

# De la thermique vers la rhéologie : caractérisation des matériaux non Newtoniens via des événements thermiques

Qiao LIN<sup>1\*</sup>, Nadine ALLANIC<sup>1</sup>, Pierre MOUSSEAU<sup>1</sup>, Manuel GIRAULT<sup>2</sup>, Rémi DETERRE<sup>1</sup>

<sup>1</sup>GEPEA Nantes Université, Oniris, CNRS, GEPEA, UMR 6144, F-44000 Nantes, France

<sup>2</sup>Institut P' CNRS-ENSMA-Université de Poitiers, UPR 3346, F86961 Futuroscope Chasseneuil Cedex, France

\*(auteur correspondant : qiao.lin@univ-nantes.fr)

**Résumé** - L'identification de la viscosité en ligne de production des polymères est affectée par le débit du processus. Lorsque le débit est imposé, l'information pouvant être extraite sur la rhéologie de l'écoulement est limitée. Cette étude montre qu'il est possible d'utiliser une démarche thermique pour identifier une zone de fonctionnement (liée à un débit donné) sur une courbe de viscosité complexe, et de décrire cette zone par une loi de puissance locale à deux paramètres. Comparée à la rhéométrie conventionnelle qui identifie une viscosité apparente par débit, cette nouvelle démarche apporte plus d'informations sans demander de modifier le débit de la production.

## 1. Introduction

Dans le cadre de l'identification de la viscosité en ligne, où le débit d'écoulement est imposé par les paramètres de processus, des études récentes ont proposé différentes approches pour obtenir plus d'informations sur la rhéologie du fluide sans modifier la cadence de production [1–4]. Dans l'approche classique avec un écoulement dans une géométrie connue, le taux de cisaillement est calculé à partir du débit. Une valeur de viscosité est calculée à partir d'une mesure de pression pour le taux de cisaillement correspondant. Une des nouvelles démarches utilise la dissipation visqueuse et la convection [5]. La dissipation visqueuse est provoquée par le cisaillement au sein de l'écoulement. La convection entre l'écoulement et une surface de paroi est aussi corrélée au profil de vitesse de l'écoulement, qui dépend de la courbe de viscosité du fluide. Différente de la méthode conventionnelle qui utilise des capteurs de pression pour identifier une viscosité apparente à la paroi d'un écoulement pour un débit donné dans une géométrie connue [6], la démarche thermique apporte plus d'informations sur une certaine profondeur de l'écoulement par rapport à la paroi. Les premiers travaux réalisés ont permis de mettre au point une cellule de mesure thermo-rhéologique à mettre en ligne dans un procédé de mise en œuvre de type extrusion ou injection des matériaux polymères [7].

Imposant un écoulement annulaire dans ce dispositif instrumenté, il est montré qu'à partir des mesures de température à l'axe central du conduit (l'arbre central de la géométrie annulaire), la variation de la température due à la dissipation visqueuse à un débit constant permet d'indiquer un point critique sur la courbe de viscosité du fluide [5]. De plus, l'échange par convection entre l'écoulement de polymère et l'axe central est sensible à l'indice de pseudo-plasticité du polymère, décrit par une loi de puissance [8]. La loi de puissance en échelle logarithmique est en effet une droite ayant une pente constante définie par l'indice de pseudo-plasticité. Cependant, les polymères ont un comportement pseudo-plastique à taux de cisaillement élevé et un comportement Newtonien à faible taux de cisaillement, c'est-à-dire que la pente de la courbe de viscosité en échelle logarithmique varie et tend vers zéro quand le taux de cisaillement tend vers zéro (figure 1).

