HAL
open science

Étude d'un procédé innovant de contre-collage d'emballages flexibles par des colles thermofusibles

Achraf Kallel

▶ **To cite this version:**

Achraf Kallel. Étude d'un procédé innovant de contre-collage d'emballages flexibles par des colles thermofusibles. Mécanique des matériaux [physics.class-ph]. Ecole Nationale Supérieure des Mines de Paris, 2015. Français. NNT : 2015ENMP0016 . tel-01216749

HAL Id: tel-01216749

https://pastel.hal.science/tel-01216749

Submitted on 16 Oct 2015

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

ParisTech
INSTITUT DES SCIENCES ET TECHNOLOGIES
PARIS INSTITUTE OF TECHNOLOGY

MINES ParisTech

École doctorale n° 364 : Sciences Fondamentales et Appliquées

Doctorat ParisTech

T H È S E

pour obtenir le grade de docteur délivré par

l'École nationale supérieure des mines de Paris

Spécialité " Sciences et Génie des Matériaux "

présentée et soutenue publiquement par

Achraf KALLEL

le 15 juin 2015

Étude d'un procédé innovant de contre-collage d'emballages flexibles par des colles thermofusibles

Directeurs de thèse : **Jean-François AGASSANT et Yves DEMAY**

Jury

M. Pierre ROUCHON, Professeur, Centre Automatique et Systèmes, Mines ParisTech, Paris	Président
M. André FORTIN, Professeur, Université Laval, Québec	Rapporteur
M. Roger KHAYAT, Professeur, Université de Western Ontario, Ontario	Rapporteur
M. David SILAGY, Docteur, Arkema, Colombes	Examinateur
M. Jean-François CHARTREL, Ingénieur, Bostik, Venette	Examinateur
M. Jean-François AGASSANT, Professeur, CEMEF, Mines ParisTech, Sophia Antipolis	Examinateur
M. Yves DEMAY, Professeur, LJAD, Université de Nice Sophia-Antipolis, Nice	Examinateur

T H È S E

MINES ParisTech
Centre de Mise En Forme des Matériaux - UMR CNRS 7635
Rue Claude Daunesse, BP 207, 06904 Sophia Antipolis Cedex, France

A mes parents Sadok et Thouraya

A mon frère Hatem et ma sœur Hela

A mon cher big boss Dodo

A mon grand-père Boubaker

A mes oncles Yadh et Abdelkader

A ma tante Alia et mes formidables cousins Mourad, Nabil et Sofiène

A l'esprit de mes oncles Ghazi et Fathi et de mes grand-mères Mahsouna et Nafissa, qu'ils reposent tous en paix !

Remerciements

Avant tout, je souhaite exprimer ma profonde reconnaissance à mes parents pour leur amour et leur investissement dans mon éducation. Tout au long de mon parcours, ils m"ont toujours soutenu, encouragé et aidé. Ils ont su me donner toutes les chances pour réussir. Qu"ils trouvent, dans la réalisation de ce travail, l"aboutissement de leurs efforts ainsi que l"expression de ma plus affectueuse gratitude.

Je tiens également à exprimer ma gratitude envers mes directeurs de thèse Jean-François Agassant et Yves Demay pour toute l"énergie qu"ils ont dépensée dans l"encadrement de mes travaux de recherche et notamment dans la correction de ce manuscrit. Ils se sont toujours montrés disponibles, et ont toujours fais de leur mieux pour m"apporter aide et conseil. Travailler à leurs côtés était un à la fois une chance et un grand honneur, étant donné leur grande réputation dans le monde de la recherche scientifique.

J"adresse un remerciement particulier aux membres du Jury pour avoir accepté de participer à l"évaluation de ce travail. Je tiens à remercier en premier lieu le professeur Pierre Rouchon pour avoir accepté de présider mon jury de thèse, les professeurs André Fortin et Roger Khayat pour avoir accepté la lourde tâche d"être les rapporteurs de ce jury et d"évaluer mon manuscrit de thèse. Mes remerciements vont aussi à Monsieur David Silagy qui a accepté d"examiner ce travail.

Cette thèse a été réalisée en collaboration avec l"entreprise Bostik que je souhaite remercier pour leur confiance et leur soutien, tant scientifique et technique, que financier. Je remercie en particulier Monsieur Jean-François Chartrel pour avoir accepté de participer à mon jury de thèse, pour ses encouragements et pour avoir mis à ma disposition tous les moyens nécessaires à l"aboutissement de cette étude. Je n"oublie pas de remercier Myriam Grisot-Saule pour ses conseils et pour avoir facilité la réalisation de mes campagnes d"essais chez Bostik. Je remercie également Emmanuel Balcaen qui a conduit ces essais sur la ligne pilote Revoluflex avec beaucoup d"enthousiasme et plein de bonne humeur. Je remercie également Lahoussaine Lalouch qui se plongeait dans l"armoire électrique pour nous dépanner à chaque fois qu"on rencontre une panne machine. Je tiens également à remercier tout le personnel du centre de recherche de Bostik et notamment Julien Balcaen, Martin Granouillet, Fabrice Flores, Christophe Robert, Marie-Claude Mur, Sherif Mitry, Julien Voitant, Anne-Marie, Stéphane Fouquay et Virginie Delcroix pour m"avoir aidé et facilité mon intégration dans l"entreprise.

J"adresse mes sincères remerciements à Elie Hachem et Francesca Rapetti pour leur contribution à mes travaux.

Un immense merci à l‟ensemble des permanents du CEMEF et notamment Suzanne Jacomet, Gabriel Monge, Romain Castellani et Cyrille Collin pour leur aide lors de l‟utilisation des différentes techniques expérimentales.

Je ne manquerais de remercier Rudy Valette, Bruno Vergnes, Edith Peuvrel-Disdier, Elie Hachem et Jean-Marc Haudin pour leurs conseils scientifiques. De même, je souhaite remercier Patrick Coels, Marie-Françoise Guénégan, Geneviève Anseeuw, Corinne Matarasso, Anne-Marie Cabanes, Isabelle Liotta, Muriel Bermont et Françoise Trucas pour leur aide sur le plan administratif et surtout leur gentillesse indéfinie.

Je remercie chaleureusement mes petits frères Ahmed Abdennadher et Fares Triki pour leurs conseils et encouragements. J‟ai beaucoup apprécié notre complicité, nos petites pauses café et nos fous rires. Vous avez rendu mon passage par l‟Ecole des Mines encore plus agréable.

Je remercie aussi les nombreuses personnes que j‟ai côtoyées pendant ces années de thèse notamment mes collègues de promotion de thèse et mes collègues de bureau. Une pensée à Ghina, Jérémy, Romain, Ali, Boris, Xavier, Sabrina, Antoine, Dorian, Abbas, Mehdi, Victor, Grégoire, Christophe, Ghazza, Laure, Sabri et Yasmina.

Enfin, je remercie ma famille et mes amis notamment Mohamed Ben Farhat, Salah Aouali, Arbi Khemir, Riadh Zouari et Bilel Daoud pour leur soutien tout au long de ce travail de thèse.

SOMMAIRE

CHAPITRE I : INTRODUCTION

CHAPITRE II : PROCEDE REVOLUFLEX & COLLES THERMOFUSIBLES

II.1 Présentation du procédé « Revoluflex » 4

II.1.1 Les paramètres du procédé..... 5

II.1.1.1 La température de la colle : 5

II.1.1.2 L"entrefer $2h_0$ 6

II.1.1.3 Le grammage de colle : 6

II.1.1.4 La vitesse d"étirage U_L : 6

II.1.1.5 Le taux d"étirage Dr (Draw ratio) : 7

II.1.1.6 La distance d"étirage L : 7

II.1.1.7 Le dénivelé de la position d"étirage par rapport au milieu la filière d : 7

II.1.1.8 Le différentiel de pression Δp :..... 7

II.2 Colles thermofusibles (hot melt) utilisées :..... 8

II.2.1 Composition des colles hot melt :..... 8

II.2.2 Caractérisation rhéologique des colles utilisées : 8

II.2.2.1 Conditions opératoires :..... 9

II.2.2.2 Résultats de la rhéomètrie dynamique :..... 10

II.2.2.2.1 Formule A188 : 10

II.2.2.2.2 Formule A190 : 13

II.2.2.3 Explication du plateau à basses fréquences :..... 14

II.2.2.4 Mesure du seuil d"écoulement pour les deux formules de colle : 16

II.2.2.5 Mesure d"un temps de relaxation caractéristique pour les deux formules de Colle : 17

II.3 Conclusion :..... 17

CHAPITRE III : ANALYSE DES DEFAUTS DU PROCEDE "REVOLUFLEX"

III.1 Les moyens et protocoles de caractérisation des défauts :..... 19

III.1.1 L"observation au microscope binoculaire :..... 19

III.1.2 L"observation au microscope électronique à balayage : 20

III.2 Defaut en « veines de chêne » 20

III.2.1 Caractérisation et analyse du défaut en « veines de chêne » : 20

III.2.2 Etude de l"influence des paramètres du procédé sur le défaut en « veines de chêne » : 22

III.2.2.1 Le protocole expérimental : 23

III.2.2.2 Résultats des essais : Influence des paramètres du procédé 24

III.2.2.2.1 Reproductibilité des essais 25

III.2.2.2.2 Influence de la dépression Δp 25

III.2.2.2.3 Influence du débit de colle : 25

III.2.2.2.4 Influence de la température de colle : 27

III.2.2.2.5 Influence de l'entrefer de la filière : 28

III.2.2.2.6 Influence du dénivelé de la filière : 29

III.2.2.2.7 Influence de la distance d'étirage : 30

III.2.2.2.8 Influence du dénivelé sur le différentiel de pression critique : 31

III.3 Le défaut de couverture : 32

III.3.1 Caractérisation et analyse du défaut de couverture : 33

III.3.1.1 Les petits canaux : 33

III.3.1.2 Les défauts surfaciques : 35

III.3.2 Effets du fluage de la colle en bobine sur le défaut de couverture : 37

III.4 Quantification du défaut de couverture en fonction des paramètres du procédé : 39

III.4.1 Protocole expérimental : 39

III.4.1.1 Protocole de mesure du taux de couverture sur une photo de la surface du film complexe: 39

III.4.1.2 Protocole de mesure du taux de couverture sur un film complexe échantillon 40

