PEBDL, 190 °C, $D=1,6$ mm, $L/D=4$, entrée convergente, $\dot{\gamma}_{\text{moy}}=994 \text{ s}^{-1}$).

La section suivante présente le défaut de type oscillant très particulier du PEHD DMDC-6400.

6.4 Instabilité d'écoulement du PEHD DMDC-6400

Les instabilités d'écoulement du polyéthylène haute densité DMDC-6400 de Pétrumont ont été étudiées en France dans le cadre d'un stage de recherche. Les expériences ont été réalisées avec un appareil nommé Rhéoplast qui permet un précisaillement de la matière (le mode de fonctionnement de l'appareil et la démarche opératoire suivie sont présentés à l'annexe C). On a observé avec ce polymère un défaut de type oscillant très particulier. Un rapport détaillé des résultats obtenus a déjà été rédigé précédemment et on résumera dans cette section le comportement général observé.

6.4.1 Description du comportement général du polymère

Comme la plupart des polymères flexibles linéaires, la courbe d'écoulement est composée de deux branches stables séparées par une zone instable (figure 6.25).

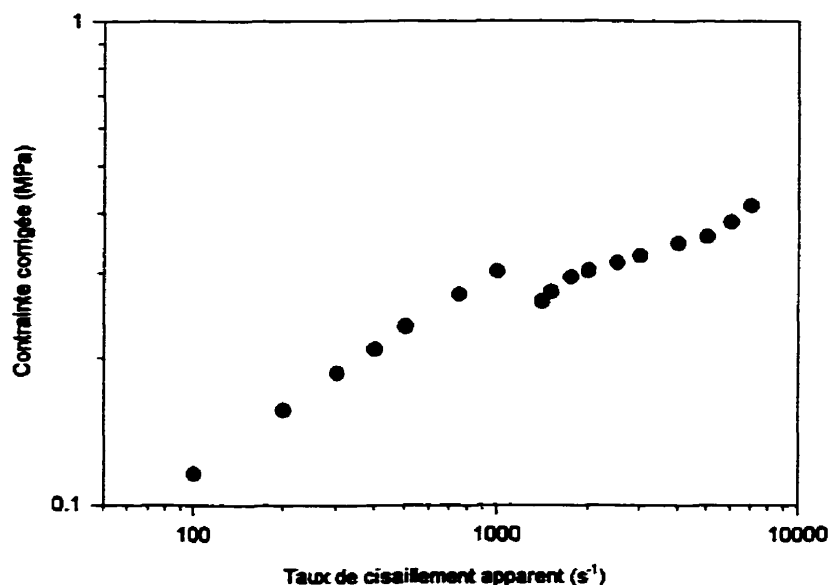


Figure 6.25 Courbe d'écoulement du polyéthylène haute densité DMDC-6400 ($190\text{ }^{\circ}\text{C}$, $D=1,39\text{ mm}$, $L/D=16$).

Lorsque le cisaillement imposé se situe le long de la branche I, l'écoulement est stable et l'extrudat présente un aspect lisse dont la rugosité augmente légèrement avec le cisaillement. Il n'y a cependant pas de formation de peau de requin.

Le défaut de type oscillant apparaît lorsque la contrainte à la paroi atteint une valeur d'environ $0,32\text{ MPa}$, ce qui correspond à un taux de cisaillement apparent de 1000 s^{-1} avec la filière de $1,39\text{ mm}$ et de rapport L/D de 16. Trois comportements distincts sont observés dans la zone instable selon le taux de cisaillement imposé (figure 6.26).

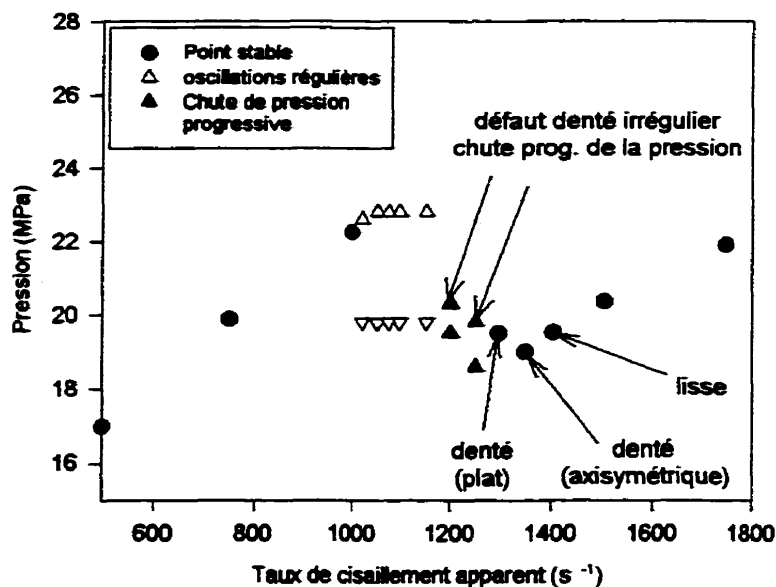


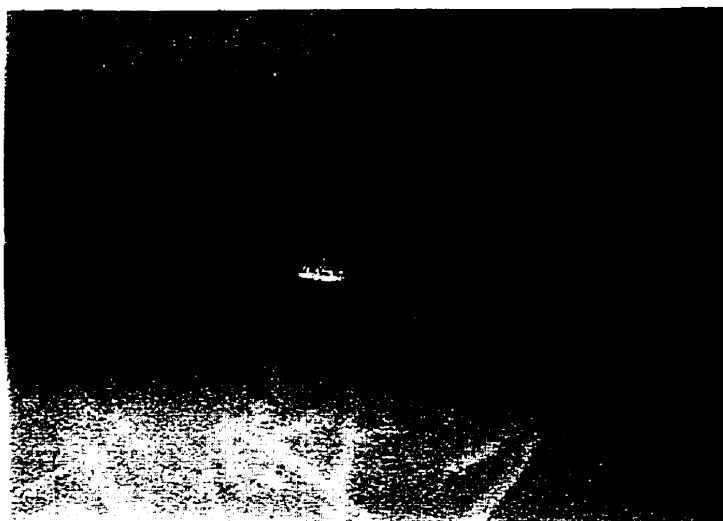
Figure 6.26 Comportement du PEHD DMDC-6400 dans la zone instable en fonction du taux de cisaillement imposé (190 °C, $D=1,39$ mm, $L/D=16$).

Lorsque celui-ci se situe au début de la zone instable, on observe de grandes oscillations régulières de la pression. L'extrudat présente alors une alternance morphologique telle que présentée à la figure 6.27. Lorsque la pression augmente, la surface est mat et correspond avec celle observée le long de la branche I (figure 6.27a). Lors du saut en débit, on observe un défaut qu'on a surnommé « défaut denté » qui ressemble au défaut hélicoïdal observé pour des polymères branchés ou à fort encombrement stérique (figure 6.27b). Celui-ci disparaît rapidement lorsque la pression diminue le long de la branche II pour donner à l'extrudat un aspect très lisse (figure 6.27c). Le passage de l'aspect lisse à mat (figure 6.27d) correspond au retour de l'écoulement sur la branche I et peut être accompagné de quelques perturbations. La pression remonte ensuite et le cycle recommence.

a)



b)



c)



d)



Figure 6.27 Cycle morphologique de l'extrudat au début de la zone instable (190 °C, $D=1,39$ mm, $L/D=16$).

En augmentant le taux de cisaillement imposé à une valeur d'environ 1200 s^{-1} , on observe une diminution de l'amplitude des oscillations. L'extrudat présente alors seulement l'aspect lisse et l'aspect denté. L'écoulement ne semble donc plus retourner sur la branche I, mais oscille entre deux points difficilement localisables.

Lorsque le taux de cisaillement imposé atteint environ 1250 s^{-1} , l'extrudat présente un défaut denté continu et il n'y a plus d'oscillation de pression. Curieusement, l'extrudat prend alors une forme très aplatie dès sa sortie de la filière (figure 6.28).



Figure 6.28 Forme aplatie du défaut de type denté à un taux de cisaillement de 1250 s^{-1} (190°C , $D=1,39\text{mm}$, $L/D=16$).

Finalement, à la fin de la zone instable (1350 s^{-1}), il n'y a aucune oscillation de pression et le défaut denté est semblable au défaut de type hélicoïdal (figure 6.29).



Figure 6.29 Forme axisymétrique du défaut de type denté à un taux de cisaillement de 1350 s^{-1} (190°C , $D=1,39\text{mm}$, $L/D=16$).

Sur la branche II (à partir de 1400 s^{-1}), l'extrudat est très lisse jusqu'à une valeur de cisaillement élevée (environ 3000 s^{-1}) où un défaut de surface semblable au défaut à peau de requin devient perceptible et s'amplifie avec le cisaillement.

Bien que certaines particularités soient observées d'une expérience à l'autre, ceci résume assez bien le comportement général observé sur le Rhéoplast pour des filières à entrée convergente.

6.4.2 Discussion

Le mécanisme qui est à l'origine de ces instabilités est difficile à comprendre. Le défaut hélicoïdal est habituellement dû à une instabilité au niveau de l'entrée (section 3.5), causée par la présence de zones de recirculation. Cependant, il est difficile de concevoir qu'un écoulement de recirculation puisse se former avec une filière convergente. Le défaut peut également être initié dans la filière, car la discontinuité de la courbe d'écoulement est interprétée par plusieurs comme un glissement en paroi. En observant attentivement les photos prises au microscope, on remarque que la surface de l'extrudat passe d'abord de l'aspect mat à l'aspect lisse avant que les ondulations (hélices) apparaissent. Le glissement en paroi semble donc être l'élément déclencheur de l'instabilité.

Afin de comprendre la formation du défaut « denté », on peut maintenant se baser sur le mécanisme souvent proposé pour expliquer le défaut hélicoïdal des polymères ramifiés. Comme il a été mentionné dans la littérature, les polymères ramifiés forment une zone stagnante à l'entrée de la filière et seul le polymère situé dans la zone centrale du convergent s'écoule dans la filière (cette zone stagnante doit cependant être très petite avec une filière convergente). Lorsque le débit devient plus grand, il y a une déstabilisation de l'écoulement à l'entrée qui permet au polymère situé dans la zone stagnante d'être évacué. Ce type d'instabilité à l'entrée donne à l'extrudat une forme d'hélice. Dans le cas présent, on peut supposer que la déstabilisation de l'écoulement est due à l'augmentation soudaine du débit lorsque le glissement survient. Par contre, on s'explique difficilement le fait que cette instabilité s'atténue rapidement lorsque le débit devient trop grand, alors que dans le cas des polymères ramifiés, le défaut s'aggrave avec une augmentation du taux de cisaillement jusqu'à mener au défaut chaotique. En fait, le défaut « denté » semble apparaître pour une plage de débit restreinte correspondant à l'extrémité de la branche II de la courbe d'écoulement. Lorsque le taux de cisaillement imposé est situé dans cette plage, les oscillations cessent

et l'instabilité à l'entrée persiste pour donner à l'extrudat une forme d'hélice de façon continue.

Il est également difficile d'expliquer la forme aplatie qu'adopte l'extrudat au centre de la zone instable. Celle-ci est observée pour une plage restreinte de cisaillement et l'extrudat retrouve rapidement sa forme axisymétrique lorsque le taux de cisaillement augmente.

Wang et *al.* (1993) ont également observé des instabilités très particulières avec des polyéthylènes. Ils ont entre autre observé un défaut qui ressemblait étrangement au défaut « denté » de forme aplatie que présente le PEHD DMDC-6400. Ils ont proposé que cette instabilité était due à une distribution de masse comportant un petit pic à haute masse moléculaire. Également, comme il a été mentionné dans la revue de la littérature, Pudjijanto et Denn (1994) ont observé un comportement particulier du PEBDL dans la zone oscillante. Ils ont découvert une plage de cisaillement compris dans la zone oscillante pour laquelle l'écoulement se stabilise et l'extrudat présente un aspect relativement lisse. Selon eux, cette « île stable », qui existe pour une mince plage de valeurs de température, pourrait être reliée à une modification de la conformation des chaînes près de la paroi « mesophase transition » due aux contraintes élevées. Ainsi, il est possible qu'une distribution de masse comportant quelques chaînes de haute masse moléculaire puisse favoriser cette conformation des chaînes à la paroi et explique la disparition des oscillations dans la zone instable.

6.5 Résumé

Les résultats obtenus appuient fortement l'hypothèse que le défaut de type oscillant est dû à un phénomène de glissement/adhésion ("slip-stick") du polymère à la paroi. D'abord, la courbe d'écoulement des polymères étudiés est composée de deux

branches stables séparée par une zone instable. On a observé un effet important du diamètre sur la branche II de la courbe d'écoulement. Celle-ci se déplace vers des valeurs de taux de cisaillement plus élevées lorsque le diamètre de la filière diminue. En utilisant la méthode de Mooney, on a estimé une vitesse de glissement à la paroi d'environ 0,15 m/s. Également, l'observation des échantillons au microscope électronique à balayage met en évidence une augmentation soudaine de la rugosité de la surface et une diminution du diamètre lors du passage du segment lisse au segment à peau de requin. Cette transition implique également une chute instantanée de la vitesse à une valeur très basse, suivie d'une légère augmentation. Ce phénomène appuie l'hypothèse que cette transition est due à l'adhésion du polymère à la paroi. En effet, l'écoulement sur la branche II est de type bouchon et on peut penser qu'un certain temps est nécessaire pour rétablir l'écoulement en cisaillement lors de l'adhésion du polymère à la paroi.

La transition du segment à peau de requin au segment lisse semble être initiée au sommet d'une crête du défaut de type peau de requin, puis se propage sur l'ensemble de la filière. Il semble donc que le mécanisme de formation de la crête soit à l'origine du glissement généralisé. Celui-ci survient généralement à une contrainte de cisaillement à la paroi d'environ $0,38 \pm 0,01$ MPa avec le PEBDL. Cette valeur est un peu plus élevée avec les deux PEHD ($0,42 \pm 0,01$ MPa). Il est possible que cet écart soit en partie dû au taux de cisaillement plus élevé à la paroi avec les deux PEHD qui favorise l'orientation des chaînes dans le sens de l'écoulement.