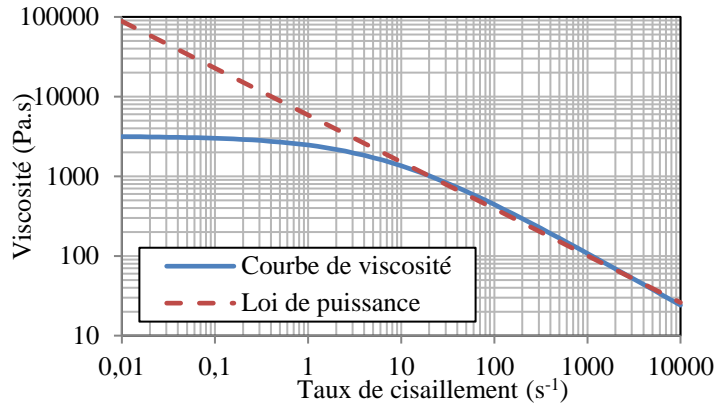


Figure 1 : Illustration de la viscosité d'un polymère

Dans ce papier, des simulations numériques de l'écoulement annulaire d'un polypropylène sont réalisées. Le comportement rhéologique du polymère est modélisé par une loi de Cross [9]. Des identifications inverses à partir des « mesures » simulées sont également effectuées pour vérifier la performance des méthodes thermiques dédiées à l'identification de la viscosité sur un matériau de type loi de Cross.

## 2. Démarche de l'étude

Les analyses sont effectuées sur un écoulement annulaire de polymère, pour appliquer les méthodes de caractérisation mentionnées dans [5]. Dans la figure 2, le polymère (domaine  $\Omega_f$ ) entre dans le conduit par la gauche et est guidé vers la partie annulaire ( $z \geq 0$ ) par un cône à 45°. Les détails sur le modèle d'éléments finis sont précisés dans [7]. Les quatre thermocouples virtuels sont à la surface de l'axe central, comme dans le dispositif réel, à l'équidistance de  $z = 6$  mm à  $z = 34$  mm. Dans le dispositif réel et dans le modèle, les sorties (à gauche de la figure 2) sont suffisamment éloignées en aval de la zone instrumentée des thermocouples. C'est-à-dire que la condition thermique à la sortie a peu d'influence sur la zone d'étude. Ici dans le modèle (figure 2), une condition de Neumann est appliquée. La condition de Dirichlet ( $T_w$ ) aux parois extérieures a également peu d'influence sur la zone d'étude à l'axe central, car ce dernier est immergé dans l'écoulement de polymère (à haute vitesse et peu conducteur thermiquement). L'écoulement de polymère (avec un grand nombre de Graetz [10]) est une barrière thermique qui empêche les éventuelles perturbations externes d'atteindre les mesures de température sur l'axe central [7].

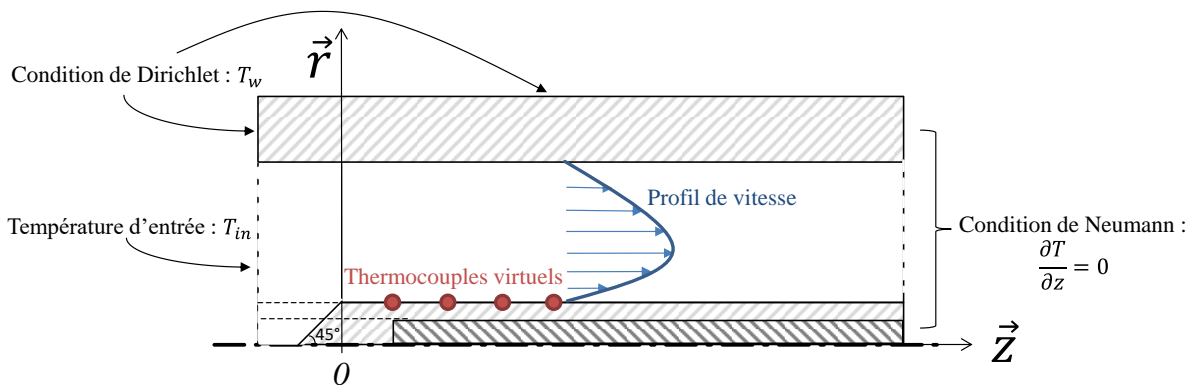


Figure 2 : Schéma de l'écoulement annulaire dans la cellule de mesure thermo-rhéologique