III.4.1.3 Plan d"expérience et paramètres du procédé testés 42

III.4.2 Résultats de la mesure du taux de couverture : 42

III.4.2.1 Influence du différentiel de pression Δp 43

III.4.2.2 Influence de la vitesse d"étirage $\boldsymbol{U_L}$ 44

III.4.2.3 Influence de la distance d"étirage $\boldsymbol{L}$ 46

III.4.2.4 Influence du dénivelé de la filière 48

III.5 Conclusion 49

CHAPITRE IV : MODELES MEMBRANE 1D

IV.1 Bibliographie :..... 53

IV.2 Présentation du modèle membrane 1D : 55

IV.2.1 Les paramètres du modèle : 55

IV.2.2 Les hypothèses du modèle 56

IV.2.3 Hypothèse cinématique :..... 56

IV.3 Modèle membrane Newtonien :..... 57

IV.3.1 Les équations du problème : 57

IV.3.1.1 Conservation de la matière : 57

IV.3.1.2 Comportement newtonien : 57

IV.3.1.3 Equations d"équilibre :..... 58

IV.3.1.4 Equation géométrique..... 59

IV.3.1.5 Conditions aux limites 59

IV.3.2 Les équations adimensionnelles :..... 60

IV.3.3 Solution stationnaire : 61

IV.3.3.1 Equations du problème : 61

IV.3.3.2 Résolution numérique :..... 61

IV.3.3.3 Résultats..... 63

IV.3.3.3.1 Mise en évidence d'une zone d'absence de solution stationnaire : 63

IV.3.3.3.2 Influence de l'hypothèse sur les conditions initiales sur la forme de la solution stationnaire 64

IV.3.3.3.3 Influence du taux d'étirage sur la courbe moyenne de la membrane 64

IV.3.3.3.4 Influence du nombre adimensionnel $\boldsymbol{B}$ sur la courbe moyenne de la membrane 65

IV.3.3.3.5 Influence du dénivelé $\boldsymbol{d}$ sur la forme de la membrane :..... 66

IV.3.4 Problème instationnaire : Stabilité 67

IV.3.4.1 La méthode de stabilité linéaire..... 67

IV.3.4.2 Les équations instationnaires :..... 67

IV.3.4.3 La résolution numérique du problème aux valeurs propres 68

IV.3.4.4 Résultats..... 70

IV.3.4.4.1 Spectre des valeurs propres : 70
IV.3.4.4.2 Recherche de courbes critiques dans le cas $\boldsymbol{d = 0}$ 72
IV.3.4.4.3 Influence du dénivelé *d* sur la stabilité du procédé : 73
IV.3.4.4.4 Influence du taux d'étirage sur la stabilité du procédé : 74

IV.4 Modèle membrane Viscoélastique (modèle de Maxwell surconvecté) : 77

IV.4.1 Les équations du problème : 77
IV.4.2 Les équations adimensionnelles : 79
IV.4.3 Solution stationnaire : 80
IV.4.3.1 Calcul de la géométrie : 80
IV.4.3.2 Calcul de la vitesse : 81
IV.4.3.3 Résultats : 82
IV.4.3.3.1 Mise en évidence d'une zone inatteignable : 82
IV.4.3.3.2 Influence du nombre de Deborah sur la forme de la solution stationnaire : 83
IV.4.4 Stabilité de la solution stationnaire : méthode de stabilité linéaire 85
IV.4.4.1 Les équations instationnaires : 85
IV.4.4.2 La résolution numérique du problème aux valeurs propres : 86
IV.4.4.3 Résultats : 87

IV.5 Conclusion 89

CHAPITRE V : MODELES 2D

V.1 Modèle 2D Newtonien sans différentiel de pression 93

V.1.1 Méthode de suivi d'interface (tracking strategy) : 93
V.1.1.1 Mise en équations du problème : 93
V.1.1.2 Problème stationnaire : la résolution numérique : 96
V.1.1.2.1 Le calcul des champs de vitesse et de pression par éléments finis: 96
V.1.1.2.2 Maillage utilisé et méthode de décomposition de domaine : 97
V.1.1.2.3 Le calcul numérique de la position de l'interface à l'état stationnaire : 100
V.1.1.2.3.1 Lissage de la position de l'interface par une méthode de point fixe : 100
V.1.1.2.3.2 Calcul de la position stationnaire de l'interface par une méthode de Newton-Raphson : 101
V.1.1.3 Résultats numériques : 102
V.1.1.3.1 Forme de l'interface en fonction du facteur de forme $\boldsymbol{A}$: 102

V.1.1.3.2 Forme de l'interface, champs de vitesse et de pression pour une courte distance d'étirage : 103
V.1.2 Méthode de simulation directe par capture d'interface (capturing strategy)..... 106
V.1.2.1 Domaine d"écoulement étendu et nouvelles conditions aux bords : 106
V.1.2.2 Méthode Level-Set locale à réinitialisation convective :..... 107
V.1.2.3 Résolution numérique du problème :..... 108
V.1.3 Comparaison des deux méthodes numériques utilisées :..... 111
V.2 Etude de la stabilité des solutions stationnaires : 111
V.2.1 Méthode de stabilité linéaire : équations linéarisées : 111
V.2.2 Méthode de simulation directe :..... 113
V.2.3 Comparaison des deux méthodes numériques en termes de stabilité : 113
V.2.4 Résultats de stabilité : 114
V.2.4.1 Influence du facteur de forme sur la stabilité : 114
V.2.4.2 Influence du taux d"étirage sur la stabilité : 115
V.3 Modèle 2D Newtonien tenant compte d'un différentiel de pression entre les deux faces du film de polymère 116
V.3.1 Mise en équations du problème : 116
V.3.2 Problème stationnaire : la résolution numérique des équations:..... 117
V.3.2.1 Résolution du problème de Stokes : le calcul des champs de vitesse et de pression : 118
V.3.2.2 Maillage utilisé : 118
V.3.2.3 Calcul numérique de la position des deux interfaces à l"état stationnaire:... 119
V.3.2.4 Résultats numériques de l"approche stationnaire : 121
V.3.2.4.1 Comparaison avec le modèle 2D précédent pour $\Delta \boldsymbol{p} = \mathbf{0}$:..... 121
V.3.2.4.2 Forme de l'interface en fonction du facteur de forme $\boldsymbol{A}$:..... 122
V.3.2.4.3 Champs de pression et de contraintes..... 123
V.3.2.4.4 Influence du différentiel de pression sur la singularité de contrainte en sortie de filière : 124
V.3.3 Etude de la stabilité des solutions stationnaires :..... 125
V.3.3.1 Méthode de stabilité linéaire : équations linéarisées : 125
V.3.3.2 Résultats de stabilité :..... 126
V.3.3.2.1 Effet du différentiel de pression sur la stabilité de la solution stationnaire :..... 127
V.3.3.2.2 Effet du taux d'étirage sur la stabilité de la solution stationnaire : 128

V.3.3.2.3 Effet du facteur de forme sur la stabilité de la solution stationnaire : 129

V.4 Conclusions : 129

CHAPITRE VI : COMPARAISON ENTRE LE MODELE MEMBRANE ET LE MODELE 2D

VI.1 Cas d'un différentiel de pression nul : 135

VI.2 Cas d'un différentiel de pression non nul : 136

VI.2.1 Courbe moyenne de l'écoulement : 136

VI.2.1.1 Premier cas : $\boldsymbol{A = 15}$ et $\boldsymbol{\Delta p = 0.022}$: 136

VI.2.1.2 Deuxième cas : $\boldsymbol{A = 10}$ et $\boldsymbol{\Delta p = 0.1}$: 137

VI.2.2 Profil de vitesse sur la courbe moyenne de l'écoulement : 137

VI.2.3 Conditions initiales du modèle membrane : 138

VI.2.4 Stabilité : 140

VI.2.5 Dénivelé 141

VI.3 Conclusions : 142

CHAPITRE VII : DISCUSSION

VII.1 Analyse des paramètres adimensionnels: 143

VII.2 Le défaut en « veines de chêne » : 145

VII.2.1 Effet du différentiel de pression sur la stabilité : 146

VII.2.2 Effet du taux d'étirage sur la stabilité : 148

VII.2.3 Effet de la viscoélasticité sur la stabilité : 150

VII.3 Le défaut de couverture : 151

VII.4 Conclusion : 154

CONCLUSIONS & PERSPECTIVES

ANNEXES

Chapitre I : Introduction

Le travail présenté s"inscrit dans le cadre de l"étude d"un procédé de contre-collage de films flexibles original par extrusion-couchage de colles thermofusibles. Ce procédé, appelé « Revoluflex », est très prometteur puisqu"il utilise des colles hot-melt qui ne présentent aucun danger pour les opérateurs (contrairement aux procédés actuels qui utilisent des colles Polyuréthanes comportant des composés dangereux tels que les isocyanates) d"une part et qu"il permet d"améliorer la productivité et réduire les temps de production d"autre part. Cependant, il présente actuellement quelques défauts d"aspect, principalement des instabilités et des déchirures sur le film de colle. Ces défauts dégradent l"aspect visuel du film complexe ce qui empêche la commercialisation de ce procédé. On est donc confronté à un défi qui consiste à comprendre l"origine de ces défauts d"aspect afin de pouvoir les supprimer ou, au moins, en différer l"apparition, ce qui définit bien l"objectif de ce travail.

Dans le deuxième chapitre, on présente le procédé « Revoluflex » ainsi que les colles thermofusibles utilisées. Une caractérisation du comportement de ces colles en rhéométrie dynamique est également présentée.

Dans le troisième chapitre, on décrit deux parmi les défauts du procédé et on présente la caractérisation expérimentale de ces deux défauts ainsi que leurs conditions d"apparition en fonction des paramètres du procédé.

Dans le quatrième et le cinquième chapitre, on développe des modèles mathématiques de complexité croissante et on réalise des calculs stationnaires et instationnaires sur ces modèles afin d"expliquer l"origine des défauts du procédé. Le troisième chapitre concerne les modèles membrane 1D où le cas d"un fluide Newtonien et d"un fluide viscoélastique ont été traités. Le quatrième chapitre concerne plutôt des modèles 2D Newtonien dans l"épaisseur du film de colle extrudé.

Dans le sixième chapitre, on compare les résultats des modèles membrane 1D à ceux des modèles 2D, ce qui permet de valider certains aspects des modèles membranes.

Dans le septième chapitre, on discute l"occurrence des deux défauts du procédé présentés au deuxième chapitre sous l"éclairage des résultats des différents modèles mathématiques développés.

Ce manuscrit se termine en donnant les conclusions et perspectives de notre travail.

Chapitre II : Procédé Revoluflex & colles thermofusibles

Le domaine des emballages flexibles est un secteur industriel très important puisqu'il fournit des solutions d'emballage adaptées notamment aux besoins de plusieurs fabricants de produits agro-alimentaires. L'industrie mondiale de l'emballage flexible réalise un volume global de 25000 kT en 2014 dont environ 65% concerne le secteur agro-alimentaire.