Les mesures de vitesse et de pression ont confirmé l'hypothèse que l'écoulement oscille en remontant la branche I, puis en redescendant la branche II. Lors des sauts, le taux de cisaillement varie brusquement, à pression constante, pour atteindre l'autre branche d'écoulement. La forme des oscillations dépend grandement de la valeur du taux de cisaillement moyen imposé dans la filière. Cependant, le cycle d'écoulement demeure le même.

Un modèle théorique a été développé pour prévoir l'effet de la géométrie de la filière et du taux de cisaillement imposé sur la période des oscillations. Celui-ci prévoit une période minimale lorsque le taux de cisaillement apparent imposé est au centre de la zone instable et une augmentation rapide lorsque celui-ci se rapproche de l'extrémité des branches d'écoulement. Le modèle prévoit également une augmentation proportionnelle au rapport L/D et au volume du réservoir. Les mesures expérimentales confirment bien les effets prévus du rapport L/D , du volume du réservoir et du taux de cisaillement apparent imposé sur la période, mais la période mesurée expérimentalement ne tend pas vers zéro lorsque le réservoir est petit comme le prévoit le modèle.

L'effet des conditions opératoires a également été étudié. En résumé, la contrainte critique d'apparition du défaut dépend peu de la géométrie de la filière et augmente légèrement avec la température. L'aspect du défaut est plus chaotique avec une entrée plate ainsi qu'avec un diamètre plus petit. Finalement, le rapport L/D influence surtout la période du défaut, plus celui-ci est petit, plus la période est courte. Le défaut disparaît pour une filière orifice. Il est à noter aussi que le défaut peut disparaître lorsque des additifs favorisant le glissement à la paroi sont ajoutés au polymère.

En terminant, on a étudié le comportement très particulier du PEHD DMDC-6400 dans la zone instable. Ce polymère présente trois comportements différents dans cette zone selon le taux de cisaillement imposé. On observe, entre autres, la formation d'un défaut semblable au défaut de type hélicoïdal qui adopte une forme aplatie pour une mince plage de taux de cisaillement. Ce phénomène est difficile à expliquer et démontre toute la complexité des phénomènes rhéologiques. Chaque polymère présente des comportements qui lui sont propres et qui dépendent essentiellement de sa structure moléculaire. Il est donc important d'avoir une approche

générale dans l'étude des instabilités d'écoulement et de comparer plusieurs polymères du même type avant de tirer des conclusions définitives.

7. RECOMMANDATIONS

Les résultats obtenus dans l'étude des défauts de types peau de requin et oscillant ont permis d'apporter des éléments nouveaux dans la compréhension de ces deux instabilités. Les observations au microscope laissent supposer que le défaut de type peau de requin serait dû à un phénomène de glissement/adhésion du polymère à la paroi près de la sortie. Dans l'étude du défaut de type oscillant, les mesures de vitesse et de pression de l'extrudat à la sortie de la filière ont démontré que l'écoulement oscille en suivant les deux branches stables de la courbe d'écoulement. À partir de ces études, des travaux futurs permettront de confirmer ces hypothèses et de mieux comprendre la formation de ces défauts. Les projets suivants sont proposés.

Dans l'étude du défaut de type peau de requin:

- Vérifier l'influence des propriétés de la paroi de la filière près de la sortie sur la formation du défaut (augmenter la rugosité, recouvrir la région de la sortie d'un agent favorisant le glissement, etc.).
- Mesurer la vitesse de la surface de l'extrudat le plus près possible de la sortie de la filière pour tenter de mesurer les fluctuations de vitesse.

Dans l'étude du défaut oscillant:

- Répéter les mesures de vitesse dans la zone instable en utilisant un polymère présentant une longue période d'oscillation afin de bien suivre l'évolution du débit et de la pression dans le temps (utiliser une filière de rapport L/D très grand et augmenter le volume du réservoir).

- Étudier la compression du polymère dans le réservoir et développer un modèle pour prévoir le cycle d'écoulement en fonction des conditions opératoires (utiliser plusieurs capteurs de pression le long du réservoir pour suivre la propagation des variations de pression.
- Étudier l'effet de la recirculation du polymère sur le défaut.

8 CONCLUSION

L'étude des instabilités d'extrusion est un sujet de recherche très vaste. Plusieurs phénomènes, parfois très surprenants, peuvent survenir selon la nature du polymère et les conditions d'écoulement. Un grand nombre d'études ont été publiées jusqu'à présent sur le sujet et la première partie du rapport a permis de faire une revue complète du sujet. En résumé, on peut classer les défauts en deux grandes familles, soient les défauts des polymères flexibles linéaires et ceux des polymères ramifiés. En général, les polymères linéaires présentent une courbe d'écoulement discontinue et les principaux défauts observés sont ceux de type peau de requin, oscillant et chaotique. Les polymères ramifiés ont une courbe continue et présentent généralement le défaut de type hélicoïdal et chaotique. Différents mécanismes ont été proposés pour expliquer ces instabilités et plusieurs sujets demeurent encore en litige.

Les défauts de types peau de requin et oscillant ont été étudiés dans le cadre de ce travail de recherche. Les expériences ont été menées sur une extrudeuse monovis et on a utilisé des filières capillaires.

Dans l'ensemble, les objectifs fixés ont été pleinement atteints. Dans un premier temps, la quantification du défaut de type peau de requin, au microscope électronique à balayage, a permis de suivre son évolution en fonction de la contrainte de cisaillement à la paroi. On a ainsi déterminé la contrainte critique correspondant à l'apparition et au début d'organisation du défaut. À partir de l'observation de l'aspect de la surface de l'extrudat à fort grossissement, on a proposé un mécanisme de formation du défaut basé sur un phénomène de glissement/adhésion localisé près de la sortie de la filière. Cette hypothèse s'approche de celle proposée par Barone et *al.* (1998). Cependant, les mesures de vitesse à la sortie de la filière n'ont pu le confirmer. En utilisant différentes

filières, on a pu déterminer l'influence de la géométrie d'écoulement sur le développement du défaut. Ainsi, on a observé peu d'effet de la géométrie sur les conditions critiques d'apparition. On a noté que l'amplitude et la période du défaut augmentent de façon générale avec l'angle d'entrée, le diamètre et le rapport L/D de la filière. Également, on a confirmé qu'une augmentation de la température a pour effet de repousser la formation du défaut à des contraintes plus élevées.

Dans l'étude du défaut de type oscillant, un laser à effet Doppler et un système d'acquisition de la pression à haute vitesse ont permis d'étudier le cycle d'écoulement du polymère dans la zone instable. Ces mesures ont permis, pour la première fois, de démontrer que l'écoulement oscille en suivant les deux branches d'écoulement stable comme il est souvent proposé dans la littérature. L'étude de la période des oscillations en fonction du débit imposé a confirmé le rôle de la compressibilité du polymère dans la formation du défaut. La géométrie de la filière influence peu les conditions d'apparition. L'aspect du défaut est cependant plus chaotique avec un angle d'entrée important et un petit diamètre et la période des oscillations est grandement influencée par le rapport L/D . Finalement, l'augmentation de la température a aussi pour effet d'augmenter la contrainte critique d'apparition du défaut.

En terminant, cette étude a permis d'enrichir les connaissances dans le domaine des instabilités d'extrusion du polyéthylène. Les résultats obtenus ont permis de vérifier plusieurs hypothèses et d'en émettre quelques-unes qui devront être vérifiées dans le cadre de travaux futurs.

9. BIBLIOGRAPHIE

AGASSANT, J.-F., AVENAS, P., SERGENT, J.-Ph., VERGNES, B. et VINCENT, M. (1996). La mise en forme des matières plastiques, 3^e édition, Paris, 509-532.

AJJI, A., VARENNES, S., SCHREIBER, H.P. et DUCHESNE, D. (1993). Flow Defects in Linear Low Density Polyethylene Processing : Instrumental Detection and Molecular Weight Dependence , Pol. Eng. Sci., **33** (23), 1524.

AKAY, G. (1983). J. Non-Newt. Fluid Mech., **13**, 309.

ANASTASIADIS, S.H. et HATZIKIRIAKOS, S.G. (1998). The work of adhesion of polymer/wall interfaces and its association with the onset of wall slip », J. Rheol., **42**(4).

ARAI, T. (1988). Flow Instability of Polymer Melts, Xth Inter. Congr. On Rheol., Sydney.

ATWOOD, B. T. (1983). Wall Slip and Extrudate Distortion of High Density Polyethylene, Dept. Chem. Eng., Princeton University, Princeton.

ATWOOD, B. T. et SCHOWALTER, W. R. (1989). Measurements of Slip at the Wall During Flow of High-Density Polyethylene through a Rectangular Conduit , Rheol. Acta, **28**, 134.

BAGLEY, E. B. (1957). End Correction in the Capillary Flow of Polyethylene , J. Appl. Phys., **28**, 624.

BAGLEY, E. B., CABBOT, I. M. et WEST, D. C. (1958). Discontinuity in the Flow Curve of Polyethylene , J. Appl. Phys., **29**, 109.

BAGLEY, E. B. (1961). The Separation of Elastic and Viscous Effects in Polymer Flow , Trans. Soc. Rheol., 5, 355.

BAIK, J.J. et TZOGANAKIS. C. (1998). A Study of Extrudate Distortion in Controlled-Rheology Polypropylenes , Polym. Eng. Sci., 38.

BALLENGER, T. F., CHEN, I. J. , CROWDER, J. W. ,HAGLER, G. E. ,BOGUE, D. C. et WHITE, J. L. (1971). Polymer Melt Flow Instabilities in Extrusion: Mechanism, Material and Geometric Variables , Trans. Soc. Rheol., 15, 195.

BARTOS, O. (1964). J. Appl. Phys., 35, 2767.

BARONE, J.R., PLUCKTAVEESAK, N. et WANG, S.Q. (1998). Interfacial molecular instability mechanism for sharkskin phenomenon in capillary extrusion of linear polyethylenes , J. Rheol., 42,(4).

BEAUFILS, P., VERGNES, B. et AGASSANT, J. F. (1989). Characterization of the Shaskins Defect and its Development with the Flow Conditions , Inten. Polymer Processing, 4, 78.

BENBOW, J. J. et LAMB, P. (1963)..Melt Fracture in Molten Polymers , SPE Trans., 3, 7.

BERGEM, N. (1976). Visualization Studies of Polymer Melt Flow Anomalies in Extrusion », VIIth Int. Congress on Rheology (Swedish Society of Rheology, Gothenburg), 50.

BERSTED, B.H. (1993). Refinement of the Converging Flow Method of Measuring Extensional Viscosity in Polymers , Polym. Eng. Sci., 33, 1079.

BINDING, D. M. (1988). An Approximate Analysis for Contraction and Converging Flows , J. Non-Newt. Fluid Mech., 27, 173.

BINDING, D. M. et WALTERS, K. (1988). On the Use of Flow Through a Contraction in Estimating the Extensional Viscosity of Mobile Polymer Solutions , J. Non-Newt. Fluid Mech., 30, 233.

BLYLER, L. L. et HART, A. C. (1970). Capillary Flow Instability of Ethylene Polymer Melts , Polym. Eng. Sci., 10, 193.

BOUDREAUX, E. et CUCULO, J. A. (1977-78). Polymer Flow Instability: A Review and Analysis , J. Macromol. Sci., C16(1), 39.

BRIZITSKY, V. I., VINOGRADOV, G. V., ISAEV, A. I. et PODOLSKY, Y. Y. (1976). J. Appl. Polym. Sci., 20, 25.

CARREAU, P. J., CHHABRA, R. P. et DE KEE, D. (1996). Polymer Rheology : Principles and Applications, Montréal.

CHEN, K. et JOSEPH, D. D. (1992). Elastic Short Wave Instability in Extrusion Flows of Viscoelastic Liquid , J. Non-Newt. Fluid Mech., 42, 189.

COGSWELL, F. N. (1972). Converging Flow of Polymer Melts in Extrusion Dies , Polym. Eng. Sci., 12, 64.

COGSWEEL, F. N. (1972). Measuring the Extensional Rheology of Polymer Melts , Trans. Soc. Rheol., 16, 383.

COGSWELL, F. N. (1977). Stretching Flow Instabilities at the Exits of Extrusion Dies , J. Non-Newt. Fluid Mech., 2, 37.

COGSWELL, F. N. (1981). Polymer Melt Rheology. A guide for Industrial Practice (Plastics and Rubber Institute: London, Engl.), John Wiley & Sons, New York.

CONSTANTIN, D. (1984). Linear-Low-Density Polyethylene Melt Rheology: Extensibility and Extrusion Defects , Polym. Eng. Sci., 24, 268.

COOK, D. G., COOKE, R. et RUDIN, A. (1989). Use of Chilled Die Lips to Improve Production Rate in Extrusion of PE , Intern. Pol. Proc., 4 (2), 73.

DEIBER, J. A. et SCHOWALTER, W. R. (1991). On the Comparison of Simple Non-Monotonic Constitutive Equations With Data Showing Slip of Well-Characterized Polybutadienes , J. Non-Newt. Fluid Mech., 40, 141.

DENN, M. M. (1990). Issue in Viscoelastic Fluid Mechanics , Ann. Rev. Fluid Mech., 22, 18.

DENNISON, M. T. (1967). Flow Instability in Polymer Melts : a Review , Trans. J. Plast. Inst., 803.

DEN OTTER, J. L. (1970). Mechanism of Melt Fracture , Plast. Polym., 38, 155.

DEN OTTER, J. L. (1971). Some Investigation of Melt Fracture , Rheol. Acta, 10, 200.

DE SMEDT, C. et NAM, S. (1987). The Processing Benefits of Fluoroelastomer Application in LLDPE , Plast. Rubber Proc. Appl., **8**, 11.

DOI, M. et EDWARDS, S. F. (1979). Dynamics of Concentrated Polymer Systems. Part 4. Rheological Properties , J. Chem. Soc., Faraday Trans II, **75**, 32.