La loi de puissance [11,12] s'écrit comme l'équation 1,

$$\eta = K\dot{\gamma}^{n_p-1} \quad (1)$$

avec  $\eta$  la viscosité dynamique,  $K$  le facteur de consistance,  $\dot{\gamma}$  le taux de cisaillement généralisé et  $n_p$  l'indice de loi de puissance ( $0 < n_p < 1$  pour les matériaux rhéo-fluidifiants tels que les polymères). Cette loi de comportement rhéologique est adoptée dans le modèle d'éléments finis utilisé comme modèle direct pour l'identification de la viscosité par méthode inverse :

- Dans [5], le modèle avec une loi de puissance a démontré sa capacité à identifier un point critique (viscosité, taux de cisaillement) en exploitant la variation de température de l'axe central due à la dissipation visqueuse d'un écoulement annulaire à un débit donné. Pour un débit différent, un différent point critique peut être obtenu.
- Dans un écoulement annulaire de type loi de puissance à un débit donné, le profil de vitesse ne dépend que de l'indice  $n_p$  [5,13]. Or, l'échange par convection entre l'axe central et l'écoulement est lié au profil de vitesse. L'indice de loi de puissance  $n_p$  peut également être identifié par la méthode de convection présentée dans [8]. (Pour provoquer l'échange par convection, [8] utilise une résistance chauffante dans l'axe central pour générer un écart de température entre l'axe central et l'écoulement entrant dans la géométrie annulaire.)

En résumé, il est possible d'identifier un point critique ( $\dot{\gamma}_c, \eta_c$ ) (via la dissipation visqueuse) et l'indice  $n_p$  (via la convection) d'une loi de puissance, qui est, en effet, une droite ayant une pente constante ( $n_p - 1$ ) en échelle logarithmique. Il est donc possible de tracer une droite à partir d'un point et d'une pente. Néanmoins, toutes les lois de viscosité ne sont pas des droites en échelle logarithmique.

On rappelle que l'objectif de ce papier est de tester numériquement cette démarche d'identification de la viscosité via des événements thermiques sur un matériau de type loi de Cross [9] (équation 2) :

$$\eta = \eta_0 / \left[ 1 + \left( \frac{\eta_0}{\tau^*} \dot{\gamma} \right)^{1-n} \right] \quad (2)$$

avec  $\eta_0$  la viscosité au taux de cisaillement nul,  $n$  l'indice de puissance ( $0 < n < 1$  pour les matériaux rhéo-fluidifiants) et  $\tau^*$  le niveau de contrainte critique à la transition vers le régime rhéo-fluidifiant. Ici,  $(n - 1)$  est la pente de la loi de Cross en échelle logarithmique quand  $\dot{\gamma} \rightarrow +\infty$ .

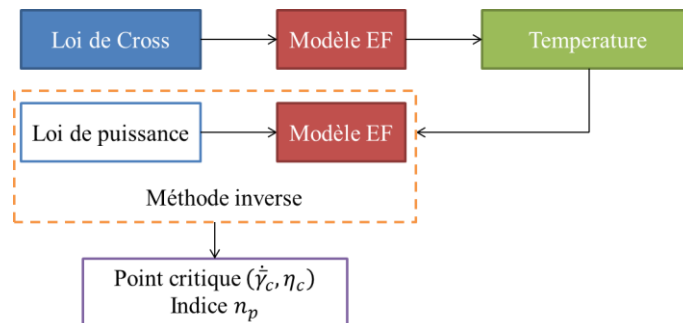


Figure 3 : Protocole de test numérique pour la démarche d'identification de la viscosité via des événements thermiques sur un matériau de type loi de Cross