D'une manière générale, un emballage alimentaire doit assurer plusieurs fonctions : non seulement la protection du produit mais aussi la conservation de ses qualités organoleptiques, l'information du client sur les ingrédients du produit et son mode d'utilisation, la promotion du produit (aspect visuel marketing), etc. Afin de garantir ces fonctions et en fonction du produit emballé, chaque emballage flexible doit répondre à un certain nombre d'exigences en termes de propriétés barrières, propriétés de scellage, résistance mécanique, résistance thermique, résistance chimique, imprimabilité, propriétés optiques, etc. Le développement d'emballages flexibles multicouches a permis de combiner les propriétés de plusieurs matériaux et donc d'optimiser au maximum les fonctions d'un emballage alimentaire.

Il existe principalement deux procédés pour fabriquer des films multicouches : la coextrusion et le contre-collage. Le procédé de coextrusion consiste à extruder simultanément un film de plusieurs couches. Par contre, le procédé de contre-collage consiste à coller deux films plastiques flexibles par l'intermédiaire d'une couche fine d'adhésif pour obtenir un film multicouche appelé film complexe. Comme un emballage flexible doit être imprimé et que l'encre d'impression doit être bien protégée des griffures et égratignures pendant toute la durée de vie de l'emballage, le procédé de contre-collage est le plus adapté à la fabrication des emballages flexibles. En effet, l'avantage du procédé de contre-collage est qu'il est possible de protéger l'encre d'impression entre les deux films flexibles en considérant un film transparent imprimé, contrairement au procédé de coextrusion où l'encre ne peut être qu'à la surface du film multicouche (figure II.1). Néanmoins, les films primaire et secondaire utilisés dans le procédé de contre-collage sont fabriqués par coextrusion de film à plat.

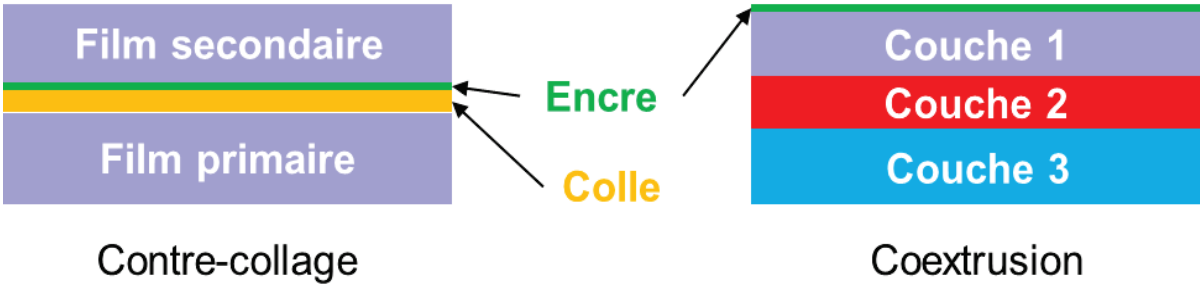


Figure II.1 - Structure d'emballages multicouches imprimés obtenus par contre-collage et coextrusion

Les adhésifs utilisés actuellement dans l'industrie sont des adhésifs polyuréthanes qui résultent de la réaction de deux composants : des isocyanates et des produits hydroxylés

(généralement des polyols). La réaction entre ces deux composants se poursuit après le contre-collage (en bobine) jusqu"à la réticulation (ou durcissement) complète de la colle. La réticulation de la colle dure 1 ou 2 jours et elle est favorisée par la température, ce qui pose un problème pendant l"hiver dans les régions froides et oblige le recours à des chambres de réticulation. Ces adhésifs polyuréthanes peuvent être appliqués en milieu solvanté à température ambiante ou sans solvant à environ 80°C [Cognard, 2004]. Ils sont appliqués par le contact entre un cylindre enducteur métallique et le film primaire. De plus, les isocyanates contenus dans ces colles sont réputés nocifs dans un cadre réglementaire qui devient de plus en plus sévère. C"est dans ce contexte que l"entreprise Bostik a imaginé un procédé innovant de contre-collage de films flexibles qui consiste à utiliser plutôt des adhésifs thermofusibles. Il s"agit d"adhésifs thermoplastiques qui sont appliqués à l"état fondu et qui réalisent leur prise en se solidifiant par refroidissement. Ces adhésifs représentent un double intérêt : d"une part ils ne présentent aucun risque ni pour l"environnement ni pour la santé des personnes et d"autre part, ils permettent un collage immédiat des films à l"inverse des colles polyuréthanes qui nécessitent un temps de réticulation d"un jour ou plus. Cet avantage permet donc de réduire nettement les temps de production, d"améliorer la productivité et de réduire les risques professionnels. Cependant, l"application de ces colles hot-melt n"est pas possible avec les procédés de contre-collage traditionnels vu leurs viscosités élevées à la température ambiante. Il est donc nécessaire de les appliquer à haute température (140 – 180 °C) sans contact de l"outil avec le film flexible. C"est ainsi qu"on a développé le procédé de contre-collage de films flexibles par des colles *hot melt* appelé « Revoluflex ». Il représente un procédé d"extrusion-couchage particulier qui consiste à extruder un film de colle *hot melt* et de l"étirer dans l"air avant de le coucher sur un film flexible.

Cependant, ce procédé présente actuellement quelques défauts d"aspect, principalement des instabilités et des déchirures sur le film de colle. Ces défauts dégradent l"aspect visuel du film complexe et particulièrement l"aspect des informations imprimées sur l"emballage, ce qui empêche la commercialisation de ce procédé.

II.1 Présentation du procédé « Revoluflex »

Dans le procédé « Revoluflex », l"adhésif est fondu à une température qui varie entre 140°C et 180°C (selon la formule) pour qu"il puisse être mis en œuvre. L"adhésif fondu est ensuite extrudé à travers une filière plate (entrefer $\sim 1\ mm$) puis étiré dans l"air sur une très courte distance ($\sim 1\ mm$) à des taux d"étirage très importants (supérieurs à 100) et enfin déposé sur le film plastique primaire (figure II.2). L"application de taux d"étirage élevés permet de réduire considérablement l"épaisseur du film extrudé, ce qui permet de déposer une fine couche de colle ($\sim 3 - 5\ \mu m$). Une pompe à vide, placée au-dessous du film extrudé, permet de stabiliser le procédé et d"empêcher l"admission de bulles d"air entre le film primaire et l"adhésif. Un film plastique secondaire est ensuite déposé sur le film primaire pour former le film complexe. Finalement, le film complexe obtenu est enroulé sur un mandrin et stocké sous forme de bobines.

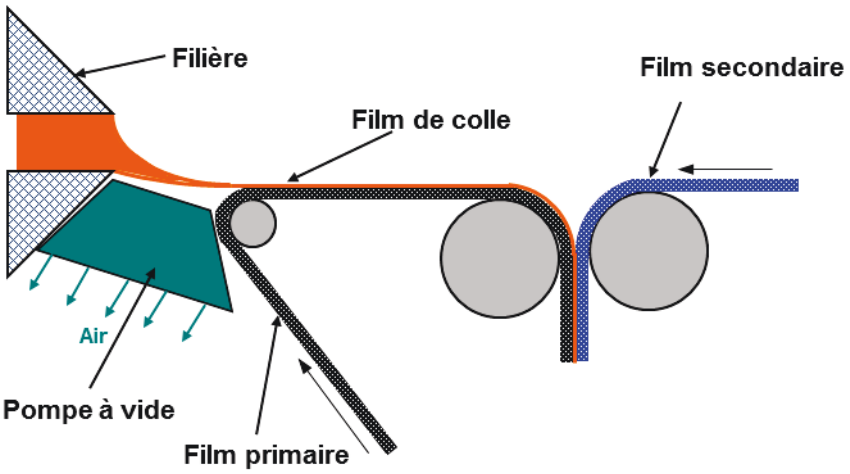


Figure II.2 - Schéma simplifié de la zone de contre-collage dans le procédé « Revoluflex »

II.1.1 Les paramètres du procédé

L'équipement pilote utilisé lors des essais offre plusieurs possibilités de réglage. Les paramètres du procédé qui permettent le réglage de cet équipement pilote sont exposés en détail ci-après. La figure II.3 permet d'identifier ces paramètres géométriques.

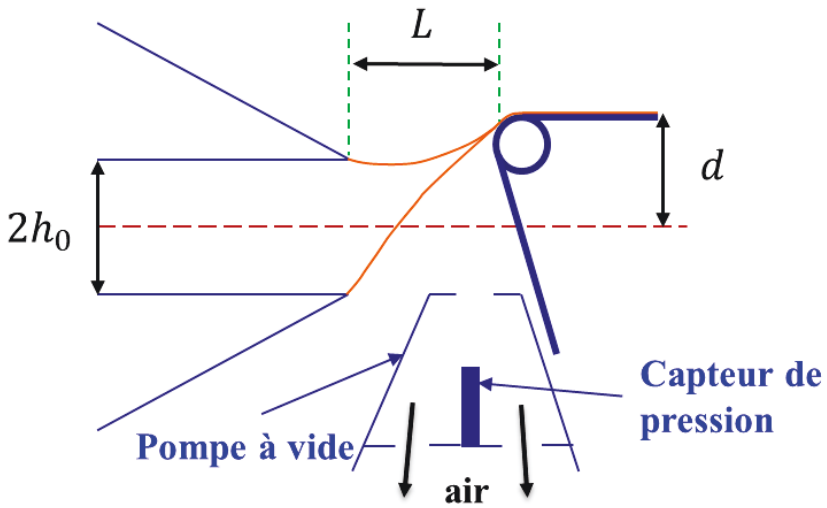


Figure II.3 – Paramètres géométriques du procédé

II.1.1.1 La température de la colle :

Elle est imposée de façon homogène dans tout le circuit de la colle (le fondoir, les tuyaux et la buse d'extrusion) par un système de régulation thermique. Elle a une influence directe sur la viscosité de la colle. Elle est comprise en général entre 140°C et 180°C. Cette température reste constante au cours de l'étirage et donc la colle subit une trempe en arrivant sur le film primaire. Un calcul des transferts thermiques sur un modèle membrane de type *Cast film* permet de démonter le caractère isotherme du procédé au cours de l'étirage (Annexe I).

II.1.1.2 L'entrefer $2h_0$

Il s"agit de l"entrefer de la filière plate (figure II.3). Il peut être ajusté uniquement en démontant la buse et en insérant sur les côtés de la filière des cales dont l"épaisseur est connue. L"entrefer définit donc l"épaisseur initiale du film adhésif extrudé.