DRDA, P. P. et WANG, S. Q. (1995). Stick-Slip Transition at Polymer Melt/Solid Interfaces , Phy. Review Letters, **75** (14), 2698.

DURAND, V., VERGNES, B., AGASSANT, J.-F., BENOIT, E. et KOOPMANS, R. J. (1993). Etude du défaut oscillant des polyéthylènes haute densité , Cahiers de Rhéologie XI, **3-4**, 161.

EGGEN, S. et HINRICHSSEN, E. L. (1996). Swell and Distortions of High-Density Polyethylene Extruded Through Capillary Dies , Polym. Eng. Sci., **36**, 410.

EL KISSI, N. , (1989). Ecoulement de polymères fondus dans des contractions brusques. Etude des écoulements secondaires et des défauts d'extrusion. Mise en évidence et modélisation du glissement à la paroi , Thèse de doctorat, Institut National Polytechnique de Grenoble

EL KISSI, N. et PIAU, J. M. (1990). The Different Capillary Flow Regimes of Entangled Polydimethylsiloxane Polymers: Macroscopic Slip at the Wall, Hysteresis and Cork Flow , J. Non-Newtonian Fluid Mech., **37**, 55.

EL KISSI, N., LÉGER, L, PIAU, J. M. et MEZGHANI, A. (1994). Effect of Surface Properties on Polymer Melt Slip and Extrusion Defects , J. Non-Newt. Fluid Mech., 52, 249.

FUJIYAMA, M. et KAWASAKI, Y. (1991). J. Appl. Polym. Sci., 42, 467.

GIBSON, A. G. (1988). Converging Dies Rheological Measurement, A. A. Collyer et D. W. Clegg, eds. Elsevier App. Science Pub. , Chap. 3, pp. 49-92.

HAN, C. D. et LAMONTE, R. R. (1971). A Study of Polymer Melt Flow Instabilities in Extrusion , Polym. Eng. Sci., 11, 385.

HATZIKIRIAKOS, S. G. et DEALY, J. M. (1991). Wall Slip of Molten High Density Polyethylene I, Sliding Plate Rheometer Studies , J. Rheol., 35, 497.

HATZIKIRIAKOS, S. G. et DEALY, J. M. (1992). Wall Slip of Molten High Density Polyethylene II, Capillary Rheometer Studies , J. Rheol., 36, 703.

HATZIKIRIAKOS, S. G. et DEALY, J. M. (1992). Role os Slip and Fracture in the Oscillating Flow of HDPE in a Capillary , Soc. Plastics Eng. ANTEC, Tech. Papers, 38, 1743.

HATZIKIRIAKOS, S. G., STEWART, C. W. et DEALY, J. M. (1993). Effect of Surface Coating on Wall Slip of LLDPE , Inter. Pol. Proc., VIII, 30.

HATZIKIRIAKOS, S. G. et DEALY, J. M. (1994). Start-Up Pressure Transient in a Capillary Rheometer, Polym. Eng. Sci., 34, 493.

HATZIKIRIAKOS, S. G., HONG, P., HO, W. et STEWART, C.W. (1995). The Effect of Teflon Coating in Polyethylene Capillary Extrusion, J. Appl. Polym. Sci., 55, 595.

HERRAINEN, M. et SAVOLAINEN, A. (1984). Correlation Between Melt Fracture and Ultrasonic Velocity », Rheol. Acta, 23, 461.

HOWELLS, E. R. et BENBOW, J.J. (1962) Flow Defects in Polymer Melts, Trans. J. Plast. Inst., 30, 240.

HUNTER, J. K. et SLEMROD, M. (1983) Viscoelastic Fluid Flow Exhibiting Hysteretic Phase Changes, Phys. Fluids, 26, 2345.

KALIKA, D. S. et DENN, M.M. (1987) Wall Slip and Extrudate Distortion in Linear Low-Density Polyethylene, J. Rheol., 31, 815.

KAMIDE, K., INAMOTO, Y. et OHNO, K. (1966)- Inter. Chem. Eng., 6, 340.

KARBASHEWSKI, E., RUDIN, A., KALE, L., TCHIR, W.J. et SCHREIBER, H.P. (1995). Effect of Polymer Structure on the Onset of Polymer Processing Defects in Linear Low Density Polyethylene, Pol. Eng. Sci., 35 (23), 1864.

KAZATCHKOV, I. B., HATZIKIRIAKOS, S. G. et STEWART, C. W. (1995). Extrudate Distortion in the Capillary/Slit Extrusion of a Molten Polypropylene , Polym. Eng. Sci., 35, 1864.

KOLKA, R. W., MALKUS, D. S., HANSEN, M. G., JERLEY, G. R. et WORTHING, R. A. (1988). Spurt Phenomena of the Johnson-Segalman Fluid and Related Models , J. Non-Newt. Fluid Mech., 29, 303.

KURTZ, S. J. (1984). Die Geometry Solutions to Sharkskin Melt Fracture , Advances in Rheology, B. Mena, A. Garcia-Rejon, C. Rangel Nafaile, eds., UNAM press, Mexico, Vol. 3, p.399

KURTZ, S. J. (1991). The Dynamics of Sharkskin Melt Fracture in LLDPE , 7th PPS Meeting, Hamilton

KURTZ, S. J. (1992). The Dynamics of Sharkskin Melt Fracture : Effect of Die Geometry , Proc. Xith Int. Congr. On Rheol., Brussels, Belgium, 377.

KURTZ, S. J. (1994). Visualization of Exit Fracture in the Sharkskin Process , PPS, 10, 8 .

LAI, S. I. et KNIGHT, G. W. (1992). Melt Flow Instability of Linear Polyethylenes with Very Broad Molecular Weight Distribution , Proc. Xith Inter. Congr. On Rheol., Brussels, Belgium, 380.

LARSSON, R. G. (1992). Instabilities in Viscoelastic Flows , Rheol. Acta, 31, 213.

LEONOV, A. I. (1984). A Linear Model of the Slick-Slip Phenomena in Polymer Flow in Rheometers , Rheol. Acta, 23, 591.

LI, H., HÜRLIMANN, H. P. et MEISSNER, J. (1986). Two Separate Ranges for Shear Flow Instabilities with Pressure Oscillations in Capillary Extrusion of HDPE and LLDPE , Polymer Bull., 15, 83.

LIM, T. S. (1971). Capillary Extrusion of Composite Materials , Polym. Eng. Sci., 11, 240.

LIM, F. J. et SCHOWALTER, W. R. (1989). Wall Slip of Narrow Molecular Weight Distribution Polybutadienes , J. Rheol., 33, 1359.

LIN, Y. H. (1985). Explanation for Slip-Stick Melt Fracture in Terms of Molecular Dynamics in Polymer Melts , J. Rheol., 29 (6), 605.

LUPTON, J. M. et REGESTER, J. W. (1965). Melt Flow of Polyethylene at High Rates , Polym. Eng. Sci., 5, 235.

LYNGAAE-JORGENSEN, J. et MARCHER, B. (1985). Spurt Fracture in Capillary Flow , Chem. Eng. Commun., 32, 117.

MALKUS, D. S., NOHEL, J. A. et PLOHR B. J. (1990). Dynamics of shear flow of a non-Newtonian fluid , J. Comput. Physics, 87, 464.

METZGER, A. P. et HAMILTON, C. W. (1964). The Oscillation Shear Phenomenon in High Density Polyethylenes , SPE Transactions, 4, 107.

MC LEISH, T. C. B. et BALL, R. C. (1986). A Molecular Approach to the Spurt Effect in Polymer Melt Flow , J. Polym. Sci., Part B: Polymer Phys., 24, 1735.

MC LEISH, T. C. B. (1987). Stability of the Interface Between Two Dynamic Phases in Capillary Flow of Linear Polyethylene Melts , J. Polymer Sci. : Part B : Polymer Phys., 25, 2253.

MOONEY, M. (1931). J. Rheol., 2, 210.

MOYNIHAN, R. H., BAIRD, D. G. et RAMANATHAN, R. (1990)..Additional Observations on the Surface Melt Fracture Behavior of Linear Low-Density Polyethylene , J. Non-Newt. Fluid Mech., 36, 255.

MYERHOLTZ, R. W. (1967). Oscillating Flow Behavior of High-Density Polyethylene Melts , J. Appl. Polym. Sci., 11, 687.

NAM, S. (1987). Mechanism of Fluoroelastomer Processing Aid in Extrusion of LLDPE , Inter. Polym. Proc., 1, 98.

OKUBO, S. et HORI, Y. (1980). Model Analysis of Oscillationg Flow of High-Density Polyethylene Melt , J. Rheol., 24, 253.

OYANAGI, Y. (1973). A Study of Irregular Flow Behavior of High Density Polyethylene , Appl. Pol. Symposium, 20, 123.

PETRIE, C. J. S. et DENN, M. M. (1976). Instabilities in Polymer Processing , AIChE. J., 22, 209.

PHILIPPOFF, W. et GASKINS, F. H. (1958). Normal Stresses; Flow Curves, Flow Birefringence and Normal Stress of Polyisobutylene Solutions, Principles ,2, 263.

PIAU, J. M., EL KISSI, N. et TREMBLAY, B. (1990). Influence of Upstream Instabilities and Wall Slip on Melt Fracture and Sharkskin Phenomena during Silicones Extrusion through Orifice Dies , J. Non-Newtonian Fluid Mechanics, 34, 145.

PIAU, J. M., EL KISSI, N. et MEZGHANI, A. (1995). Slip Flow of Polybutadiene Through Fluorinated Dies , J. Non-Newt. Fluid Mech., 59, 11.

POMAR, G., MULLER, S. J. et DENN, M. M. (1994). Extrudate Distortions in Linear Low-Density Polyethylene Solutions and Melts , J. Non-Newtonian Fluid Mech., 54, 143.

PUDJIJANTO, S. et DENN, M. M. (1994). A Stable Island in the Slip-Stick Region of Linear Low-Density Polyethylene , J. Rheol., 38, 1735.

RAMAMURTHY, A. V. (1986). Wall Slip in Viscous Fluids and Influence of Materials of Construction , J. Rheol., 30, 337.

RAMAMURTHY, A. V. (1988). Extrudate Irregularities and the Polymer-Metal Interface Connection , Proceeding of 10th Intern. Congr. Rheol. Sydney,.

RAMAMURTHY, A. V. (1989). Melt fracture - Part I : capillary rheometer studies ; Part II : product fabrication studies , ANTEC 89, 1197.

ROSENBAUM, E. E., HATZIKIRIAKOS, S. G. et STEWART, C. W. (1995). Flow Implications in the Processing of Tetrafluoroethylene/Hexafluoropropylene Copolymers , Intern. Pol. Proc. X, 204.

RUDIN, A., SCHREIBER, H. P. et DUCHESNE, D. (1990). Use of Fluorocarbon Elastomers as Processing Additives for Polyolefins , Polym. Plast. Technol. Eng., 29, 199.

SABIA, R. et MULLIER, M. E. (1962). Discontinuity in the Flow Curve of Polyethylene , J. Appl. Polym. Sci., 6, 542.

SCHOWALTER, W. R. (1988). The Behavior of Complex Fluids at Solid Boundaries , J. Non-Newt. Fluid Mech., 29, 25.

SORNBERGER, G., QUANTIN, J. C., FAJOLLE, R., VERGNES, B. et AGASSANT, J.F. (1987). Experimental Study of the Sharkskin Defect in Linear Low-Density Polyethylene , J. Non-Newt. Fluid Mech., 23, 123.

THIBODEAU, C. et GODFROY, P. (1995). Caractérisation de polymères industriels , École Polytechnique de Montréal, Département de génie chimique, Centre de recherche appliqué sur les polymères (CRASP), 23.

TORDELLA, J. P. (1956). Fracture in Extrusion of Amorphous Polymers Through Capillaries , J. Appl. Phys., 27, 454 .

TORDELLA, J. P. (1957). Occurrence of Melt Fracture in Extrusion of Molten Plastics , Trans. Soc. Rheol., 1, 203.

TORDELLA, J. P. (1958). An Instability in the Flow of Molten Polymers , Rheol. Acta., 1, 216 .

TORDELLA, J. P. (1963). Unstable Flow of Molten Polymers: A Second Site of Melt Fracture , J. Appl. Polym. Sci., 7, 215.

TORDELLA, J. P. (1969). Unstable Flow of Molten Polymers , Academic Press, New York, 5 (Chap.2), 57.

TORREGROSA TOMAS, J. M., WEILL, A. et DRUZ, J. (1981). Relation Between Kneading Behavior and Flow Instability of a High Molecular Weight High Density Polyethylene, Applications to Extrusion », Polym. Eng. Sci., 21, 768.

TREMBLAY, B. (1989). Estimation of the Elongational Viscosity of Polyethylene Blends at High Deformation Rates , J. Non-Newt. Fluid Mech., 33, 137.

TREMBLAY, B. (1991). Sharkskin Defects of Polymer Melts: The Role of Cohesion and Adhesion , J. Rheol., 35, 985.

TZOGANAKIS, C., PRICE, B. C. et HATZIKIRIAKOS, S. G. (1993). Fractal Analysis of the Sharkskin Phenomenon in Polymer Melt Extrusion , J. Rheol., 37, 355.

UHLAND, E. (1979). Das anomale Fließverhalten von Polyäthylen hoher Dichte , Rheol. Acta, 18, 1.

UI, J., ISHIMARU, Y, MURAKAMI, H., FUKUSHIMA, N. et MORI, Y. (1964). Study of Flow Properties of Polymer Melt With the Screw Extruder , SPE Trans., 4, 295.

UTRACKI, L. A. et GENDRON, R. (1984). Pressure Oscillation During Extrusion of Polymers. II , J. Rheol., 28(5), 601,

VENET, C. (1996). Défauts de surface et propriétés d'écoulement de polyéthylènes , Thèse de Doctorat, École des Mines de Paris.

VERGNES, B., d'HALEWYN, S. et BOUBE, M. F. (1992). Theoretical and Applied Rheology, P. Moldenaers, R. Keunings, eds. Elsevier, Amsterdam

VINOGRADOV, G. V. et IVANOVA, L. I. (1968). Wall Slippage and Elastic Turbulence of Polymer in the Rubbery State , Rheol. Acta, 7, 243.