Le protocole (figure 3) est le suivant :

1. Simulations numériques en utilisant le modèle d'éléments finis avec la loi de Cross
  - pour les paramètres du Polypropylène PPC 9642 à 195 °C :  $\eta_0 = 3192,75$  Pa.s,  $\tau^* = 19996,2$  Pa et  $n = 0,3387$  selon les bases de données de matériaux du logiciel « Autodesk® Moldflow® »
  - à deux débits différents ( $0,565$  cc.s<sup>-1</sup> pendant 30 s et  $56,5$  cc.s<sup>-1</sup> pendant 1,3 s)
  - afin d'obtenir des mesures virtuelles de température sur l'axe central du conduit ;
2. Identification de la viscosité (via la dissipation visqueuse et la convection) en utilisant le modèle d'éléments finis avec la loi de puissance comme modèle direct dans la méthode inverse
  - à partir des mesures virtuelles de température simulées dans l'étape précédente.

Un point critique ( $\dot{\gamma}_c, \eta_c$ ) et une valeur de l'indice  $n_p$  sont calculés pour chaque débit dans la figure 3. Les démarches pour l'obtention de point critique et de  $n_p$  sont détaillées dans [5,8].

### 3. Résultats et discussion

Deux points critiques ( $2332,1$  Pa.s –  $1,4$  s<sup>-1</sup> et  $500,6$  Pa.s –  $80,5$  s<sup>-1</sup>) sont identifiés respectivement pour les deux débits ( $0,565$  cc.s<sup>-1</sup> et  $56,5$  cc.s<sup>-1</sup>), et présentés dans la figure 4 avec la loi de Cross du PPC 9642. Les valeurs de  $n_p$  identifiées sont respectivement  $0,787$  et  $0,393$  pour les deux débits. Pour chaque débit, une loi de puissance locale est tracée à partir du point critique et de la valeur de  $n_p$  correspondant (figure 4).

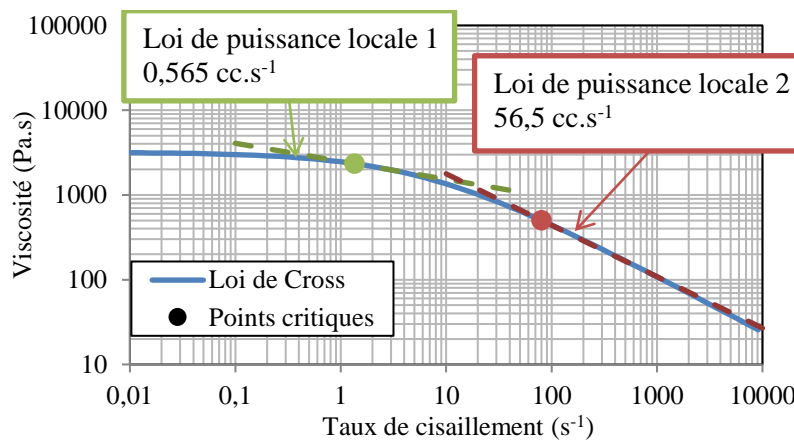


Figure 4 : Comparaison des points critiques et des lois de puissance locales avec la loi de Cross du PPC 9642

La figure 4 montre bien que les points critiques identifiés sont sur la loi de Cross et que les pentes des lois de puissance locales, liées aux valeurs de  $n_p$ , sont corrélées à la dérivée  $[\partial \ln \eta / \partial \ln \dot{\gamma}]$  de la loi de Cross au niveau des points critiques. La loi de puissance locale pour un débit à  $56,5$  cc.s<sup>-1</sup> représente bien la loi de Cross en régime de cisaillement élevé. Celle à  $0,565$  cc.s<sup>-1</sup> se retrouve dans la zone de transition entre le régime Newtonien et le régime rhéo-fluidifiant.