II.1.1.3 Le grammage de colle :

Ce terme traduit la masse de colle qui a été déposée sur un m² de film primaire. Il est à noter que la colle n"est généralement pas déposée de manière homogène sur la largeur du film primaire. Cependant, il est possible de considérer une épaisseur moyenne h_L de la couche de colle selon la direction transverse. Dans ce cas, on peut exprimer le grammage en fonction de l"épaisseur moyenne déposée comme suit :

$$grammage = \rho\, h_L$$

avec ρ la masse volumique de la colle qui vaut approximativement 900 kg/m^3.

Sur la ligne pilote, il est possible d"imposer des grammages allant de 0.5 à 20 g/m² et même plus mais le procédé « Revoluflex » a été développé pour déposer un faible grammage qui ne dépasse pas 4 à 5 g/m² ($\sim 3 - 5\ \mu m$).

II.1.1.4 La vitesse d'étirage U_L :

Il s"agit de la vitesse de déplacement du film primaire. La ligne pilote peut fonctionner à des vitesses allant de 30 à 600 m/min mais le procédé a été conçu pour tourner à des vitesses supérieures à 300 m/min pour des raisons de productivité.

Comme la distance d"étirage est très courte (de l"ordre de 0.5 mm), le phénomène de « necking » (rétrécissement du film au cours de l"étirage) devient négligeable et donc la largeur du film extrudé $W = 300mm$ est considérée comme constante. Ainsi, par conservation du débit (régime permanent), on peut déduire la relation suivante qui relie le débit massique par unité de largeur Q, l"entrefer $2h_0$, la vitesse moyenne d"extrusion $\overline{U_0}$, l"épaisseur moyenne déposée h_L et la vitesse d"étirage U_L :

$$Q = 2\rho h_0 \overline{U_0} = \rho h_L U_L \qquad \text{(II.1)}$$

Comme la machine a été conçue et étalonnée pour imposer le grammage et non pas l"épaisseur du film de colle déposé, il est plus commode d"écrire l"équation (II.1) sous la forme suivante :

$$Q = 2\rho h_0 \overline{U_0} = U_L\ grammage \qquad \text{(II.2)}$$

Il est donc clair qu"on ne peut imposer que 3 paramètres à la fois parmi $2h_0$, $\overline{U_0}$, U_L et le grammage. Sur la ligne pilote, il est possible d"imposer l"entrefer, la vitesse d"étirage et le grammage. La vitesse moyenne d"extrusion est donc calculée à partir de l"équation de conservation du débit.

II.1.1.5 Le taux d'étirage Dr (Draw ratio) :

Le taux d'étirage est un paramètre très important dans le procédé. Il est défini par le rapport de la vitesse d'étirage U_L sur la vitesse moyenne d'extrusion $\overline{U_0}$:

$$Dr = \frac{U_L}{\overline{U_0}} \qquad \text{(II.3)}$$

En utilisant l'équation de conservation du débit (II.2) et l'équation (II.3), le taux d'étirage peut s'écrire :

$$Dr = \frac{2h_0}{h_L} = \frac{h_0\,\rho}{grammage} \qquad \text{(II.4)}$$

On remarque donc qu'il représente également le taux de réduction de l'épaisseur du film extrudé. Le taux d'étirage est imposé sur la machine pilote indirectement : $2h_0$, V_L et le grammage sont imposés et le taux d'étirage est calculé par la suite grâce à l'équation (II.4).

II.1.1.6 La distance d'étirage L :

Il s'agit de la distance qui sépare horizontalement la sortie de filière et l'endroit où le film de colle arrive au contact du film primaire (figure II.3). Elle est ajustée de manière relativement précise en passant une cale d'épaisseur connue entre la sortie de filière et le couteau à air qui guide le mouvement du film primaire. Il est possible d'imposer cette distance entre 0.4 et 1.8 mm et même plus. Cependant pour amorcer le procédé automatiquement, on doit partir d'une faible distance d'étirage et l'augmenter au cours du contre-collage.

II.1.1.7 Le dénivelé de la position d'étirage par rapport au milieu la filière d :

Il s'agit de la hauteur relative du point de contact entre le film extrudé et le film primaire par rapport à la filière (figure II.3). S'agissant d'un équipement pilote, le réglage du dénivelé est très délicat : à cause de l'encombrement au voisinage de la filière et de la faible valeur du dénivelé, la mesure reste approximative et la précision est en partie visuelle.

Par ailleurs, l'axe de la filière fait un angle avec l'horizontale. Ainsi, on n'est jamais sûr d'avoir gardé la même géométrie entre deux campagnes d'essais successives. Par contre, on peut mesurer précisément un dénivelé par rapport à une position de référence puisque la position de la filière en hauteur peut être lue sur un compteur en centième de millimètre.

II.1.1.8 Le différentiel de pression Δp :

Une pompe à vide est positionnée en dessous du film adhésif extrudé afin d'empêcher l'admission de bulles d'air entre le film primaire et le film de colle (figure II.3). Cette pompe à vide aspire l'air au voisinage du film de colle en imposant un débit constant. Le différentiel de pression est mesuré à l'aide d'un capteur de pression placé à l'intérieur de la pompe à vide. Donc, cette mesure n'est pas précise puisqu'elle est réalisée loin du film de colle. De plus, elle dépend des paramètres géométriques du procédé notamment le dénivelé de la filière par rapport à la position d'étirage et elle doit varier spatialement (figure II.3). Donc, la détermination de la pression au voisinage de la face inférieure du film adhésif passerait par la résolution d'un problème d'aérodynamique avec couplage fluide-structure complexe.

II.2 Colles thermofusibles (*hot melt*) utilisées :

Le procédé « Revoluflex » a été conçu spécialement pour contre-coller deux films plastiques en utilisant un faible grammage d"une colle thermofusible. Il s"agit d"un produit qui est solide à la température ambiante et liquide à haute température et qui permet de coller deux substrats de différents matériaux (PE, PP, PET, bois, papier,...). Donc c"est un adhésif thermoplastique qui doit être appliqué à chaud et qui réalise sa prise par refroidissement. Il est souvent sous forme de granulés, bâtonnet ou pastilles. Les colles *hot melt* sont utilisées dans plusieurs domaines comme l"emballage, les couches pour bébés et le collage de bois. Ce paragraphe est consacré à la présentation et la caractérisation rhéologique des colles *hot melt* utilisées pendant les essais ([Satas, 1989], [Benedek, 2004], [Benedek, 2006], [Benedek, 2009]).

II.2.1 Composition des colles hot melt :

Une formule de colle *hot melt* est en général composée d"un polymère, d"une ou plusieurs résines tackifiantes, de plastifiants (cires et paraffines) et d"additifs [Satas, 1989]. Le polymère est l"élément de base dans la formule puisqu"il confère à la colle ses caractéristiques principales (cohésion, résistance, tenue en température, viscosité à l"état fondu). Il peut être par exemple un copolymère de type Éthylène-acétate de vinyle (EVA) ou bien un copolymère à bloc de styrène (SIS, SBS, SEBS,...). Le choix des autres composants dépend fortement du choix de la structure chimique du polymère. Les résines tackifiantes, quant à elles, sont des thermoplastiques amorphes de faibles masses moléculaires (entre 300 et 1400 g/mol). Elles confèrent à la formule un *tack*[1] important à chaud, ce qui permet un collage rapide et un réglage des propriétés rhéologiques. Les résines tackifiantes sont de deux types : des résines naturelles dérivées essentiellement de la colophane ou bien des résines de synthèse issues essentiellement de la polymérisation de coupes pétrolières C5 et C9. Enfin, les plastifiants sont utilisés pour améliorer les propriétés mécaniques de la colle et lui apporter de la souplesse et de la tenue au choc ([Satas, 1989], [Benedek, 2009]).

Toutes les colles *hot melt* développées pour le procédé « Revoluflex » sont formulées avec le même polymère, à savoir le copolymère tri-bloc Styrène-Isoprène-Styrène (SIS). Des résines tackifiantes d"origine naturelle et d"origine synthétique sont utilisées avec des proportions différentes selon la formule. Ces résines tackifiantes peuvent être compatibles avec le styrène ou bien l"isoprène [Benedek, 2009].

Les formules de colles développées doivent satisfaire plusieurs exigences en termes notamment de force de pelage et de transparence.

Les défauts engendrés par le procédé « Revoluflex » sont influencés par les paramètres du procédé mais aussi par les propriétés rhéologiques des colles utilisées, d"où l"intérêt de la caractérisation rhéologique de ces adhésifs thermofusibles.

II.2.2 Caractérisation rhéologique des colles utilisées :

Les formules de colles A188 et A190 représentent les deux formules les plus utilisées pendant les essais sur la ligne pilote. La différence entre ces deux formules réside essentiellement dans

[1] *Tack* : C"est le caractère collant (poisseux) d'une colle, il indique le pouvoir d'adhérence immédiat de la colle à l'instant où les deux pièces entrent en contact.

le choix des résines tackifiantes, d"origine naturelle et d"origine synthétique, et dans les proportions entre ces deux résines qui ne peuvent être dévoilées pour des raisons de confidentialité. De plus, la formule A188 contient, en plus du polymère et des résines tackifiantes, une huile naphténique qui joue le rôle de plastifiant.

Ces deux formules ont été caractérisées par rhéométrie dynamique. L"objectif des mesures de rhéométrie dynamique est d"avoir une idée de la viscosité complexe, du temps de relaxation caractéristique et de l"élasticité de ces deux formules de colle en fonction de la température et du taux de cisaillement. Ces grandeurs permettront de calculer par la suite des nombres adimensionnels utilisés dans la partie modélisation pour permettre de confronter les résultats numériques avec l"expérimentation. Notons que ces mesures rhéologiques sont réalisées dans des conditions très différentes des conditions du procédé.

II.2.2.1 Conditions opératoires :

Les analyses rhéologiques sur les formules A188 et A190 ont été réalisées avec un rhéomètre rotatif Anton Paar MCR 302, à contrainte imposée, équipé d"un système plan-plan de diamètre 25mm. Afin d"étudier l"effet de la température sur le comportement rhéologique de ces colles *hot melt*, un large intervalle de températures a été exploré : de 80°C à 170°C. Un entrefer de 0.2 mm a été fixé pour tous les tests.