VINOGRADOV, G. V., INSAROVA, N. I, BOIKO, B. B. et BORISENKOVA, E. K. (1972a). Critical Regimes of Shear in Linear Polymers , J. Polym. Eng. Sci., Sept., 12, 323.

VINOGRADOV, G. V., MALKIN, A. Y., YANOVSKII, Y. G., BORISENKOVA, E. K., YARLYKOV, B. V. et BEREZHNYAYA, G. V. (1972b). J. Appl. Polym. Sci., 10, 1061.

VINOGRADOV, G. V., PROTASOV, V. P. et DREVAL, V. E. (1984). The Rheological Behavior of Flexible-chain Polymers in the Region of Spurting, and Supercritical Conditions of their Movement at $T > T_g$, Rheol. Acta, 23, 46.

VLACHOPOULOS, J. et LIDORIKIS, S. (1971). Melt Fracture of Polystyrene , Polym. Eng. Sci., 11, 1.

VLACHOPOULOS, J. et ALAM, M. (1972). Critical Stress and Recoverable Shear for Polymer Melt Fracture , Polym. Eng. Sci., 12, 184.

WANG, X., CLEMENT, B., CARREAU, P. J. et LAFLEUR, P. G. (1992). HDPE and LLDPE Extrudate Roughness Study by Screening Design , ANTEC92, 1256.

WANG, X. (1993). Studies of HDPE and LLDPE Extrudate Distortions , Ph. D, École Polytechnique de Montréal .

WEILL, A. (1978). Oscillations de relaxation du polyéthylène haute densité et défauts d'extrusion , Thèse d'Etat, Université Louis Pasteur, Strasbourg,.

WEILL, A. (1980). About the Origin of Sharkskin , Rheol. Acta, 9, 623.

WEILL, A. (1980). Capillary Flow of Linear Polyethylene Melt: Sudden Increase of Flow Rate , J. Non-Newt. Fluid Mech., 7, 303.

WHITE, J. L. et KONDO, A. (1977-78). Flow Patterns in Polyethylene and Polystyrene Melts During Extrusion Through a Die Entry Region: Measurement and Interpretation , J. Non-Newt. Fluid Mech., 3, 41.

XING, K. C. et SCHREIBER, H. P. (1996). Fluoropolymers and Their Effect on Processing Linear Low-Density Polyethylene , Polym. Eng. Sci., 36, 387.

XING, K. C., WANG, W. et SCHREIBER, H. P. (1996). Use of a Fluoroelastomer Processing Aid With Non-Olefin Polymers , Polym. Eng. Sci., 36, 2564.

A. PROPRIÉTÉS PHYSIQUES DES POLYMÈRES

A.1 Masse volumique

La masse volumique des polymères à l'état fondu a été mesurée à l'aide du rhéomètre capillaire Instron.

Le polymère fondu est contenu dans le réservoir du rhéomètre à l'aide d'un bouchon et est comprimé par le piston. Le volume occupé par le polymère est déterminé en mesurant la position du piston, et la valeur de la masse volumique est obtenue en divisant la masse de polymère contenue dans le réservoir par le volume qu'elle occupe.

$$\rho = m/V \quad (\text{A.1})$$

L'appareil permet de mesurer la force exercée par le polymère sur le piston et est muni d'un système de contrôle en température. On peut donc déterminer une fonction de la masse volumique en fonction de la pression et de la température. Les figures A.1, A.2, A.3 et A.4 présentent les courbes obtenues pour les quatre polymères étudiés.

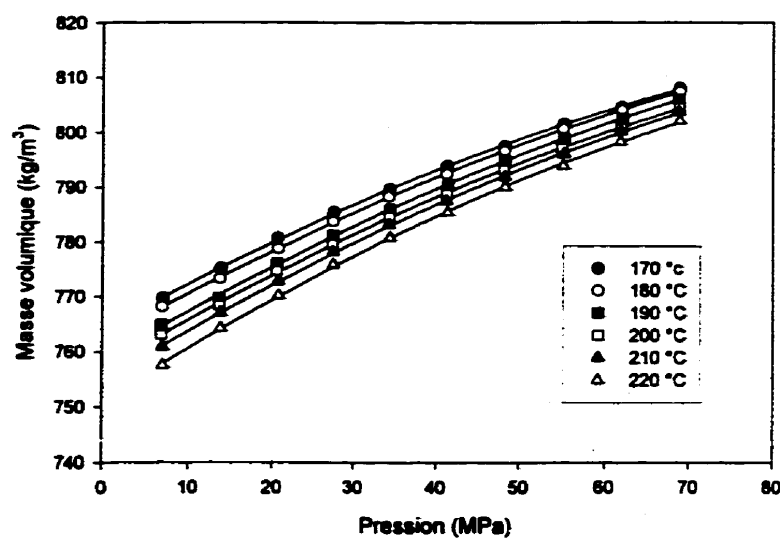


Figure A.1 Masse volumique du polyéthylène basse densité linéaire (PEBDL) 49851 en fonction de la pression et de la température.

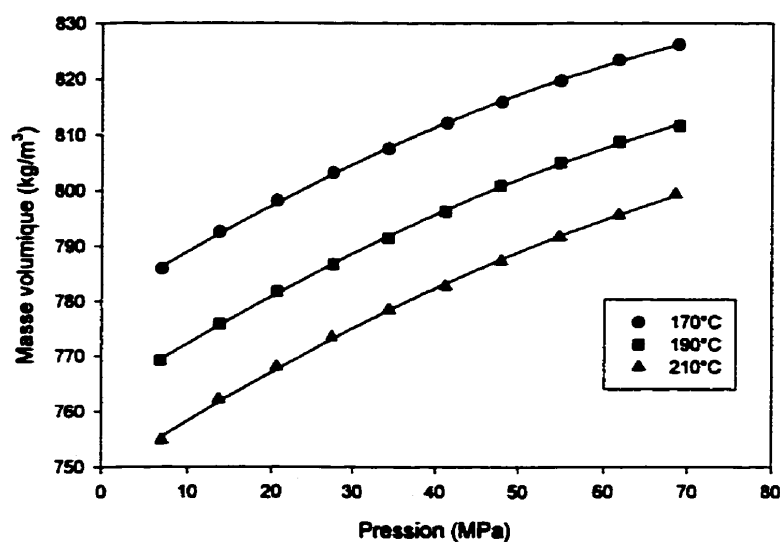


Figure A.2 Masse volumique du polyéthylène haute densité (PEHD) 2027 en fonction de la pression et de la température.

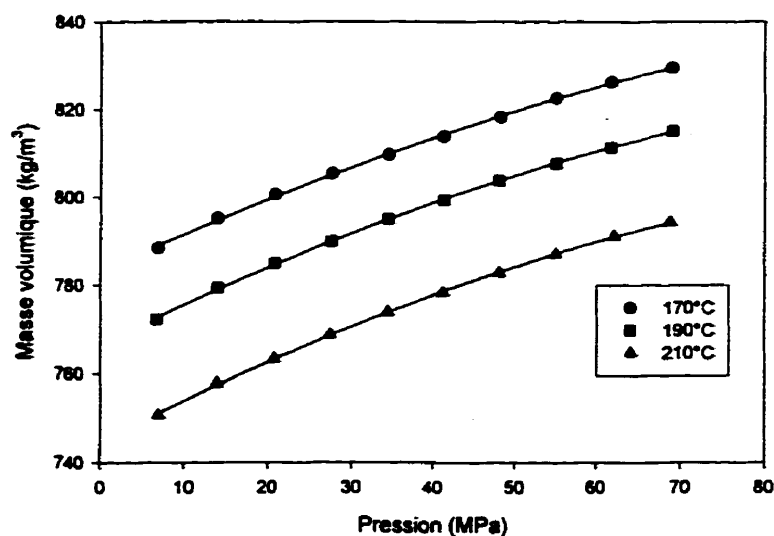


Figure A.3 Masse volumique du polyéthylène haute densité (PEHD) 4352N en fonction de la pression et de la température.

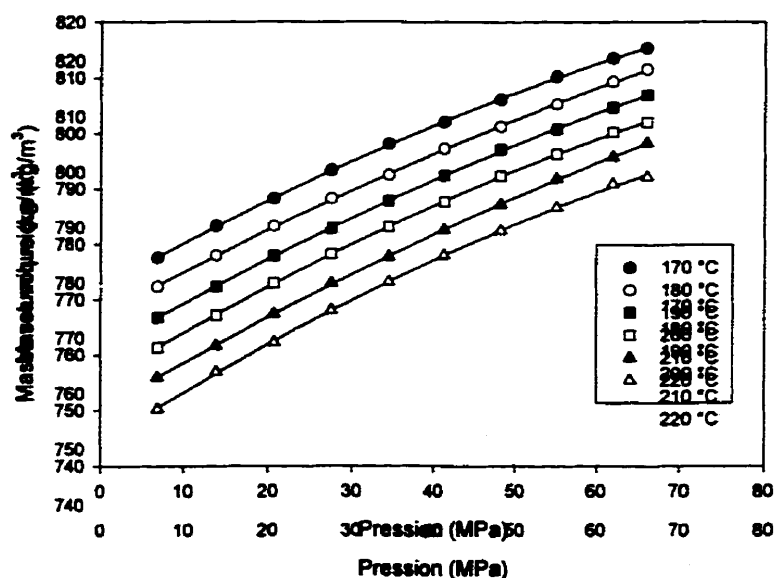


Figure A.4 Masse volumique du polyéthylène haute densité (PEHD) DMDC-6400 en fonction de la pression et de la température.

Les résultats démontrent que la masse volumique augmente avec la pression et diminue lorsque la température augmente (dilatation du polymère).

Un polynôme de degré 2 en pression et degré 1 en température est utilisé pour relier les points expérimentaux (équation A.2). Les paramètres du polynôme déterminés pour chaque polymère sont présentés au tableau A.1.

$$\rho = (a_0 + a_1 \cdot T) + (b_0 + b_1 \cdot T) \cdot P + (c_0 + c_1 \cdot T) \cdot P^2 \quad (\text{A.2})$$

Tableau A.1 Paramètres du polynôme de la masse volumique en fonction de la température et de la pression.

PEBDL 49851	807.3	-0.253	$0.425e^{-6}$	$2.446e^{-9}$	$-1.598e^{-15}$	$-7.943e^{-18}$
PEHD 2027	911.8	-0.779	$0.769e^{-6}$	$1.050e^{-9}$	$-5.072e^{-15}$	$6.489e^{-18}$
PEHD 4352N	947.9	-0.965	$0.492e^{-6}$	$2.451e^{-9}$	$-1.442e^{-16}$	$-1.782e^{-17}$
PEHD DMDC-6400	868.0	-0.560	$0.430e^{-6}$	$2.400e^{-9}$	$-7.250e^{-16}$	$-1.12e^{-17}$

A.2 Conductivité

La mesure de la conductivité thermique en fonction de la température du polyéthylène haute densité DMDC-6400 a été faite au laboratoire lors d'un projet antérieur (Thibodeau et Godfroy, 1995) à l'aide d'un appareil nommé TCA (Thermal Conductivity Analyser).

Le modèle qui a été utilisé est celui de M.W. WOO (1995).

$$k(T) = P_1 - P_2 \cdot \ln(T + 273.16) \quad (\text{W/m}^\circ\text{C}) \quad (\text{A.3})$$

où P_1 et P_2 sont des constantes et T représente la température en degré Celsius. Les valeurs de P_1 et P_2 obtenues pour ce polymère sont respectivement 2.132 W/m°C et 0.296.

Étant donné que les polymères ont généralement une faible conductivité thermique, on peut considérer, sans engendrer d'erreur importante, que la valeur de P_1 et P_2 est la même pour les trois autres polyéthylènes étudiés.

A.3 Chaleur spécifique

Le DSC a été utilisé pour mesurer la chaleur spécifique des polymères en fonction de la température. Parmi les quatre polymères étudiés, seule la chaleur spécifique du PEBDL 49851 a été mesurée directement, celle des trois polyéthylènes haute densité a été estimée à partir des mesures effectuées antérieurement avec un autre polyéthylène haute densité (PEHD 12165 de DOW). Une régression linéaire de degré 1 a été appliquée pour relier la chaleur spécifique à la température.

$$C_p(T) = C_1 + C_2 \cdot T \quad (\text{J/kg}^\circ\text{C}) \quad (\text{A.4})$$

où C_1 et C_2 sont des constantes et T est en degré Celsius.

Les résultats obtenus sont présentés à la figure A.5 et le tableau A.2 résumant les paramètres C_1 et C_2 obtenus.

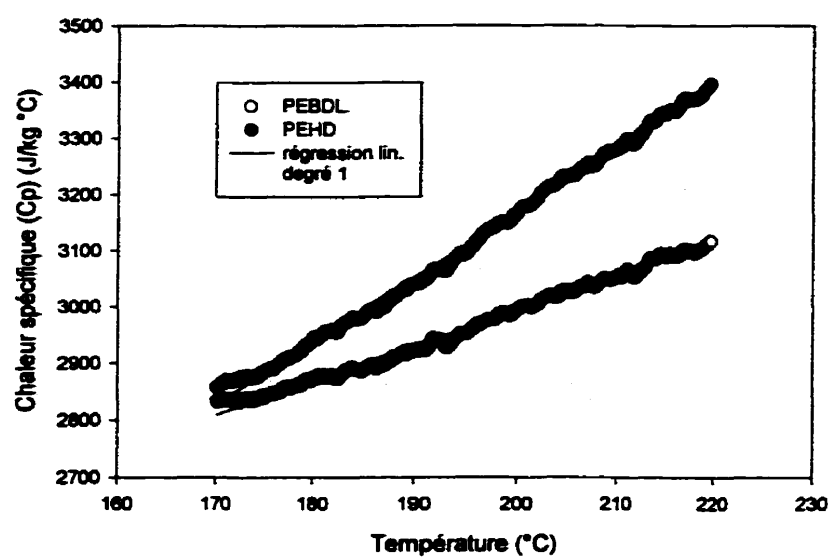


Figure A.5 Évolution de la chaleur spécifique des polymères fondus en fonction de la température.