Pour montrer la capacité de ces lois de puissance locales à représenter un écoulement de type loi de Cross, des profils de vitesse sont calculés respectivement avec la loi de Cross du PPC 9642 et la loi de puissance locale au débit correspondant :

- à  $0,565 \text{ cc.s}^{-1}$ 
  - un profil de vitesse calculé avec la loi de Cross ;
  - un profil de vitesse calculé avec la loi de puissance locale 1 (figure 4) ;
- à  $56,5 \text{ cc.s}^{-1}$ 
  - un profil de vitesse calculé avec la loi de Cross ;
  - un profil de vitesse calculé avec la loi de puissance locale 2 (figure 4).

Afin de mieux illustrer et de comparer les profils de vitesse à différents débits, les vitesses sont divisées par la vitesse moyenne pour chaque débit et présentées sur la figure 5. Le rayon de l'axe central est de 4 mm. L'écoulement annulaire se situe entre  $r = 4 \text{ mm}$  et  $r = 10 \text{ mm}$ .

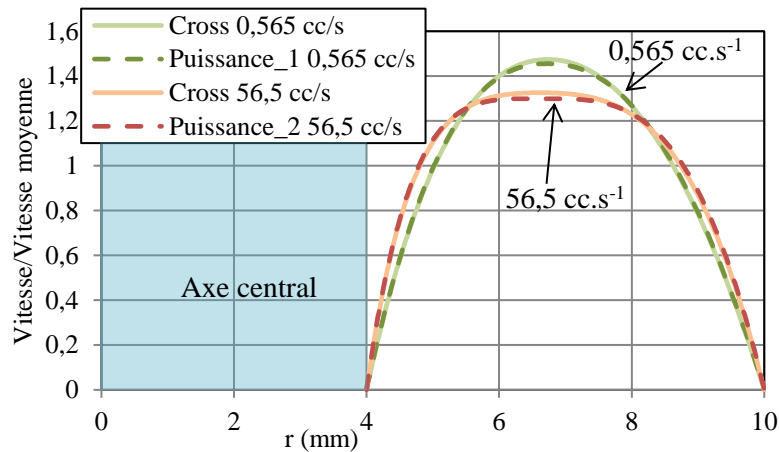


Figure 5 : Profils de « vitesse/vitesse moyenne » calculés avec la loi de Cross et les lois de puissance locales

Les profils de vitesse calculés avec les lois de puissance locales sont proches de ceux calculés avec la loi de Cross (figure 5). Les lois de puissance locales sont efficaces pour représenter le comportement rhéologique du matériau dans les plages d'écoulement correspondantes.

Quand la vitesse d'un écoulement annulaire du type loi de puissance est divisée par la vitesse moyenne, son profil ne dépend que de l'indice  $n_p$  [5,13]. Dans la figure 5, le profil de vitesse moins « pointu » pour un débit de  $56,5 \text{ cc.s}^{-1}$  correspond à une valeur de  $n_p$  plus petite. En effet, en fonction du débit de l'écoulement, un polymère du type loi de Cross peut avoir un profil de vitesse plus proche du cas Newtonien (débit faible) ou plus rhéo-fluidifiant (débit élevé). Grâce à ce phénomène, l'indice  $n_p$  d'une loi de puissance locale peut être déterminé avec la méthode de convection pour un débit donné.

La dissipation visqueuse (puissance volumique) peut être calculée à partir du profil de taux de cisaillement – la dérivée de la vitesse. On peut comparer les profils de dissipation visqueuse de la même façon, en divisant la dissipation visqueuse par sa moyenne pour chaque cas. Ces résultats sont présentés dans la figure 6.