Le principe de la rhéomètrie dynamique consiste à cisailler le produit à l"état fondu entre deux plans en imposant une déformation périodique $\gamma(t) = \gamma_0 \sin(\omega t)$ avec γ_0 l"amplitude de la déformation et ω sa pulsation, et de mesurer le couple résultant et donc la contrainte résultante $\sigma(t)$ et son déphasage δ: $\sigma(t) = \sigma_0 \sin(\omega t + \delta)$ avec $0 \leq \delta \leq \frac{\pi}{2}$. La réponse en contrainte peut se décomposer en une réponse de type élastique qui est en phase avec la déformation et une réponse visqueuse qui est en quadrature de phase retard par rapport à la déformation ([Carrot, 1999], [Agassant, 2014]). On définit le module élastique G' et le module visqueux G'' par :

$$\begin{cases} G'(\omega) = \dfrac{\sigma_0}{\gamma_0} \cos \delta \\ G''(\omega) = \dfrac{\sigma_0}{\gamma_0} \sin \delta \end{cases}$$

On définit la viscosité complexe par $\eta^*(\omega) = \frac{G^*}{\omega}$ avec $G^* = \sqrt{G'^2 + G''^2}$. La règle de Cox-Merz qui permet d"assimiler la viscosité fonction du taux de cisaillement à la viscosité complexe $|\eta^*(\omega)| = \frac{\sqrt{G'^2+G''^2}}{\omega}$ fonction de la pulsation ω, nous permettra d"avoir une information sur la viscosité des produits en fonction du taux de cisaillement. Cette règle de Cox-Merz n"est pas évidente pour des systèmes complexes mais on l"utilise puisqu"elle a été justifiée par des travaux internes sur des colles *hot melt* équivalentes [Uhalte, 2011].

On remarque qu"on est confronté dans la filière à des taux de cisaillement de 10 à 1200 s^{-1} et que l"écoulement entre la filière et le contact avec le film support est essentiellement élongationnel. Cependant, la viscosité élongationnelle est difficile à mesurer compte tenu des taux d"élongation très importants utilisés dans le procédé ($\dot{\alpha} = 400 - 13000\, s^{-1}$). Par

conséquent, des mesures en rhéomètrie dynamique sont réalisées et serviront de support à la modélisation.

II.2.2.2 Résultats de la rhéomètrie dynamique :

II.2.2.2.1 Formule A188 :

Dans un premier temps, il est nécessaire de tester, à température donnée, la stabilité dans le temps du produit. Ensuite, on effectue, à fréquence donnée un balayage en déformation afin d'établir le domaine linéaire. Nous avons donc vérifié que cette colle est stable à 160°C pendant plusieurs heures. De plus, nous avons trouvé qu'à 130°C, les modules G' et G'' sont indépendants du taux de déformation imposé entre 0% et 30%. Nous avons donc choisi d'utiliser une déformation d'amplitude $\gamma_0 = 5\%$ pour tous les essais.

Des balayages en fréquence entre 0.01 rad/s et 100 rad/s à une déformation d'amplitude $\gamma_0 = 5\%$ ont été réalisés à des températures allant de 80°C à 170°C.

Les figures (II.4) et (II.5) montrent l'évolution des modules G' et G'' en fonction de la pulsation ω à 90°C et 170°C respectivement. On remarque qu'à 90°C, le module élastique G' est plus important que le module visqueux G'' pour les hautes fréquences alors qu'il devient moins important aux basses fréquences. Aux deux températures, il existe un domaine de fréquences où les pentes de G' et de G'' sont respectivement de 2 et de 1 ce qui est cohérent avec les modèles théoriques de viscoélasticité linéaire. À 170°C, on retrouve ces pentes théoriques à des fréquences élevées mais également l'apparition d'un plateau pour le module élastique à basse fréquence.

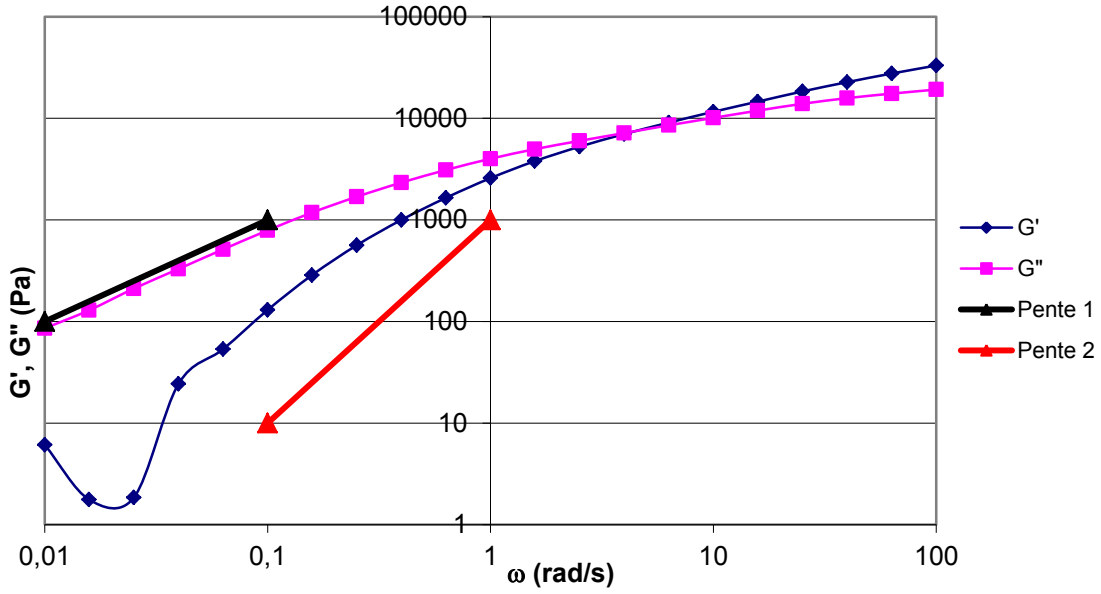


Figure II.4 - Balayage en fréquence pour A188 à 90°C

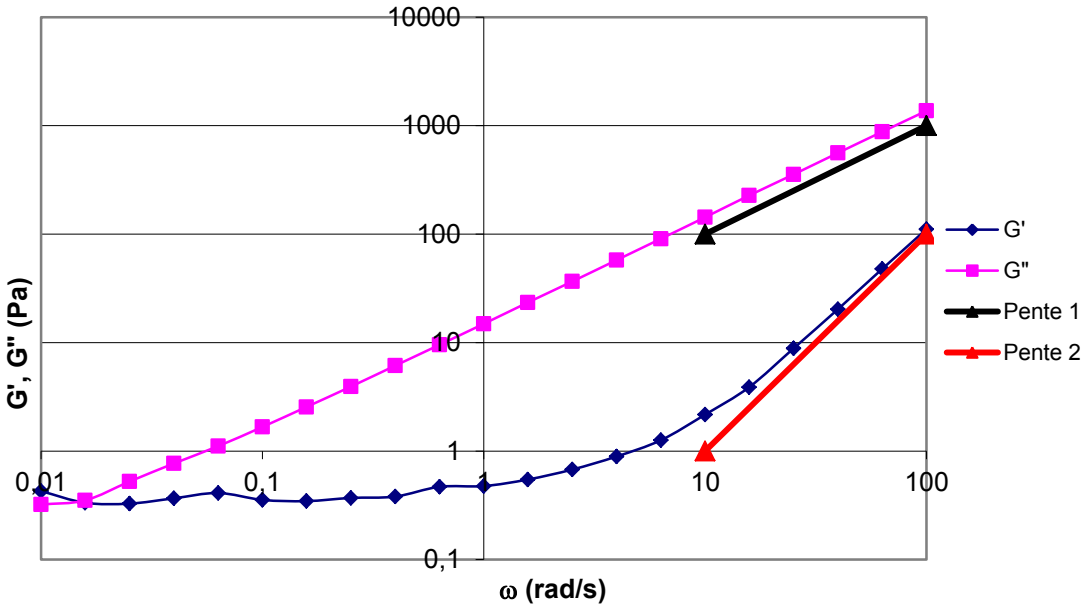


Figure II.5 - Balayage en fréquence pour A188 à 170°C

Afin d'élargir la gamme des pulsations accessibles, le principe de superposition temps-température a été utilisé. Ce principe consiste à relier la viscosité à une température T à la viscosité à la température T_0 par un facteur de glissement a_T défini par :

$$a_T = \frac{\eta(T)T_0\rho_0}{\eta(T_0)T\rho}$$

avec ρ *et* ρ_0 les masses volumiques respectivement à T et T_0. En considérant que le rapport $\frac{T_0\rho_0}{T\,\rho}$ varie peu dans la gamme habituelle de température, on peut simplifier le facteur de glissement :

$$a_T = \frac{\eta(T)}{\eta(T_0)}$$

Un facteur de glissement vertical $b_T = \frac{T_0\,\rho_0}{T\,\rho}$ qui permet de pallier à la variation de la masse volumique est utilisé. Le coefficient de glissement a_T peut être exprimé selon une loi d'Arrhenius comme suit :

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

E étant l'énergie d'activation et R la constante des gaz parfaits.

Les coefficients a_T et b_T étant déterminés, une énergie d'activation selon une loi d'Arrhenius a été calculée pour chaque température. On remarque que l'énergie d'activation n'est constante que sur une partie du domaine de température (figure II.6). Donc, on est confronté à un changement d'état de la colle à environ 120°C. Des analyses en DSC sur cette formule n'ont pas permis de voir cette transition de phase à 120°C. Par conséquent, on ne peut appliquer le principe de superposition temps-température que sur les courbes relatives au

domaine sur lequel l"énergie d"activation est constante (de 110°C à 170°C). Nous calculons donc une énergie d"activation moyenne $E_a = 81\ kJ/mol$ sur cet intervalle de températures. C"est effectivement dans ce domaine de températures que s"effectue l"étirage et le dépôt de colle.

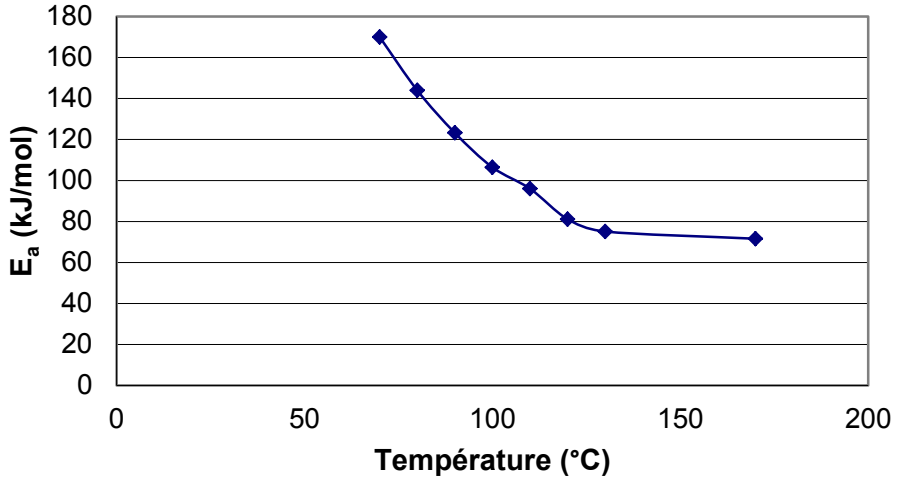


Figure II.6 - Energie d'activation en fonction de la température (A188)

Les courbes maîtresses des modules G" et G""" et de la viscosité complexe $|\eta^*|$ à 160°C sont données respectivement par les figures II.7 et II.8.