Tableau A.2 Paramètres de la régression linéaire reliant la chaleur spécifique et la température (équation A.4).

PEBDL 49851	1587	7.01
PEHD (PEHD 12165 de DOW)	819	11.69

B. RHÉOMÈTRE À PLAQUES PARALLÈLES CSM

B.1 PRÉPARATION DES PASTILLES

Il s'agit d'une étape préliminaire avant le passage au rhéomètre. Elle se déroule en trois parties : le mélange au brabender (si le polymère doit être stabilisé), le moulage des pastilles, et le refroidissement.

B.1.1 Mélange au brabender

Ce passage est nécessaire si on doit ajouter du stabilisant à notre polymère. Sinon, on passe directement à la deuxième partie. La procédure suivante est suivie pour obtenir un bon mélange :

- mettre en chauffe le mélangeur (200°C);
- imposer un couple (vitesse de rotation des mélangeurs) constant : 40 RPM;
- introduire une vingtaine de grammes de notre polymère (capacité maximale du mélangeur), auquel on ajoute 0.2 à 1% de stabilisant (IRGANOX 1076 par exemple);
- mélanger pendant 5 à 10 mn;
- retirer le mélange.

B.1.2 Moulage des pastilles

Le moulage des pastilles est fait à l'aide d'une presse à plaques.

la matière est déposée sur un gabarit (plaque avec huit trous de forme circulaire); le gabarit est ensuite installé entre deux plaques recouvertes de papier d'aluminium puis comprimé à l'aide d'une presse chauffée à environ 200°C; le cycle de mise en charge suivant est suivi pour éviter la formation de bulles et minimiser les contraintes induites dans le polymère:

1. une tonne pendant une minute pour bien remplir le moule;
2. repos de 30 secondes pour permettre le dégazage;
3. deux tonnes pendant une minute;
4. repos de 30 secondes;
5. trois tonnes pendant une minute.

B.1.3 Refroidissement

Suite au cycle de moulage, le système est refroidi dans une presse froide afin de maintenir le polymère sous pression et réduire le retrait.

Les pastilles sont ensuite démoulées et prêtes à être étudiées au rhéomètre.

B.2 RHÉOMÈTRE À PLAQUES PARALLÈLES CSM

B.2.1 Principe de fonctionnement

Il existe plusieurs types de rhéomètres selon leur géométrie :

Géométrie plan-plan (gradient du taux de déformation selon R);

Géométrie plan-cône (taux de déformation constant);

Type couette (cylindres emboîtés);

Type capillaires.

Le rhéomètre CSM est de type plan-plan et fonctionne à contrainte imposée. Il est composé de deux plateaux circulaires dont un est fixe (figure B.1). Un couple est imposé et la déformation résultante est mesurée.

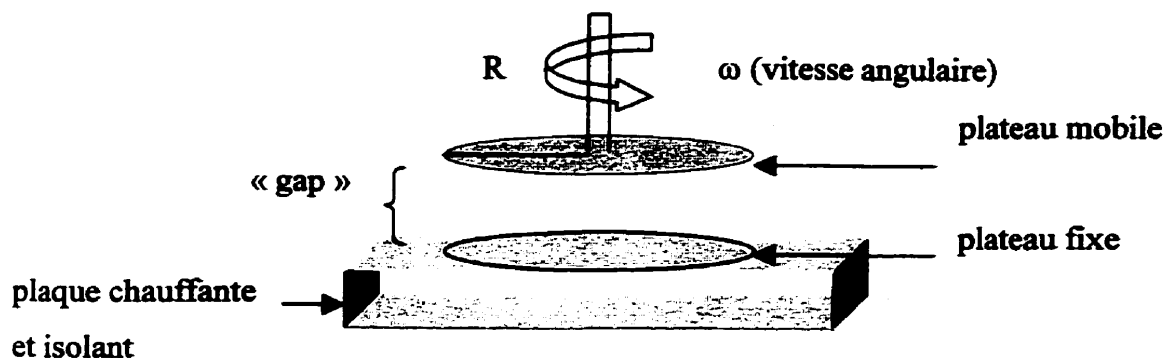


Figure B.1 Schéma du rhéomètre à plaques parallèles CSM.

B.2.2 Programmes de mesure

Le rhéomètre est contrôlé par un ordinateur et plusieurs programmes de mesures peuvent être utilisés. Cette section résume les deux programmes qui ont été utilisés.

a) Détermination de la zone linéaire

Le programme STRESS SWEEP a d'abord été utilisé pour déterminer la zone linéaire de déformation des polymères. Ce programme permet, comme son nom l'indique, de faire un balayage en contrainte et de mesurer la déformation correspondante pour une fréquence d'oscillation donnée. On peut ainsi déterminer la plage de déformation pour laquelle la viscosité demeure constante (zone linéaire). Ce test est répété à une fréquence faible (0,01 Hz) et à une fréquence élevée (20 Hz) afin de cibler, si possible, une déformation pour laquelle le polymère a un comportement linéaire pour les deux fréquences.

À partir des tests effectués à 190°C et 207°C, on a choisi une déformation cible de 5% pour laquelle les trois polymères testés (PEBDL 49851, PEHD 2027 et PEHD 43542N) présentent un comportement linéaire aux deux températures.

b) Balayage en fréquence

Une fois la déformation cible déterminée, on peut procéder au balayage en fréquence à l'aide du programme OSCILLATION pour mesurer le module élastique et le module de perte en fonction du cisaillement. Ainsi, pour chaque fréquence sélectionnée, l'appareil ajuste la contrainte appliquée par itération jusqu'à ce que la déformation corresponde à la déformation cible. Les mesures sont alors enregistrées et on obtient entre autres l'évolution de la viscosité complexe, du module élastique et du module de perte en fonction de la fréquence.

B.2.3 Procédure expérimentale

La procédure suivante est suivie pour lancer un test :

1. mise en chauffe du rhéomètre à la température désirée;
2. réglage du « gap » zéro de l'appareil (position où la plaque supérieure frôle la plaque inférieure);
3. mise en place de la pastille;
4. abaissement du plateau supérieure de façon à écraser légèrement la pastille fondue;
5. nettoyage des bavures de polymère autour des plaques;
6. abaissement de la plaque supérieure de quelques microns de façon à former un léger « bourrelet » sur le bord des plaques;
7. inscription de la valeur du « gap » à l'ordinateur et des autres paramètres d'étude associés au test (température, fréquences d'oscillation, déformation cible, etc.);
8. lancement du test.

B.2.4 Module élastique et module de perte

L'évolution du module élastique G' et du module de perte G'' du PEBDL 49851 est présentée à la figure 4.2 et les mesures de viscosité complexe des trois polymères (PEBDL 49851, PEHD 2027 et PEHD 4352N) sont présentées à la section 4.3. La figures B.2 compare l'évolution des modules G' et G'' obtenue pour les trois polymères à 190°C.

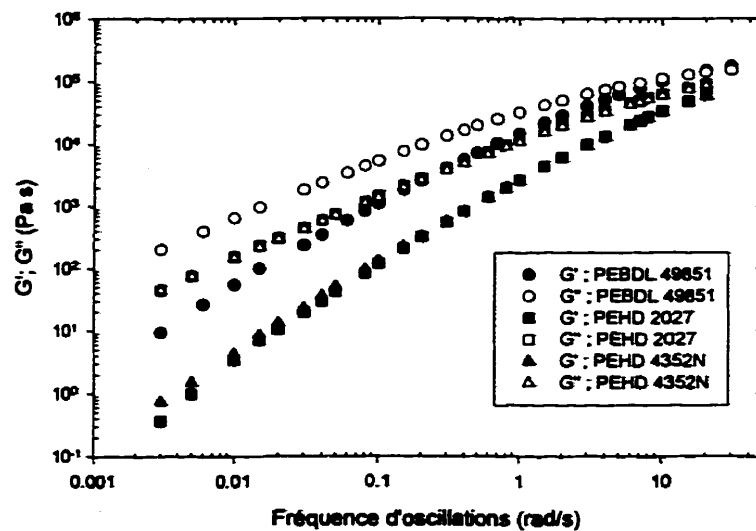


Figure B.2 Évolution du module élastique G' et du module de perte G'' des trois polymères étudiés en fonction de la fréquence d'oscillation (190°C, 5% de déformation).

C. RHÉOPLAST

Le rhéoplast a été utilisé pour étudier le comportement du polyéthylène haute densité DMDC-6400 de Pétromont lors d'un stage réalisé au Centre de caractérisation des matériaux (CEMEF) de l'École de Mines à Nice, en France.

La section C.1 décrit le fonctionnement de l'appareil, la section C.2 résume les expériences qui ont été menées sur cet appareil, et la section C.3 présente la démarche expérimentale suivie pour faire les mesures.

C.1 Description de l'appareil

Le rhéoplast est un rhéomètre qui permet un pré-cisaillement de la matière avant qu'elle ne soit injectée dans le capillaire. L'appareil est composé principalement d'un piston d'alimentation, d'un piston d'injection et d'un réservoir de forme cylindrique de 16 mm de diamètre (réservoir conique également disponible) auquel on ajoute la filière désirée. Voici une description des différentes phases du cycle de fonctionnement de l'appareil qui sont contrôlées par ordinateur (figure C-1):

1. *alimentation* : Le piston d'alimentation est à sa hauteur maximale et permet aux pastilles de polymère de glisser par gravité et de remplir la zone de pré-cisaillement (paramètres à fixer : temps d'alimentation);
2. *pré-cisaillement* : Le piston d'alimentation comprime le polymère à une pression fixée et le piston d'injection, positionné à la hauteur désirée, se met en rotation. Le polymère s'échauffe alors et fond pour remplir le réservoir. Le pré-cisaillement cesse lorsque la pression dans le réservoir atteint une valeur critique ou lorsque le

temps de pré-cisaillement maximum fixé est atteint. (paramètre à fixer : pression d'alimentation, position du piston d'injection, vitesse de rotation, pression critique dans le réservoir, temps maximum de pré-cisaillement) ;

3. *positionnement* : le piston d'injection descend et se positionne dans le réservoir (paramètre à fixer : position du piston d'injection, vitesse de positionnement);
4. *relaxation* : temps alloué au polymère pour relaxer après le positionnement du piston d'injection (paramètres à fixer : temps de relaxation, vitesse du piston d'injection « généralement nulle ») ;
5. *mesure* : le piston d'injection se déplace à vitesse constante durant une période de temps fixée. Un capteur mesure alors la pression à la base du réservoir près de l'entrée de la filière et le profil de pression est tracé sur papier pour permettre de visualiser l'évolution de la pression au cours de la mesure. La valeur finale mesurée est enregistrée dans un fichier. Un total de 17 mesures peuvent être effectuées au cours d'un même cycle et la course totale du piston d'injection disponible est de 50 mm. (paramètre à fixer pour chaque mesure : vitesse du piston, temps de mesure) ;
6. *purge* : une fois toutes les mesures complétées, le piston d'injection complète sa course et purge le polymère restant dans le réservoir. (paramètre à fixer : vitesse de purge du piston) ;
7. *attente* : les pistons d'injection et d'alimentation se replacent à leur position initiale.

Les accessoires secondaires utilisés sont les suivants :

- un capteur de pression à membrane (0-345 bars) ;

- deux thermocouples fixés à la paroi du réservoir et de la filière ;
- un thermocouple permettant de mesurer la température du polymère à la sortie de la filière ;
- un système d'acquisition du profil de pression sur papier ;
- un système de contrôle du rhéoplast et d'acquisition des données (ordinateur).

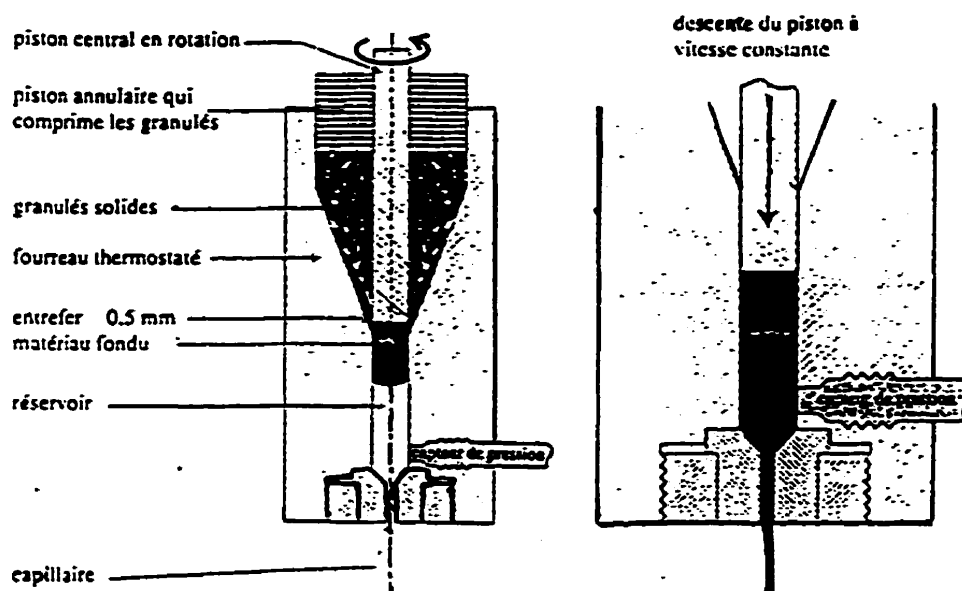


Figure C.1 Schéma du rhéoplast.

C.2 Filières utilisées et conditions opératoires

Le tableau suivant résume, pour chaque expérience, la géométrie de la filière utilisée ainsi que la température. Il est à noter que ces expériences sont classées selon l'ordre dans lequel elles ont été effectuées.

Tableau C.1 Résumé des expériences menées sur le rhéoplast.