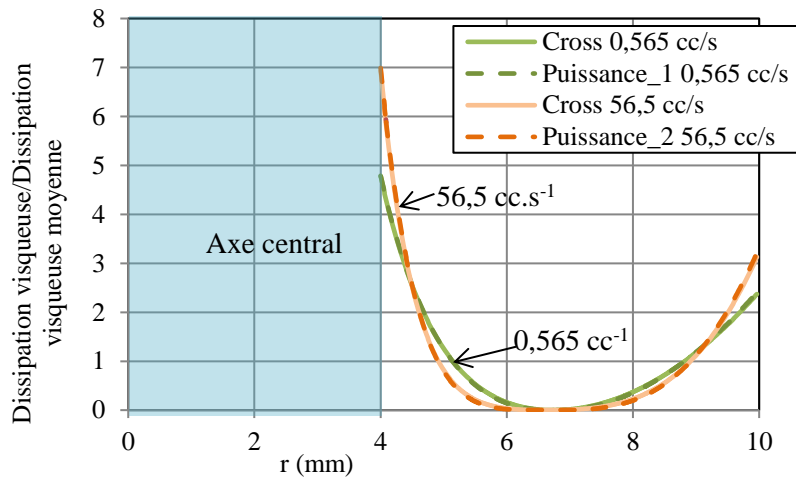


Figure 6 : Profils de « dissipation visqueuse/dissipation visqueuse moyenne » calculés avec la loi de Cross et les lois de puissance locales

Les lois de puissance identifiées permettent de reproduire les mêmes profils de dissipation visqueuse (figure 6).

Quand les profils de dissipation visqueuse et de vitesse calculés par les lois identifiées sont proches de ceux de référence, la chaleur va être générée de même façon au sein de l'écoulement et être apportée de même façon vers l'axe central par convection. Les mesures de température sur l'axe central seront également très proches entre le cas de la loi de Cross et celui d'une loi de puissance identifiée. On enregistre les profils de température le long de l'axe central du conduit pour réaliser une comparaison. Ces profils sont pris à la surface de l'axe central comme les thermocouples virtuels se situent également à la surface de l'axe (figure 2).

Les profils de température obtenus à  $56,5 \text{ cc.s}^{-1}$  avec la loi de Cross sont présentés dans la figure 7, sous forme de points de mesures virtuelles à différents instants. Les profils de température reconstruits à l'aide de la loi de puissance locale 2 y sont également tracés. Les conditions de température utilisées sont  $T_{in} = T_w = 473,15 \text{ K}$  (figure 2).

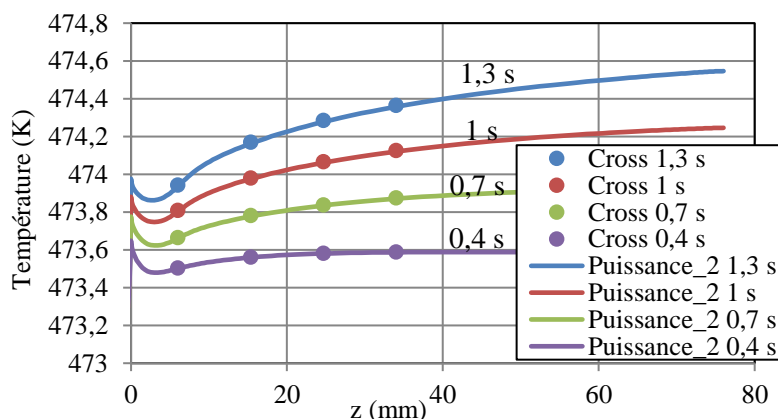


Figure 7 : Profils de température le long de l'axe central à différents instants calculés avec la loi de Cross et la loi de puissance locale 2

On constate dans la figure 7 qu'il y a déjà de l'auto-échauffement ( $T > T_{in}$ ) à la position  $z = 0 \text{ mm}$  en raison de la forme conique à l'extrémité de l'axe central pour  $z < 0 \text{ mm}$  (figure 2).