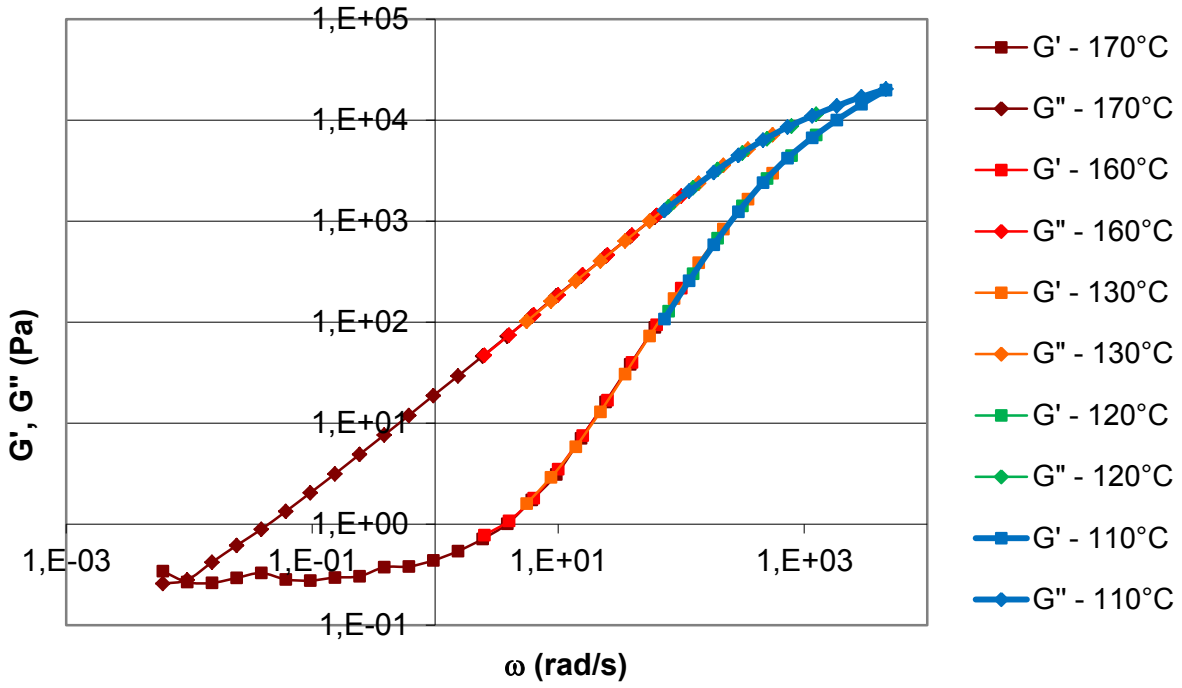


Figure II.7 - Courbes maîtresses de G' et G" pour la formule A188 à 160°C

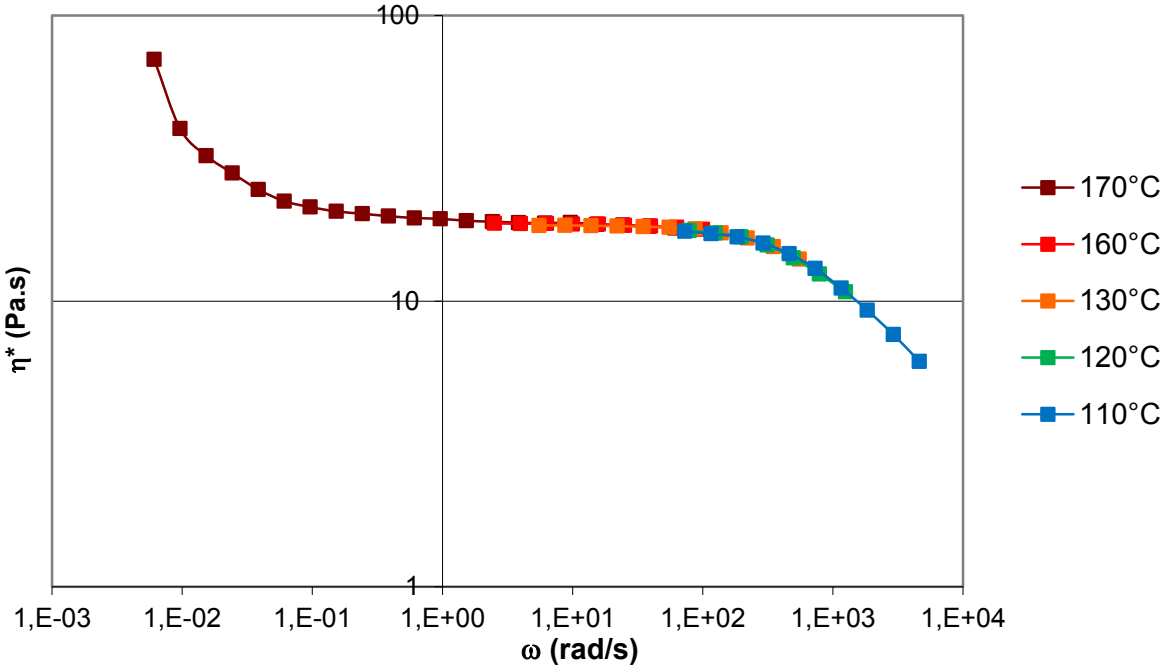


Figure II.8 - Courbe maîtresse de la viscosité complexe $|\eta^*|$ pour la formule A188 à 160°C

La courbe de viscosité complexe révèle l"existence d"un seuil d"écoulement à basse vitesse de déformation, un plateau Newtonien entre 10^{-1} et 100 s^{-1} (viscosité ≈ 20 Pa.s à 160°C) et un comportement pseudo-plastique au-dessus de 100 s^{-1}.

II.2.2.2.2 Formule A190 :

Le même protocole a été utilisé pour caractériser la formule A190. Par contre, nous avons utilisé une déformation d"amplitude $\gamma_0 = 8\%$ lors des balayages en fréquence réalisés entre 100°C et 160°C. De la même manière, nous avons obtenu une énergie d"activation très dépendante de la température et donc nous avons appliqué le principe de superposition temps-température uniquement entre 120°C et 160°C. Nous avons donc calculé une énergie d"activation moyenne $E_a = 72\ kJ/mol$ sur cet intervalle de températures. On remarque que cette énergie d"activation est moins élevée que celle de la formule A188.

Les courbes maîtresses des modules G' et G'' et de la viscosité complexe $|\eta^*|$ à 160°C sont données respectivement par les figures II.9 et II.10. On observe le même plateau sur le module élastique G' à basse fréquence. Ce plateau témoigne d"un seuil d"écoulement à basse vitesse de déformation qu"on observe à la figure II.10. Sur cette même figure, on observe également un plateau Newtonien entre 10^{-1} et 100 s^{-1} (viscosité ≈ 46 Pa.s à 160°C) et un comportement pseudo-plastique au-dessus de 100 s^{-1}. On remarque donc que la viscosité de la formule A190 au plateau Newtonien est plus importante que celle de la formule A188 ce qui est logique puisque la formule A188 contient, en plus par rapport à la formule A190, une huile naphténique qui joue le rôle de plastifiant.

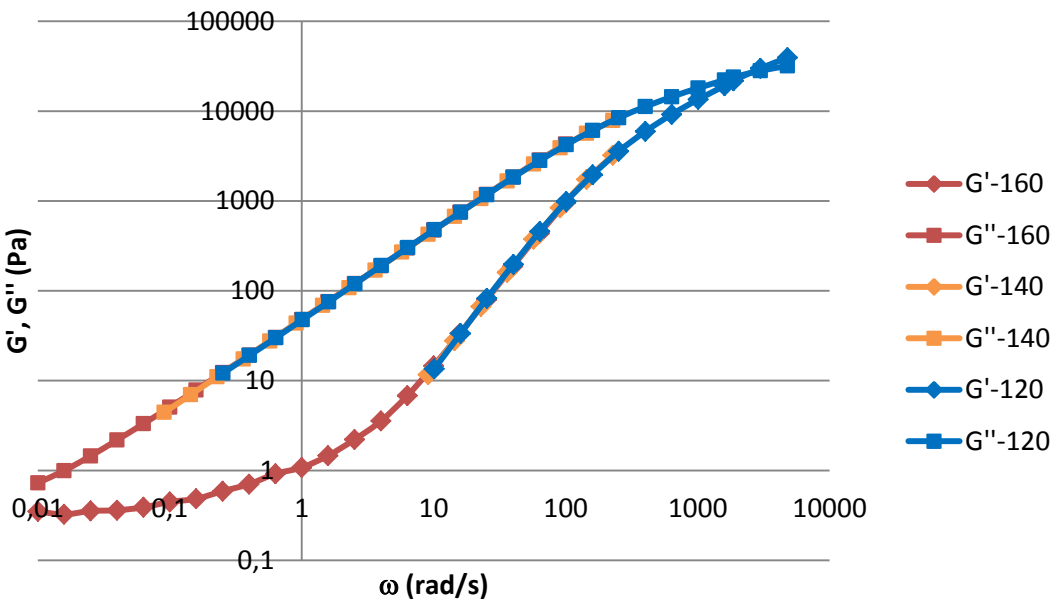


Figure II.9 - Courbes maîtresses de G' et G'' pour la formule A190 à 160°C

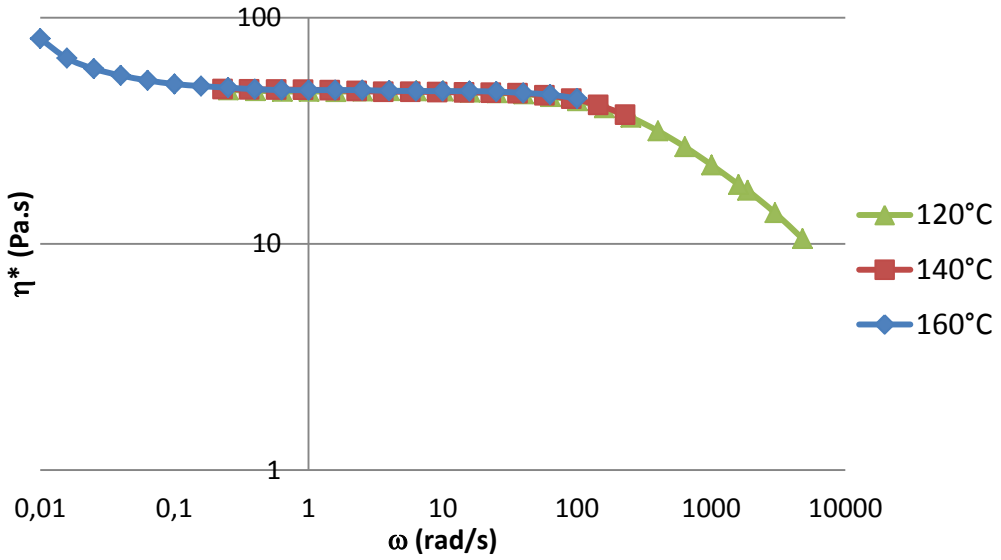


Figure II.10 - Courbe maîtresse de la viscosité complexe $|\eta^*|$ pour la formule A190 à 160°C

II.2.2.3 Explication du plateau à basses fréquences :

Nous avons observé dans le paragraphe précédent, que les deux formules de colle A188 et A190 présentent un plateau en zone terminale (figures II.7 et II.9). Habituellement, le module élastique G" décroît en zone terminale avec une pente de 2 en échelle log-log.