1	210	0,93	4	Non
2			8	
3			16	
4		1,39	4	
5			8	
6			16	
7		2	4	Oui
8			8	
9			16	
10	190	1,39	4	Oui
11			16	
12			8	
13			0	
14		0,93	4	
15			8	
16	210	1,39	16	
17			4	
18			8	
19			16	
20			0	

Ainsi, trois séries de filières de diamètre différent ont été utilisées, soient 0,93, 1,39 et 2 mm. Pour chaque série, les rapports longueur sur diamètre (L/D) disponibles sont 4, 8 et 16 (filière trou de 1,39 mm de diamètre également disponible). Ces filières ont toutes une entrée convergente de 90° . À l'aide de ces filières, les effets de la géométrie sur la courbe d'écoulement et sur l'apparition des défauts ont pu être mis en évidence. Il est à noter qu'une seule série d'expériences avec les filières de 2 mm de diamètre a été menée, car la vitesse de piston de l'appareil est limitée à 10 mm/s et ne permet pas d'atteindre des taux de cisaillement suffisamment élevés. On est dans ce cas limité à l'étude de la branche I de la courbe d'écoulement.

Deux systèmes de contrôle composés d'un élément chauffant, d'un contrôleur et d'un thermocouple permettent d'ajuster la température de la paroi du réservoir cylindrique et de la filière à la valeur désirée. Les six premières expériences ont été réalisées en maintenant la température des parois constante à 210°C . L'analyse des résultats obtenus a permis de constater un échauffement important de la matière au fur et à mesure que le taux de cisaillement augmente. Cette sensibilité de la température au taux de cisaillement est observée surtout pour des conditions d'écoulement en branche I. Un thermocouple a donc été utilisé dans les expériences subséquentes afin de mesurer directement la température de la matière à la sortie de la filière et ajuster à la baisse la température de la paroi.

Le pré-cisaillement appliqué est faible, un espacement de 3 mm est laissé entre le piston et le réservoir, la vitesse de rotation est fixée à 50 tpm et la pression appliquée par le piston d'alimentation est de 10 bars. Selon la température de la paroi, le temps de cisaillement nécessaire pour faire fondre la matière et remplir le réservoir varie de 15 à 30 secondes.

Des échantillons d'extrudat ont été conservés pour faciliter l'analyse des résultats et permettre une visualisation des défauts. Pour les expériences 12 à 20, le

refroidissement s'est fait à l'air libre sur une surface de carton pour éviter les déformations trop importantes de l'extrudat. Ces échantillons permettent de comparer de façon qualitative l'aspect de l'extrudat selon la géométrie et les conditions opératoires et de mieux comprendre le comportement du polymère dans la zone instable. On a répété l'expérience 19 en trempant les échantillons à l'eau tiède dès leur sortie de la filière afin de figer la morphologie et éviter une relaxation des défauts. Ces échantillons ont été utilisés pour faire une quantification détaillée des défauts observés.

C.3 Démarche expérimentale

La démarche généralement suivie pour chaque expérience est la suivante :

1. nettoyage des parois internes de la filière en injectant du polymère à grande vitesse (une ou deux fois) ;
2. pour chaque vitesse de piston sélectionnée, mesure de la température du polymère dans la filière à l'aide d'un thermocouple et ajustement de la température de la paroi (mesure possible jusqu'à 2000 s^{-1} seulement) ;
3. mesures effectuées par tranche de 250 s^{-1} sur la branche I, 50 s^{-1} dans la zone oscillante et de 500 ou 1000 s^{-1} sur la branche II. Les points critiques délimitants la zone oscillante sont déterminés à 50 s^{-1} près. Pour chaque mesure, la température de la paroi fixée ainsi que le temps de pré-cisaillement nécessaire pour remplir le réservoir sont notés. Pour certaines expériences, des échantillons sont également récupérés pour chaque mesure en inscrivant le sens de l'écoulement.

D. SIMULATION DE L'ÉCOULEMENT DES POLYMÈRES PAR DIFFÉRENCES FINIES

La température a un effet important sur l'apparition et le développement des défauts. Par exemple, le défaut de type oscillant apparaît à une contrainte de cisaillement à la paroi plus élevée lorsque la température augmente. Il est donc important de bien contrôler la température moyenne du polymère dans la filière pour réaliser une étude significative. Malgré le fait que la température dans le réservoir soit bien contrôlée, celle à la sortie peut varier grandement dû à la dissipation visqueuse dans la filière et à l'échange de chaleur avec la paroi. Ainsi, la température de sortie est influencée par la géométrie de la filière et le débit d'extrusion. Comme il est difficile d'obtenir une mesure précise à la sortie sans modifier l'écoulement, un programme TurboPascal a été développé pour simuler les effets thermiques dans la filière et prévoir l'évolution de la température selon la géométrie d'écoulement et le débit.

Les équations utilisées pour faire les calculs ainsi que les hypothèses de travail sont présentées à la section D.1. La section D.2 présente le maillage utilisé et les équations discrétisées. L'algorithme du programme est décrit à la section D.3, et finalement, la section D.4 présente un exemple des résultats obtenus.

D.1 Équations et hypothèses de calcul

a) Hypothèses

- régime permanent ($\partial/\partial t = 0$);
- écoulement laminaire;

- effets de bouts négligeables sur le profil de vitesse;
- conduction axiale négligeable;
- termes d'inertie négligeables;
- v_r et v_θ nuls;
- pas de glissement à la paroi.

b) Équations

À partir des hypothèses qui sont posées, l'équation de continuité et les bilans de quantité de mouvement et de chaleur se simplifient comme suit :

- Équation de continuité

$$\frac{\partial}{\partial z}(\rho v_z) = 0 \quad (\text{D.1})$$

- Bilan de quantité de mouvement

$$0 = -\frac{\partial P}{\partial z} - \left(\frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} (r \tau_{rz}) \right) \quad (\text{D.2})$$

$$\tau_{rz} = -\eta \left(\frac{\partial v_z}{\partial r} \right) \quad (\text{D.3})$$

- Bilan de chaleur

$$\rho \hat{C}_p v_z \frac{\partial T}{\partial z} = - \left(\frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} (r q_r) \right) + \tau_{rz} \left(\frac{\partial v_z}{\partial r} \right) \quad (\text{D.4})$$

dans le polymère (D.5):

$$q_r = -k \frac{\partial T}{\partial r}$$

à la paroi (D.6):

$$q_r = h(T_m - T_p)$$

où T_m correspond à la température du polymère à la paroi, et T_p , celle de la paroi.

- Autres équations utilisées

Coefficient de convection :

Le coefficient de convection à la paroi h est utilisé seulement si l'utilisateur choisi de considérer une loi de refroidissement de Newton à la paroi (le programme permet également de considérer des conditions isothermes à la paroi), et il est estimé à partir du nombre de Nusselt.

$$h = \frac{Nu \cdot k}{D_o} = \frac{c \cdot (Gz)^{1/3} \cdot k}{D_o} \quad (D.7)$$

où D_o correspond au diamètre de la filière, c est une constante empirique qui est estimée à partir des mesures expérimentales, et Gz représente le nombre de Graetz (équation D.8).

$$Gz = \frac{\dot{m} \cdot \hat{C}_p}{k \cdot L} \quad (D.8)$$

où $\dot{m}$ est le débit massique et L , la longueur de la filière.

Propriétés physiques des polymères :

La viscosité η suit le modèle de Carreau modifié par Yasuda (équation 4.2). La densité ρ , le coefficient de conductivité k et la chaleur spécifique $\hat{C}_p$ sont définis à l'annexe A.

Effets d'entrée :

Afin d'estimer correctement la pression dans le réservoir et l'échauffement à l'entrée de la filière, une équation empirique a été déterminée à partir des résultats expérimentaux.

Comme il a été mentionné à la section 4.3.2, on suppose que la perte de pression à l'entrée suit une loi de puissance en fonction du taux de cisaillement apparent à la paroi de la filière (équation 4.1). À partir des valeurs de n et m calculées (tableau 4.5), on a obtenu une équation générale de ces deux paramètres en fonction de la température T et du rapport de contraction à l'entrée C (équation D.9 et D.10).

$$m = (m_1 - m_2 \cdot T) + m_3 \cdot C \quad (\text{D.9})$$

$$n = (n_1 - n_2 \cdot T) + n_3 \cdot C \quad (\text{D.10})$$

Les valeurs des paramètres de ces deux équations sont résumées au tableau D.1.

Tableau D.1 Valeurs des paramètres des équations empiriques de perte de pression à l'entrée.

PEBDL 49851	plate	8.85	0.710	0.0235	0.0229	0.00156	0.00146
	conv.	8.64	0.736				
PEHD 2027	plate	9.12	0.744				
	conv.	8.91	0.770				
PEHD 4352N	plate	7.93	0.752				
	conv.	7.72	0.778				

Ces paramètres sont très approximatifs compte tenu du nombre limité d'expériences réalisées, principalement dans le cas des deux polyéthylènes haute densité, mais les résultats obtenus sont tout de même satisfaisants.

Une fois la perte de pression à l'entrée déterminée, on peut estimer l'échauffement du polymère à l'entrée en supposant que l'écoulement à l'entrée est adiabatique (équation D.11).

$$\Delta T_{ent} = \frac{\Delta P_{ent}}{\rho \cdot \hat{C}_p} \quad (D.11)$$

D.2 Maillage, conditions frontières et discrétisation des équations

a) Maillage

Le maillage utilisé est en coordonnées cylindriques à deux dimensions (r et z). Il est composé de M mailles dans la direction axiale (z) et de N mailles dans la direction radiale (r). L'indice i est associé à la position z et l'indice j correspond à la position r .

La pression P_{ij} , la température T_{ij} , la densité ρ_{ij} et le coefficient de conduction k_{ij} sont définis au centre de la maille. Le taux de cisaillement γ_{ij} et la viscosité η_{ij} sont calculés dans le coin supérieur droit de la maille. Finalement, la vitesse v_{ij} est définie au centre de l'arête droite de la maille (figure D.1).

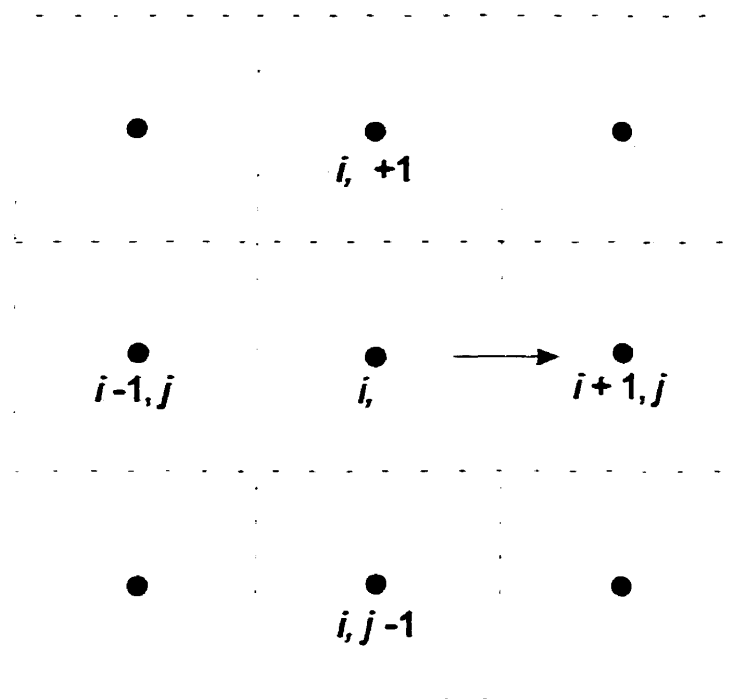


Figure D.1 Maillage du programme

b) Conditions frontières

Température :

à $i = 0$	→	$T_{i,j} = T_o$	(température du réservoir);
à $i = 1$	→	$T_{i,j} = T_o + \Delta T_{ent}$	(échauffement à l'entrée);
à $j = 0$	→	$T_{i,0} = T_{i,l}$	(symétrie au centre);
à $j = N$	→	$T_{i,N} = T_p$	(température de la paroi);
ou	→	$q_r = h(T_{i,N} - T_p)$	(loi de refroidissement).

vitesse :

$$\begin{aligned} \text{à } j=0 & \rightarrow v_{i,0} = v_{i,I} & (\text{symétrie au centre}); \\ \text{à } j=N+1 & \rightarrow v_{i,N+1} = -v_{i,N} & (\text{contact collant}). \end{aligned}$$

c) Discrétisation des équations

Bilan de quantité de mouvement (équation de mouvement)

pour i allant de 1 à M , et pour j allant de 1 à N ,

$$0 = -\frac{(P_{i+1,j} - P_{i,j})}{L/M} + \frac{1}{\left(\frac{jR}{N} - \frac{R}{2N}\right)} \left[\frac{(j\eta_{i,j}(v_{i,j+1} - v_{i,j})) - ((j-1)\eta_{i,j-1}(v_{i,j} - v_{i,j-1}))}{R/N} \right] \quad (\text{D.12})$$

en isolant $v_{i,j}$, on obtient

$$v_{i,j} = \frac{1}{((1-j)\eta_{i,j-1} - j\eta_{i,j})} \left[A \left(\frac{jR}{N} - \frac{R}{2N} \right) \frac{R}{N} - j\eta_{i,j}v_{i,j+1} - (j-1)\eta_{i,j-1}v_{i,j-1} \right] \quad (\text{D.13})$$

pour i allant de 1 à $M-1$,

$$A = \frac{(P_{i+1,j} - P_{i,j})}{L/M} \quad (\text{D.14})$$

pour i égale M ,

$$A = \frac{(0 - P_{i,j})}{L/2M} \quad (\text{D.15})$$

Bilan de chaleur

pour i allant de 2 à M , et pour j allant de 1 à N ,

1) terme de convection forcée :

$$\rho \hat{C}_p v_z \frac{\partial T}{\partial z} = \rho \hat{C}_p v_{i-1,j} \frac{(T_{i,j} - T_{i-1,j})}{L/M} \quad (D.16)$$