Du fait de la dissipation visqueuse, la température augmente le long de l'axe central et atteint son maximum à la sortie de l'écoulement, où une condition de Neumann est imposée (figure 2). La figure 7 montre qu'une loi puissance locale identifiée permet de reconstruire correctement le champ de température utilisé dans la méthode inverse.

Le champ de température à  $0,565 \text{ cc.s}^{-1}$  évolue de la même façon que celui sur la figure 7 mais avec moins d'amplitude. En effet, son amplitude est si faible ( $< 0,03 \text{ K}$ ) qu'elle est pratiquement impossible à mesurer. Dans cet article, nous choisissons le cas avec le débit à  $0,565 \text{ cc.s}^{-1}$  (quasiment en régime Newtonien) pour bien le différencier du cas pseudo-plastique afin de démontrer le mécanisme de la loi de puissance locale à l'aide d'outils numériques. Pour d'autres gammes de taux de cisaillement, d'autres lois de puissance locales peuvent être déterminées.

Les profils de température adimensionnée en régime stationnaire sont présentés dans la figure 8. Pour faciliter la représentation de différents profils de température sur la même figure, les températures sont adimensionnées par rapport à la température d'entrée ( $T_{in} = T_w = 473,15 \text{ K}$ , figure 2) du modèle d'éléments finis et à la température maximale de chaque profil :  $(T - T_{in}) / \max(T - T_{in})$ . La figure 8 montre que les lois de puissance locales sont performantes comme la loi de Cross pour prédire la variation de la température sur l'axe central.

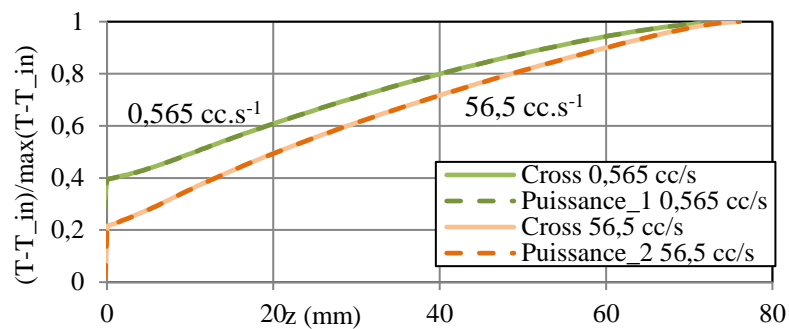


Figure 8 : Profils de température adimensionnés le long de l'axe central en régime stationnaire calculés avec la loi de Cross et les lois de puissance locales

À partir d'une loi de puissance locale pour un débit donné, il est également possible d'identifier un segment dominant (une plage de taux de cisaillement) sur une loi de viscosité complexe. Dans la figure 4, on voit que la loi de puissance locale 1 est proche de la loi de Cross, pour une plage de taux de cisaillement de  $0,5$  à  $5 \text{ s}^{-1}$ . Pour la loi de puissance locale 2, cette plage est de  $30$  à  $3000 \text{ s}^{-1}$ .

Selon les simulations, les plages de taux de cisaillement dans l'écoulement sont :

- de  $0$  à  $2,96 \text{ s}^{-1}$  pour le débit à  $0,565 \text{ cc.s}^{-1}$ ,
- de  $0$  à  $452 \text{ s}^{-1}$  pour le débit à  $56,5 \text{ cc.s}^{-1}$ ,

avec les valeurs maximales sur la surface de l'axe central.

#### 4. Conclusion

Des études numériques sont menées pour appliquer virtuellement des méthodes d'identification de la viscosité sur un matériau de type loi de Cross. Ces méthodes d'identification sont basées sur des événements thermiques (dissipation visqueuse et convection) et sur un modèle de type loi de puissance [5].

Le résultat montre qu'il est possible, à partir d'un débit constant, d'identifier une loi de puissance locale à deux paramètres pour une plage de taux de cisaillement fonctionnelle d'une

loi de puissance complexe. Par rapport aux démarches rhéométriques conventionnelles, les mesures thermiques offrent d'autres types d'information sur la viscosité. Ces méthodes thermiques sont adaptées pour la métrologie en ligne où le débit de production est imposé.