Les articles qu"on a retrouvés dans la littérature sur la rhéologie des colles *hot melt* à base de SIS concernent des études réalisées à des températures qui sont très basses par rapport aux températures de mise en œuvre. Ce type de comportement rhéologique a été observé pour certains copolymères tri-bloc comme le Styrène-[éthylène-(éthylène-propylène)]-Styrène

(SEEPS) et le Styrene-(Ethylene-Butylene)-Styrene (SEBS) (figure II.11). Ces copolymères ressemblent à notre copolymère Styrène-Isoprène-Styrène (SIS). Il s‟agit de copolymères tri-bloc à base de styrène et qui sont utilisés également dans la formulation de colles *hot melt* (voir II.2.1).

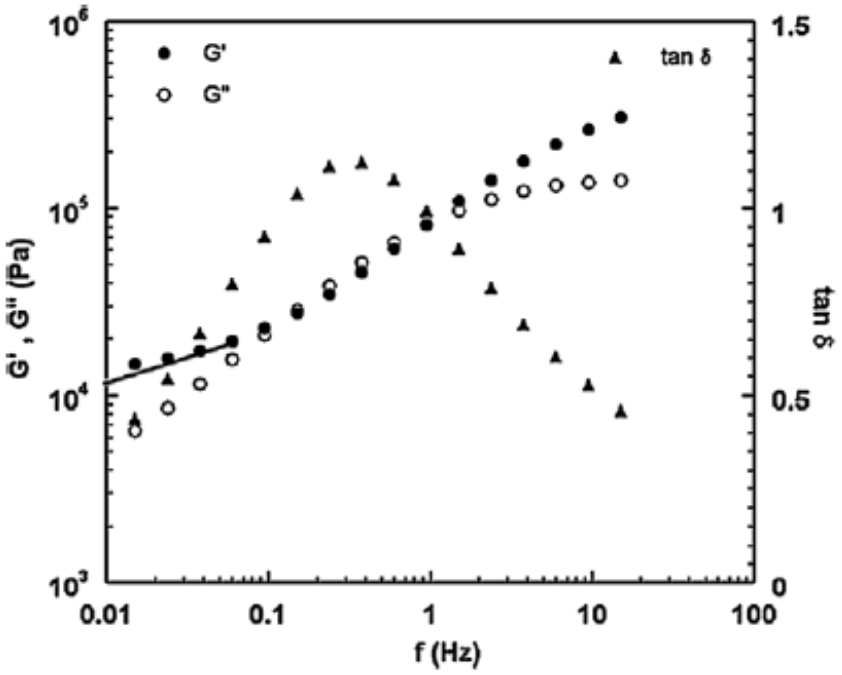


Figure II.11 - Comportement rhéologique du SEBS à 250°C [Wang, 2005]

Il est à remarquer que la courbe de G' observée à la figure II.11 ne présente pas un plateau parfait en zone terminale. De plus, la position de ce plateau par rapport à la courbe G'' est différente de nos résultats de rhéologie dynamique : dans nos résultats, la valeur du plateau de G' reste inférieure à la valeur de G'' en zone terminale.

Wang et al. ont expliqué ce phénomène par l‟occurrence d‟une séparation de phase et l‟existence de réseaux relativement ordonnées avec des blocs rigides de polystyrène qui se comportent comme des points d‟enchevêtrement et forment un réseau qui entrave la mobilité des chaînes (figure II.12) [Wang, 2005].

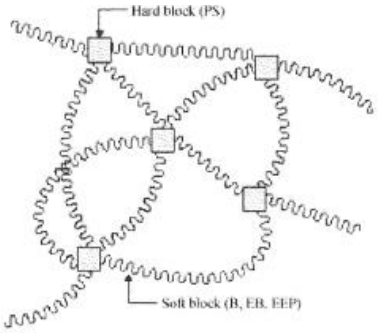


Figure II.12 - Illustration d'un modèle de structure d'enchevêtrements de copolymères à bloc de type ABA [Wang, 2005]

Ces explications peuvent être extrapolées pour décrire le comportement de notre copolymère SIS qui ressemble au SEEPS et au SEBS.

Ainsi, on peut imaginer que le comportement observé (figures II.7 et II.9) est relié au comportement du copolymère SIS qui est le composant le plus important dans les deux formules des colles *hot melt*.

II.2.2.4 Mesure du seuil d'écoulement pour les deux formules de colle :

Dans le paragraphe (II.2.2.2), nous avons mis en évidence un seuil d'écoulement à basse vitesse de déformation pour les formules A188 et A190. L'estimation de la valeur de la contrainte relative à ce seuil peut s'avérer intéressante pour le développement du procédé « Revoluflex ». En effet, comme le film complexe obtenu est stocké dans des bobines, le fluage de la colle en bobine est conditionné par la tension d'enroulement appliquée au film lors du bobinage. En appliquant au film complexe une tension suffisamment élevée pour soumettre le film de colle à une contrainte supérieure à la contrainte seuil, il est possible d'assurer un écoulement de la colle qui puisse « cicatriser » les défauts de couverture de type déchirures. Ce phénomène a été observé expérimentalement et sera présenté au chapitre III.

Afin d'estimer la valeur du seuil de contrainte, on considère les données de rhéométrie dynamique à 160°C et on utilise le principe de Cox-Merz pour tracer la courbe de la viscosité en fonction des contraintes de cisaillement (figure II.13). On observe, pour chacune des deux formules, un début de remontée asymptotique de la viscosité pour les faibles contraintes de cisaillement. Le seuil de contrainte est déterminé en considérant la valeur de contrainte à partir de laquelle la viscosité commence à grimper. En appliquant cette méthode à la formule A188, on obtient une contrainte seuil $\tau_c = 0.5\ Pa$.

Dans le cas de la formule A190, on obtient $\tau_c = 0.8\ Pa$. On remarque que la formule A190 présente un seuil d'écoulement un peu plus élevé que celui de la formule A188, ce qui signifie que la formule A188 devrait s'écouler plus facilement en bobine et posséder de meilleures propriétés d'auto-cicatrisation.

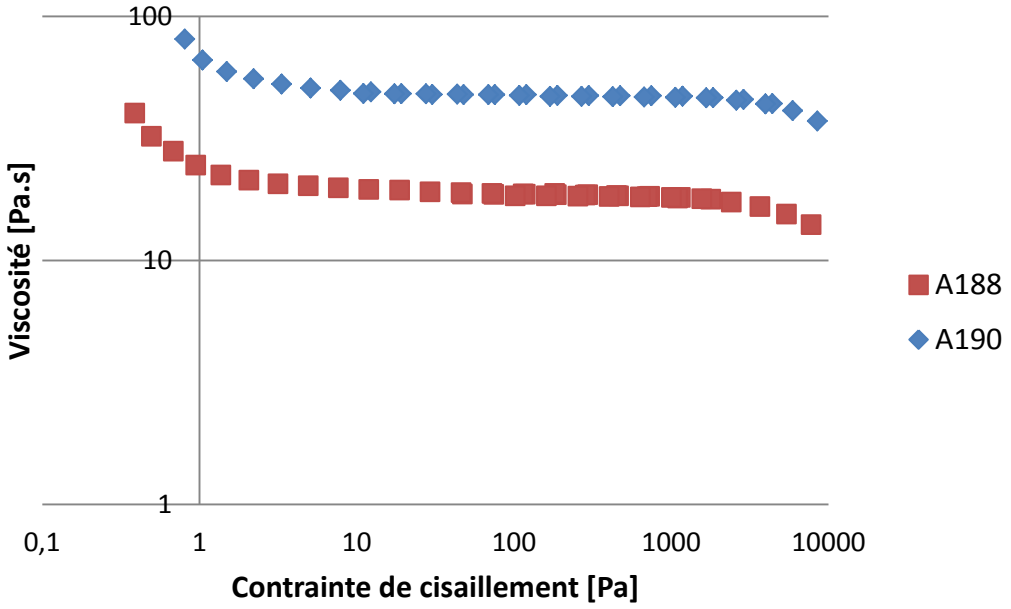


Figure II.13 - Evolution de la viscosité en fonction de la contrainte de cisaillement pour les formules A188 et A190 à 160°C

II.2.2.5 Mesure d'un temps de relaxation caractéristique pour les deux formules de colle :

L"un des objectifs de la caractérisation rhéologique des deux formules de colle hotmelt est la détermination de leurs temps de relaxation caractéristiques. Ce paramètre est nécessaire pour le calcul du nombre de Deborah De rencontré avec les modèles utilisant une loi de comportement viscoélastique de Maxwell. Il est possible d"estimer le temps de relaxation caractéristique à partir des résultats de rhéométrie dynamique de deux façons différentes : la première méthode consiste à prendre l"inverse de la fréquence du point de croisement des courbes de $G'(\omega)$ et $G''(\omega)$ tandis que la deuxième méthode consiste à prendre plutôt l"inverse de la fréquence du point d"intersection entre le plateau newtonien et la zone de comportement rhéofluidifiant sur la courbe de viscosité complexe.