2) terme de dissipation visqueuse :

$$disip = \eta \left(\frac{\partial v_z}{\partial r} \right)^2 = \frac{1}{2} [Dis_haut + Dis_bas] \quad (D.17)$$

$$Dis_haut = \frac{(\eta_{i,j} + \eta_{i-1,j})}{2} \left[\frac{\left(\frac{v_{i,j+1} + v_{i-1,j+1}}{2} \right) - \left(\frac{v_{i,j} + v_{i-1,j}}{2} \right)}{R/N} \right]^2 \quad \begin{array}{l} \text{(dis. visqueuse au dessus} \\ \text{du point } i,j) \end{array} \quad (D.18)$$

$$Dis_bas = \frac{(\eta_{i,j-1} + \eta_{i-1,j-1})}{2} \left[\frac{\left(\frac{v_{i,j} + v_{i-1,j}}{2} \right) - \left(\frac{v_{i,j-1} + v_{i-1,j-1}}{2} \right)}{R/N} \right]^2 \quad \begin{array}{l} \text{(dis. visqueuse en dessous} \\ \text{du point } i,j) \end{array} \quad (D.19)$$

3) terme de conduction radiale :

$$\frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left(rk \frac{\partial T}{\partial r} \right) = \frac{1}{r} \left[k \frac{\partial T}{\partial r} + r \frac{\partial}{\partial r} \left(k \frac{\partial T}{\partial r} \right) \right] = \frac{1}{r} \left[k \frac{\partial T}{\partial r} + rk \frac{\partial^2 T}{\partial r^2} + r \frac{\partial T}{\partial r} \frac{\partial k}{\partial r} \right] \quad (D.20)$$

$$r = \frac{jR}{N} - \frac{R}{2N} \quad (\text{D.21})$$

pour $j < N$,

$$\frac{\partial T}{\partial r} = \frac{(T_{i,j+1} - T_{i,j-1})}{2R/N} \quad (\text{D.22})$$

$$\frac{\partial^2 T}{\partial r^2} = \frac{(T_{i,j+1} + T_{i,j-1} - 2T_{i,j})}{(R/N)^2} \quad (\text{D.23})$$

$$\frac{\partial k}{\partial r} = \frac{(k_{i,j+1} - k_{i,j-1})}{2R/N} \quad (\text{D.24})$$

pour $j = N$ (seulement si on suppose une loi de refroidissement à la paroi),

$$-\frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} (rq_r) = -\frac{1}{r} \left[\frac{Rh(T_{i,j} - T_p) + (j-1) \frac{R}{N} k \frac{T_{i,j} - T_{i,j-1}}{R/N}}{R/N} \right] \quad (\text{D.25})$$

En se référant aux équations D.16 à D.25, on obtient l'expression de $T_{i,j}$ suivante

si $j < N$,

$$T_{i,j} = \frac{\left[\frac{\rho \hat{C}_p v_{i-1,j} T_{i-1,j}}{L/M} + disip + \frac{1}{r} \left(k \frac{\partial T}{\partial r} + rk \frac{\partial T}{\partial r} \frac{\partial k}{\partial r} + rk \frac{(T_{i,j+1} + T_{i,j-1})}{(R/N)^2} \right) \right]}{\left[\frac{\rho \hat{C}_p v_{i-1,j}}{L/M} + \frac{2k}{(R/N)^2} \right]} \quad (D.26)$$

si $j = N$,

$$T_{i,j} = \frac{\left[\frac{\rho \hat{C}_p v_{i-1,j} T_{i-1,j}}{L/M} + disip + \frac{1}{r} \left(\frac{RhT_p + (j-1)kT_{i,j-1}}{R/N} \right) \right]}{\left[\frac{\rho \hat{C}_p v_{i-1,j}}{L/M} + \frac{Nh}{r} + \frac{(j-1)kN}{rR} \right]} \quad (D.27)$$

Bilan de masse :

$$2\pi \sum_{j=1}^N \rho_{i,j} v_{i,j} \left(\frac{jR}{N} - \frac{R}{2N} \right) \frac{R}{N} = \dot{m} \quad (D.28)$$

D.3 Présentation du programme

D.3.1 Algorithme

La figure D.2 présente l'algorithme de calcul du programme. La première étape consiste, une fois que les paramètres de la simulation sont définis, à calculer le taux de cisaillement apparent dans la filière pour déterminer la perte de pression et l'échauffement à l'entrée. Le maillage est ensuite initialisé en estimant la température T_{ij} , la pression P_{ij} et la vitesse v_{ij} de chaque maille, puis un calcul itératif à boucles imbriquées est amorcé pour calculer les nouvelles valeurs de T_{ij} , P_{ij} et v_{ij} à l'aide des équations présentées précédemment.

D.3.2 Fonctions, procédures et variables globales

Cette section présente une description sommaire des fonctions (tableau D.2), des procédures (tableau D.3) ainsi que des variables globales (tableau D.4) du programme.

a) Fonctions

Tableau D.2 Description des fonctions du programme.

Puis	Aide mathématique; revoir X à la puissance Y.
Coef_k	Calcul le coefficient de conductivité thermique k selon la température.
Densite	Calcul la masse volumique du polymère selon la température et la pression.
Etha_0	Calcul la viscosité à cisaillement nul η_0 selon la température.
Cp	Calcul la chaleur spécifique C_p selon la température.
Coef_h	Calcul le coefficient de transfert de chaleur h selon le débit massique, le coefficient de conduction thermique k et la géométrie de la filière.
Visco	Calcul la viscosité η de la maille ij selon la température et le gradient de vitesse local.

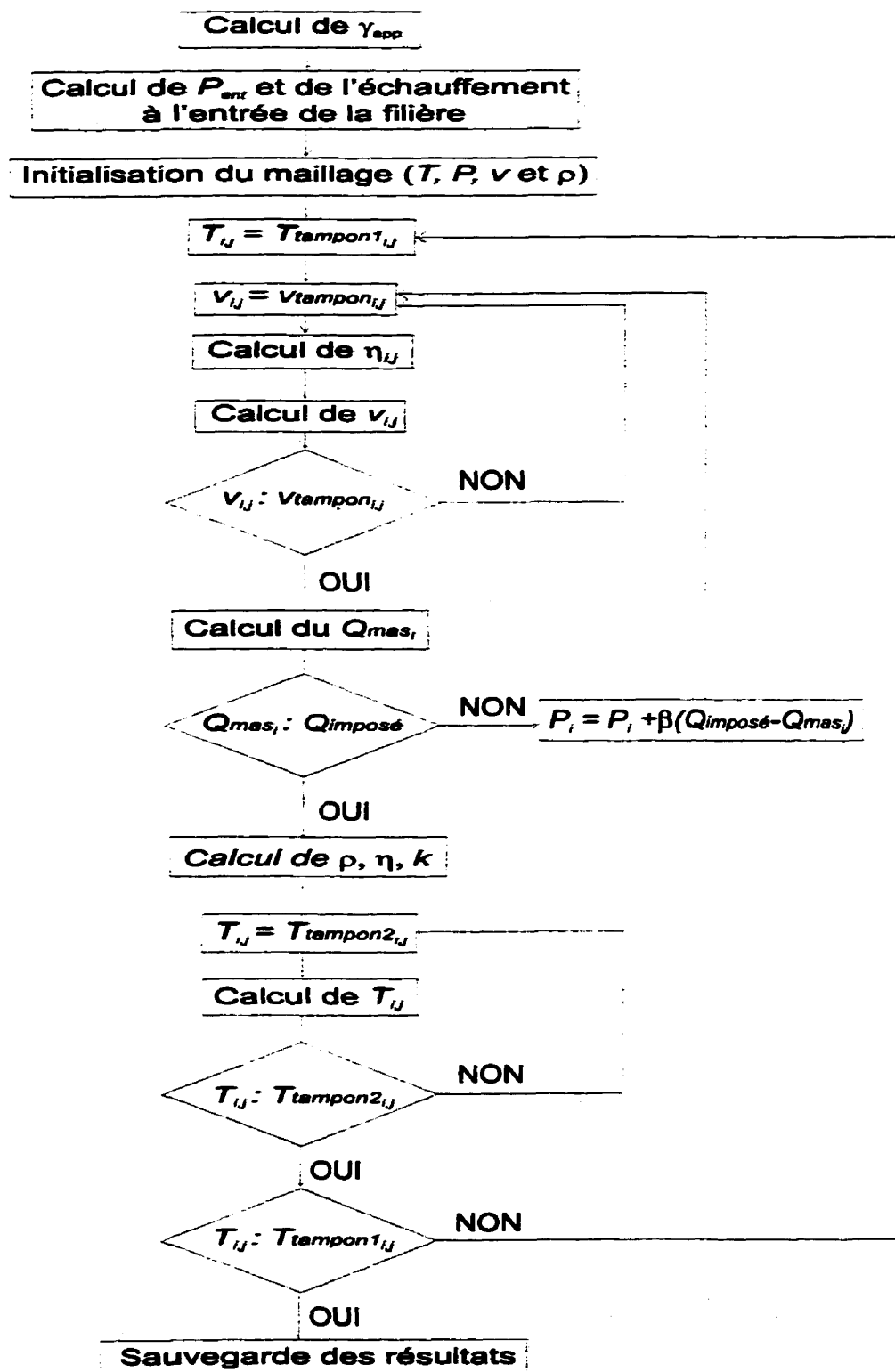


Figure D.2 Algorithme du programme.

Tableau D.3 Description des procédures du programme.

Presentation	Permet l'acquisition des paramètres de la simulation (choix du polymère, géométrie de la filière, conditions thermiques à la paroi et dans le réservoir, résolution du maillage, etc.
Conversion	Convertit les variables en unités SI et calcule le débit volumique moyen.
Cis_app	Calcule le taux de cisaillement apparent moyen dans la filière selon le débit massique, la température, la pression et le diamètre de la filière.
Bagley	Estime la perte de pression à l'entrée de la filière selon la température, le rapport de contraction et la géométrie d'entrée.
Echauff_entree	Estime l'échauffement du polymère à l'entrée à partir de la perte de pression estimée.
Initialisation	Initialise, pour chaque maille, la température (température du réservoir plus l'échauffement à l'entrée) ainsi que la pression et la vitesse (écoulement de Poiseuille avec une viscosité moyenne μ estimée à $\eta_o/100$).
Calcul_vz	Calcule la vitesse et la viscosité de chaque maille à partir du profil de pression (calcul itératif).
Calcul_M	Calcule le débit massique de chaque tranche du maillage et compare celui-ci avec le débit massique imposé. Incrémente la pression si le critère de convergence n'est pas satisfait.
Calcul_T	Calcule la température de chaque maille selon le profil de vitesse, la température de la paroi et les propriétés physiques du polymère (calcul itératif).
Calcul_Tbulk	Calcule la température « bulk » du polymère à la sortie de la filière selon la vitesse et la température des mailles.
Sauve_res	Enregistre les résultats dans un fichier texte.

Tableau D.4 Description des variables globales du programme.

Real	Cis_app_moy	s ⁻¹	Taux de cisaillement moyen dans la filière.
	Pent	Pa	Chute de pression à l'entrée de la filière.
	Delta_T	°C	Échauffement à l'entrée de la filière.
	M_g_30s	g/30s	Débit massique.
	M	kg/s	
	Q	m ³ /s	Débit volumique.
	D_res_pouce	Pouce	Diamètre du réservoir.
	D_res	m	
	D_mm	mm	Diamètre de la filière.
	R	m	Rayon de la filière.
	L	m	Longueur de la filière.
	L_D	(-)	Rapport L/D.
	Temp_0	°C	Température du polymère dans le réservoir.
	Echauff	°C	Échauffement moyen du polymère dans la filière.
	T_bulk2	°C	Température « bulk » à la sortie de la filière.
	T_max	°C	Température maximale atteinte par le polymère.
	Tp	°C	Température de la paroi de la filière.
	Erreur_sur_T	°C	Variation de la température entre deux boucles d'itération.
	P_ini	Pa	Pression de la tranche 1 calculée avant d'inclure les effets thermiques.
	Chute_P	Pa	Variation de la pression de la tranche 1 due aux effets thermiques.
Integer	NN	(-)	Nombre de subdivisions dans la direction radiale.
	MM	(-)	Nombre du subdivision dans la direction axiale.
	i	(-)	Coordonnée axiale d'une maille.

Integer	j	(-)	Coordonnée radiale d'une maille
	Compteur	(-)	Compte le nombre d'itérations sur la température (boucle principale).
	Compteur_M	(-)	Compte le nombre d'itérations sur le débit massique.
	T_faux	(-)	Compte le nombre de mailles dont la nouvelle température calculée ne respecte pas le critère de convergence (boucle principale).
	Choix	(-)	Permet de sélectionner la condition thermique à la paroi de la filière (isotherme ou convection).
	Choix_pol	(-)	Permet de sélectionner le choix du polymère (PEBDL 49851, PEHD 2027 ou PEHD 4352N).
	Choix_entrée	(-)	Permet de sélectionner la géométrie d'entrée de la filière (convergente ou plate).
	Coord_z	(-)	Coordonnée en z de la maille où la température est maximale.
	Coord_r	(-)	Coordonnée en r de la maille où la température est maximale.
	Stade	(-)	Permet d'indiquer, pour la procédure Cis_app, si les calculs itératifs ont été faits (la procédure est appelée avant et après ces calculs).
Boolean	Conv_M	(-)	Indique VRAI si toutes les tranches du maillage ont un débit qui respecte le critère de convergence.
Maillage	Maille	(-)	Cette variable est un tableau qui contient l'état (P , v , T) et les propriétés (η , ρ et k) de chaque maille.
Test_T	T_ref	(-)	Cette variable est un tableau qui sert de tampon pour retenir la température de chaque maille.