Actuellement, seule la méthode de dissipation visqueuse est testée expérimentalement pour une gamme limitée de taux de cisaillement [14]. D'autres études sont en cours.

## Références

- [1] P. Wappler, T. Horter, R. Kulkarni, T. Guenther, K.-P. Fritz, A. Zimmermann, Development of a nozzle capillary viscometer for inline viscosity measurement of thermoplastics, *Int J Adv Manuf Technol.* (2022). <https://doi.org/10.1007/s00170-021-08394-4>.
- [2] N.H. Abu-Zahra, Real-time viscosity and density measurements of polymer melts using dielectric and ultrasound sensors fusion, *Mechatronics.* 14 (2004) 789–803. <https://doi.org/10.1016/j.mechatronics.2003.11.001>.
- [3] Y. Uludag, M.J. McCarthy, G.A. Barrall, R.L. Powell, Polymer Melt Rheology by Magnetic Resonance Imaging, *Macromolecules.* 34 (2001) 5520–5524. <https://doi.org/10.1021/ma001543w>.
- [4] C. Pujos, Estimation de la rhéologie d'un polymère dans une filière d'extrusion - Simulation d'écoulement avec transferts thermiques et inversion de mesures, These de doctorat, Bordeaux 1, 2006.
- [5] Q. Lin, N. Allanic, R. Deterre, P. Mousseau, M. Girault, In-line viscosity identification via thermal-rheological measurements in an annular duct for polymer processing, *International Journal of Heat and Mass Transfer.* 182 (2022) 121988. <https://doi.org/10.1016/j.ijheatmasstransfer.2021.121988>.
- [6] B. Rabinowitsch, Über die viskosität und elastizität von solen, *Zeitschrift Für Physikalische Chemie.* 145 (1929) 1–26.
- [7] Q. Lin, N. Allanic, P. Mousseau, Y. Madec, G. Beau, R. Deterre, On-line melt temperature measurements for polymer injection molding through an instrumented annular duct, *Polymer Engineering & Science.* 62 (2022) 3994–4004. <https://doi.org/10.1002/pen.26161>.
- [8] Q. Lin, N. Allanic, M. Girault, R. Deterre, P. Mousseau, A New Solution for Viscosity Identification in a Polymer Production Line via Convection Analysis, *Key Engineering Materials.* 926 (2022) 1914–1920. <https://doi.org/10.4028/p-05ji5t>.
- [9] M.M. Cross, Rheology of non-Newtonian fluids: a new flow equation for pseudoplastic systems, *Journal of Colloid Science.* 20 (1965) 417–437.
- [10] J.-F. Agassant, P. Avenas, *Mise en forme des polymères (4e éd.): Approche thermomécanique de la plasturgie*, Lavoisier, 2014.
- [11] W. Ostwald, About the rate function of the viscosity of dispersed systems, *Kolloid Z.* 36 (1925) 99–117.
- [12] A. de Waele, Viscometry and plastometry, *Journal of Oil and Colour Chemists' Association.* 6 (1923) 33–88.
- [13] R. Deterre, F. Nicoleau, Q. Lin, N. Allanic, P. Mousseau, The flow of power-law fluids in concentric annuli: A full analytical approximate solution, *Journal of Non-Newtonian Fluid Mechanics.* 285 (2020) 104392. <https://doi.org/10.1016/j.jnnfm.2020.104392>.
- [14] Q. Lin, N. Allanic, P. Mousseau, M. Girault, R. Deterre, Monitoring and viscosity identification via temperature measurement on a polymer injection molding line, *International Journal of Heat and Mass Transfer.* 206 (2023) 123954. <https://doi.org/10.1016/j.ijheatmasstransfer.2023.123954>.