D.4 Exemple des résultats

Tous les résultats sont inscrits dans un fichier "text". On obtient entre autres les informations suivantes pour chaque maille: vitesse, température, pression, viscosité, densité, conductivité. Les figures D.3 à D.5 donnent un aperçu des profils de vitesse, de température et de pression obtenus pour la simulation suivante:

- PEBDL;
- Diamètre = 2 mm;
- $L/D = 24$;
- Entrée plate;
- Température à l'entrée = 190°C ;
- Température de la paroi = 171°C ;
- Conditions isothermes à la paroi;

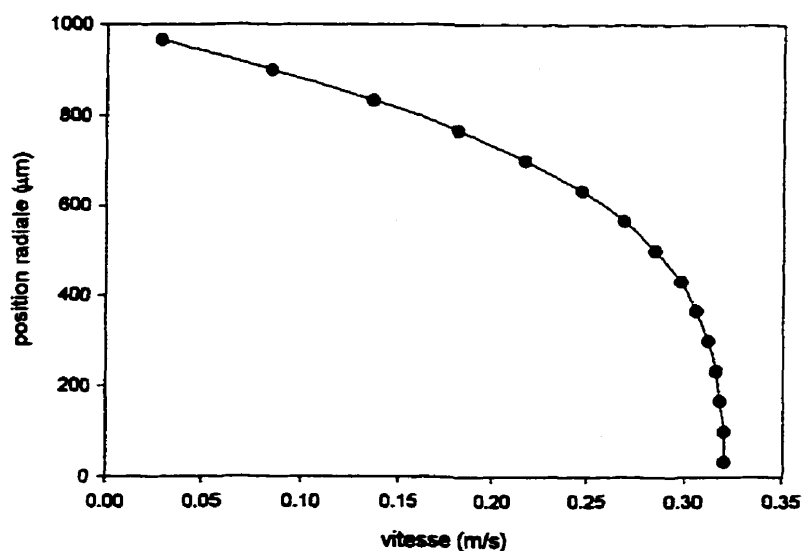


Figure D.3 Profil de vitesse près de la sortie de la filière (PEBDI, 190°C , $D=2\text{mm}$, $L/D=24$, $0,5\text{ g/s}$, isotherme à la paroi).

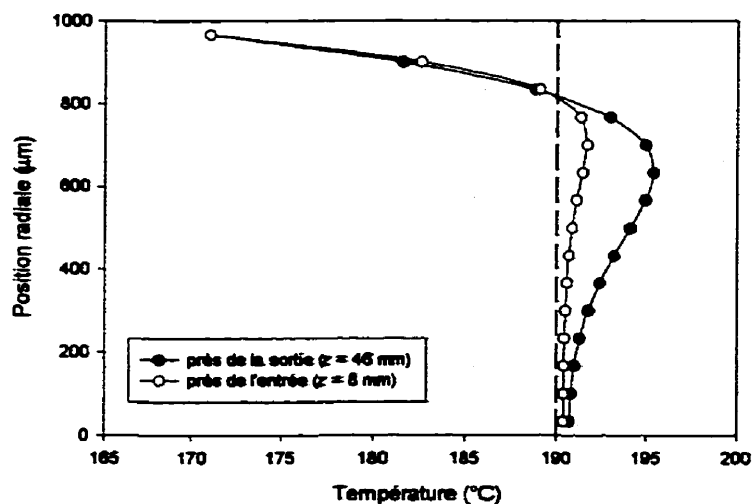


Figure D.4 Comparaison du profil de température à l'entrée et à la sortie de la filière (PEBDI, 190 °C, $D=2\text{mm}$, $L/D=24$, 0,5 g/s, isotherme à la paroi).

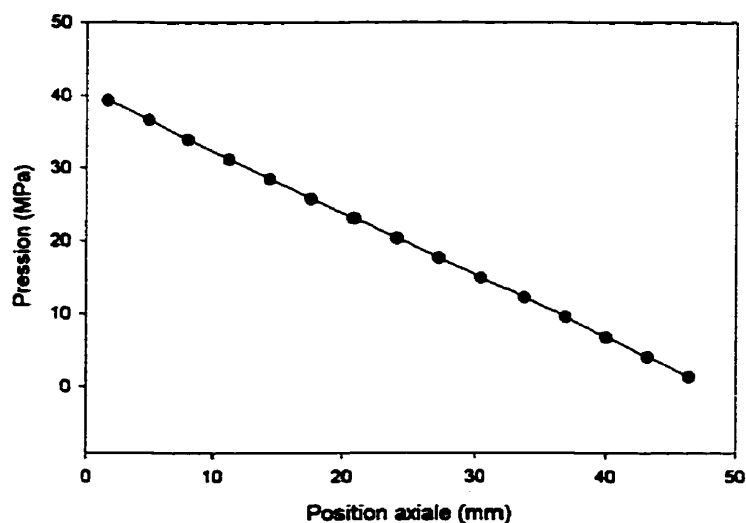


Figure D.5 Profil de pression le long de la filière (PEBDI, 190 °C, $D=2\text{mm}$, $L/D=24$, 0,5 g/s, isotherme à la paroi).

Les valeurs calculées correspondent bien dans l'ensemble avec celles mesurées expérimentalement.

E. MESURE DE LA VITESSE PAR EFFET DOPPLER

Un laser à effet Doppler est utilisé pour mesurer la vitesse de l'extrudat à la sortie de la filière. Ces mesures sont principalement utilisées dans l'étude du défaut de type oscillant (chapitre 6), mais également pour vérifier la stabilité de l'écoulement lorsque le défaut de type peau de requin est présent (chapitre 5).

La section E.1 explique d'abord ce qu'est l'effet Doppler, et comment il est possible de mesurer la vitesse d'un fluide à partir de ce principe physique. La section E.3 décrit ensuite le logiciel FLOW qui permet l'acquisition des données.

E.1 L'effet Doppler

L'effet Doppler est observable chaque fois qu'il y a un mouvement relatif entre une source qui émet une onde et le récepteur qui la capte. Ce mouvement relatif modifie la fréquence à laquelle le récepteur perçoit l'onde. Lorsque la source et le récepteur se rapprochent, ce dernier perçoit une fréquence plus élevée que la fréquence réelle émise par la source. Inversement, lorsqu'ils s'éloignent, la fréquence perçue est plus basse. On observe un exemple de ce phénomène en course automobile. Le spectateur perçoit un son aigu lorsque la voiture s'approche, et un son grave lorsqu'elle s'éloigne (figure E.1).

Cet effet, qui s'applique à tous les types d'ondes, doit son nom au physicien autrichien Christian Johann Doppler (1803-1853), qui découvrit cet effet en étudiant la fréquence d'ondes lumineuses.

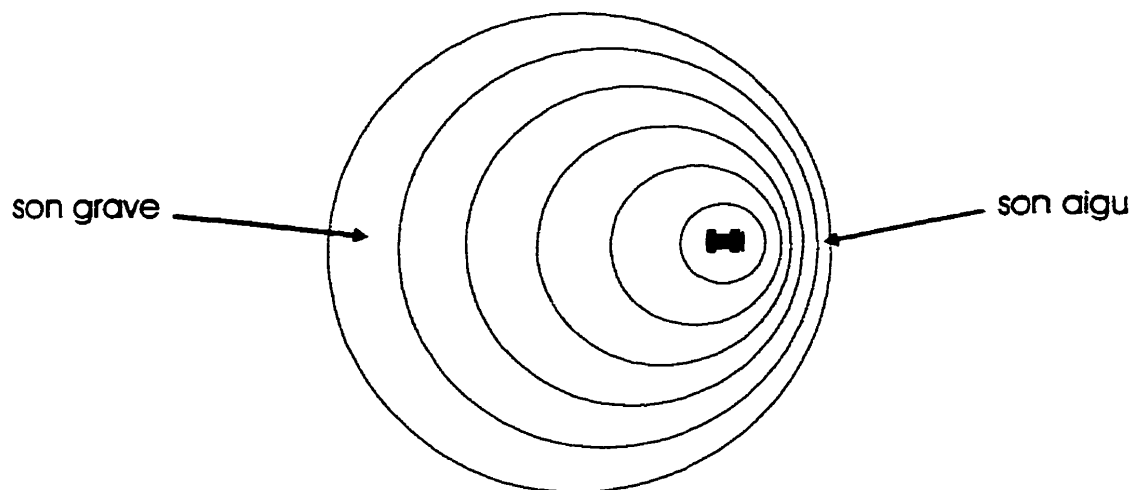


Figure E.1 L'effet Doppler ; variation de la fréquence perçue par le récepteur lorsque la source s'approche ou s'éloigne.

La fréquence perçue par le récepteur est égale à l'expression suivante

$$f' = f \left(1 \pm \frac{v_o}{\lambda f} \right) \quad (\text{F.1})$$

où f et λ représentent respectivement la fréquence et la longueur de l'onde émise par la source. v_o est la vitesse relative de la source par rapport au récepteur. Le signe positif est utilisé lorsqu'elle s'approche, et négatif lorsqu'elle s'éloigne. Ainsi, en mesurant f' , on peut déterminer la vitesse v_o de l'objet si on connaît λ et f . Ce principe est utilisé par les lasers pour mesurer la vitesse. Un signal lumineux (laser) de fréquence et de longueur d'onde connues est envoyé en direction de l'objet qui se déplace. Le signal

réfléchit et revient vers le laser à une fréquence différente f' . En mesurant cette fréquence de retour, on détermine alors la vitesse de l'objet.

Bien que basée sur l'effet Doppler, la technique de mesure de la vitesse d'écoulement d'un milieu continu est différente. Le laser doit être placé de façon perpendiculaire à l'écoulement et deux signaux cohérents doivent être utilisés pour créer un système de franges planes perpendiculaires à l'écoulement (figure E.2). Un moyen utilisé pour créer ces deux signaux est de faire passer un faisceau laser à travers un prisme pour le séparer en deux. Un des faisceaux passe ensuite à travers une cellule de Bragg avant d'atteindre, avec l'autre faisceau, une lentille convergente qui permet leur croisement. Au point d'intersection, il y a formation d'un réseau de franges d'interférence parallèles constituant le volume de mesure.

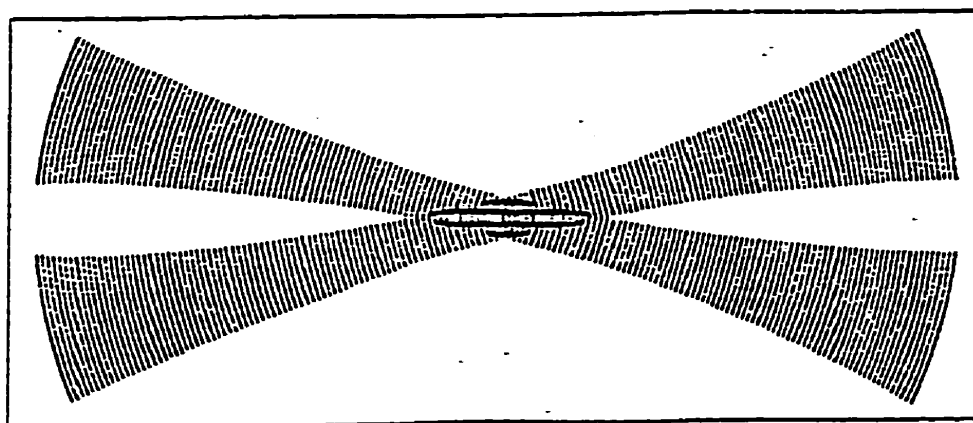


Figure E.2 Formation de franges d'interférence au point d'intersection des deux faisceaux.

L'espacement entre les franges dépend de la longueur d'onde des signaux λ et de l'angle d'intersection α entre ces derniers (équation E.2).

$$d = \frac{\lambda}{2 \cdot \sin\left(\frac{\alpha}{2}\right)} \quad (\text{E.2})$$

Lorsqu'une particule traverse les franges, elle disperse la lumière à une fréquence qui dépend de sa vitesse. Un photodétecteur capte le signal de retour, puis calcule la vitesse de la particule à partir de l'équation E.3.

$$v_p = f_r \cdot d = \frac{f_r \cdot \lambda}{2 \cdot \sin\left(\frac{\alpha}{2}\right)} \quad (\text{E.3})$$

où v_p représente la composante de la vitesse de la particule dans la direction normale au plan des franges, et f_r est la fréquence du signal mesurée par le photodétecteur.

Ce principe de mesure est souvent utilisé pour déterminer le profil de vitesse dans les colonnes à bulles, en utilisant des particules ou des traceurs dispersés dans le fluide.

E.2 Utilisation du logiciel FLOW

Le logiciel FLOW est utilisé pour faire l'acquisition des données. Plusieurs paramètres d'acquisition doivent être fixés et les principaux sont présentés ci-dessous.

- **Mode d'acquisition : continu ;**
(Ce mode permet d'enregistrer les mesures dans un fichier) ;
- **Fonction « stop and validated samples » activée ;**
(cette fonction permet de conserver uniquement les mesures qui respectent le critère de validation) ;
- **HVlt : 800-1000 volts ;**
(Contrôle le voltage des tubes photomultiplicateurs. Des essais ont démontrés qu'un voltage entre 800 V et 1000 V permet d'obtenir de bons résultats (pourcentage élevé de points validés)) ;
- **Nombres de franges : 36 ;**
(Le nombre de franges dépend de la taille des points mesurés. Il a été fixé initialement à 36 et les résultats obtenus ont été satisfaisants) ;
- **Nombre d'échantillons (*number of samples*) : 1000 ;**
(Plusieurs points sont nécessaires pour étudier la variation de la vitesse dans le temps).

Une fois les paramètres d'acquisitions fixés, la mesure est lancée. Les points validés sont sauvegardés dans un fichier et les résultats statistiques sont automatiquement calculés (équations E.4 à E.7) et affichés à l'écran.

Vitesse Moyenne :

$$\overline{V}_{\text{pondéré}} = \frac{\sum V_i \cdot \Delta t_i}{\sum \Delta t_i} \quad (\text{E.4})$$

où V_i est la vitesse du point I , et Δt_i est le temps de séjour du point i dans le volume de mesure.

Variance :

$$\sigma_{\text{pondéré}}^2 = \overline{V^2} = \frac{\sum_i (V_i - \bar{V})^2 \Delta t_i}{\sum_i \Delta t_i} \quad (\text{E.5})$$

Ecart type :

$$\sigma = \sqrt{\overline{V^2}} \quad (\text{E.6})$$

Turbulence :

$$T = \frac{\sigma}{V} \times 100 \quad (\text{E.7})$$