Dans le cas de la formule A188 à 160°C, la méthode du point de croisement de $G'(\omega)$ et $G''(\omega)$ donne un temps de relaxation caractéristique $\lambda = 1.9\ 10^{-4}$ alors que la deuxième méthode donne un temps de relaxation caractéristique $\lambda = 3\ 10^{-3}$

Dans le cas de la formule A190 à 160°C, la méthode du point de croisement de $G'(\omega)$ et $G''(\omega)$ donne un temps de relaxation caractéristique $\lambda = 3.9\ 10^{-4}$ alors que la deuxième méthode donne un temps de relaxation caractéristique $\lambda = 4.1\ 10^{-3}$

Pour chacune des deux méthodes considérées, on remarque que les temps de relaxation obtenus pour les formules A188 et A190 sont du même ordre de grandeur. Cependant, il existe un facteur 10 entre les résultats de la première et la deuxième méthode pour une même formule de colle.

Afin de déterminer la valeur du temps de relaxation caractéristique à une autre température, on utilise les valeurs des facteurs de glissement a_T ou bien de l"énergie d"activation (loi d"Arrhenius) déterminés précédemment.

II.3 Conclusion :

Nous avons présenté le procédé « Revoluflex » avec ses différents paramètres. Ensuite, nous avons présenté les colles thermofusibles utilisées avec le procédé « Revoluflex ». L"analyse du comportement rhéologique par rhéomètrie dynamique de deux formules de ces colles thermofusibles a montré l"existence d"un plateau sur la courbe de G' en basses fréquences. Ce plateau, qui témoigne de l"existence d"un seuil d"écoulement, a été relié au comportement du copolymère à blocs SIS dont les blocs rigides de polystyrène se comportent comme des points d"enchevêtrement et forment un réseau qui entrave la mobilité des chaînes. De plus, les analyses rhéologiques ont permis d"estimer les seuils d"écoulement des deux formules de colle. Enfin, ces analyses ont permis de mesurer la viscosité et le temps de relaxation caractéristique des deux formules de colle qu"on utilisera dans les modèles développés dans les chapitres IV et V tout en étant conscient qu"on est très loin des conditions du procédé. Ces deux paramètres seront d"une grande importance dans la confrontation des résultats expérimentaux avec les résultats numériques.

BIBLIOGRAPHIE

[Agassant, 2014] J.-F. Agassant, P. Avenas, J.-P. Sergent, B. Vergnes, and M. Vincent, *Mise en forme des polymères*. Cachan: Lavoisier, 4 ed., 2014.

[Carrot, 1999] C. Carrot, J. Guillet, "Viscoélasticité linéaire des polymères fondus," *Techniques de l'ingénieur*, France, AM 3–620, 1999.

[Cognard, 2004] P. Cognard, "Colles et adhésifs pour emballages - Généralités," *Techniques de l'ingénieur*, France, AG 6–750, 2004.

[Benedek, 2004] I. Benedek, *Pressure-Sensitive Adhesives and Applications*. New York: Marcel Dekker, 2004.

[Benedek, 2006] I. Benedek, *Pressure-Sensitive Design, Theoretical Aspects (Vol. 1)*. Leiden: VSP, 2006.

[Benedek, 2009] I. Benedek, M.M. Feldstein, *Technology of Pressure-Sensitive Adhesives and Products (Handbook of Pressure-Sensitive Adhesives and Products)*. Boca Raton: CRC - Taylor & Francis, 2009.

[Satas, 1989] D. Satas, *Handbook of Pressure Sensitive Adhesive Technology*, New York : Van Nostrand Reinhlod, 1989.

[Uhalte, 2011] S. Uhalte, J.-F. Agassant, Y. Demay, "Caractérisation rhéologique des colles," rapport interne Bostik, juillet 2011.

[Wang, 2005] W. Wang, Q. Zheng, Q. Yu, "Study on the viscoelastic behaviour of SEEPS block copolymer based on a modified BSW model," *Chinese Science Bulletin*, vol. 50, pp. 2171–2175, 2005.

Chapitre III : Analyse des défauts du procédé « Revoluflex »

Les essais réalisés sur la ligne pilote du procédé « Revoluflex » révèlent l"existence d"une très grande variabilité de défauts. Ces défauts sont très influencés par les paramètres du procédé et chacun d"entre eux est soit atténué soit exacerbé en modifiant les paramètres du procédé. Ils représentent essentiellement des anomalies dans la couche de colle : on trouve généralement des surépaisseurs ou bien des déchirures totales ou partielles dans cette couche de colle. Nous nous sommes intéressés uniquement à deux types de défauts : un premier défaut caractérisé par des surépaisseurs périodiques dans la couche de colle sous forme de chevrons qu"on appellera défaut en « veines de chêne » et un deuxième défaut caractérisé par des déchirures partielles dans la couche de colle qu"on appellera défaut de couverture. Les défauts en « veines de chêne » ont des périodes spatiales qui varient de 3 à 20 cm et les défauts de couverture ont des dimensions variables allant de $10\ \mu m$ jusqu"à $1\ mm$. Afin de déterminer l"origine de ces défauts, il est important de les caractériser et aussi de les quantifier en fonction des différents paramètres du procédé. Pour ce faire, on utilise des méthodes d"observation adaptées à chaque défaut.

III.1 Les moyens et protocoles de caractérisation des défauts :

L"observation des défauts du procédé « Revoluflex » se fait sur trois échelles différentes: visuellement, au microscope binoculaire et au microscope électronique à balayage (MEB). Bien que l"observation visuelle donne toujours une première évaluation de la qualité du film complexe obtenu, les deux dernières techniques permettent de mieux observer l"aspect du défaut dans le but de comprendre le mécanisme de sa formation.

III.1.1 L'observation au microscope binoculaire :

Il est difficile d"observer avec cette technique une coupe de l"épaisseur du film (épaisseur environ 45µm). On observera donc l"échantillon en vue de dessus ou selon des coupes en « marche d"escalier » (voir plus loin).

La préparation de l"échantillon à observer consiste à découper un morceau du complexe et de l"étaler sur une lamelle en verre en le fixant avec du ruban adhésif sur les côtés. Ensuite, la lamelle est posée dans le microscope binoculaire et les défauts sont observés sur toute sa surface en choisissant le grandissement approprié.

Une deuxième méthode de découpe permettant d"avoir des coupes en « marches d"escalier » a été retenue pour des observations en perspective au microscope binoculaire. Elle consiste à amorcer une découpe dans le film complexe et à le déchirer dans un bain d"azote liquide. Cette méthode est très précieuse puisqu"elle donne une vue globale du défaut à la fois à la surface et dans l"épaisseur du film complexe (figure III.1).

III.1.2 L'observation au microscope électronique à balayage :

Grâce à son grand pouvoir de grandissement, l'avantage du MEB est de pouvoir observer les défauts du procédé dans la section du film complexe. Ces observations peuvent ainsi révéler par exemple si les défauts de type déchirure représentent des déchirures totales ou partielles. Dans le cas d'une déchirure partielle, ils permettent de savoir si le défaut est localisé du côté du film primaire ou bien du côté du film secondaire.

En revanche, l'inconvénient de cette technique est qu'elle ne peut pas donner une vue globale des défauts dont les dimensions sont supérieures à 15 µm.

Plusieurs protocoles de préparation d'échantillons ont été testés. La méthode retenue consiste à découper l'échantillon à l'aide de lames de rasoir. La section du film complexe observée n'est pas polluée et la découpe est toujours réalisée dans le même plan pour les trois films (perpendiculaire au plan du film).

Une fois l'échantillon découpé, il est placé soigneusement dans un porte échantillon de façon à ce que la section découpée puisse être observée avec le MEB.

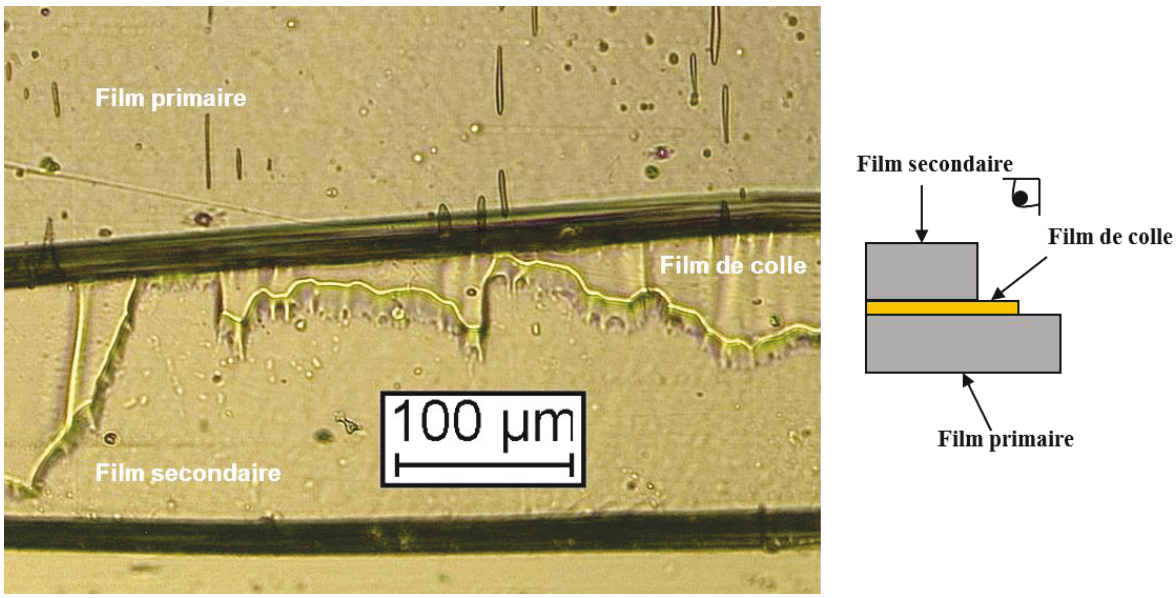


Figure III.1 - Découpe en « marches d'escalier » et observation au microscope binoculaire

III.2 Défaut en « veines de chêne »

III.2.1 Caractérisation et analyse du défaut en « veines de chêne » :

En observant la surface d'un film complexe impacté par le défaut en « veines de chêne », on remarque la présence de motifs périodiques sous forme de la lettre « V » (figure III.2). Ces motifs correspondent à des surépaisseurs dans l'épaisseur du film de colle. Ces surépaisseurs sont mises en évidence en observant au MEB l'épaisseur du film complexe (figure III.3). Donc, ce défaut s'apparente à une instabilité d'étirage très connue sous le nom de « *Draw Resonance* ». Cette instabilité est rencontrée avec tous les procédés élongationnels à surface libre (filage textile, *Cast film* ou soufflage de gaine) au cours de l'étirage du polymère dans l'air ([Agassant, 2014], [Demay, 2014]). Dans le cas du procédé de filage textile, elle

correspond à des variations périodiques du diamètre du filament qui apparaissent à partir d"un taux d"étirage critique ([Chang, 1979], [Ghiljels, 1980], [Gupta, 1981], [Demay, 1985]).

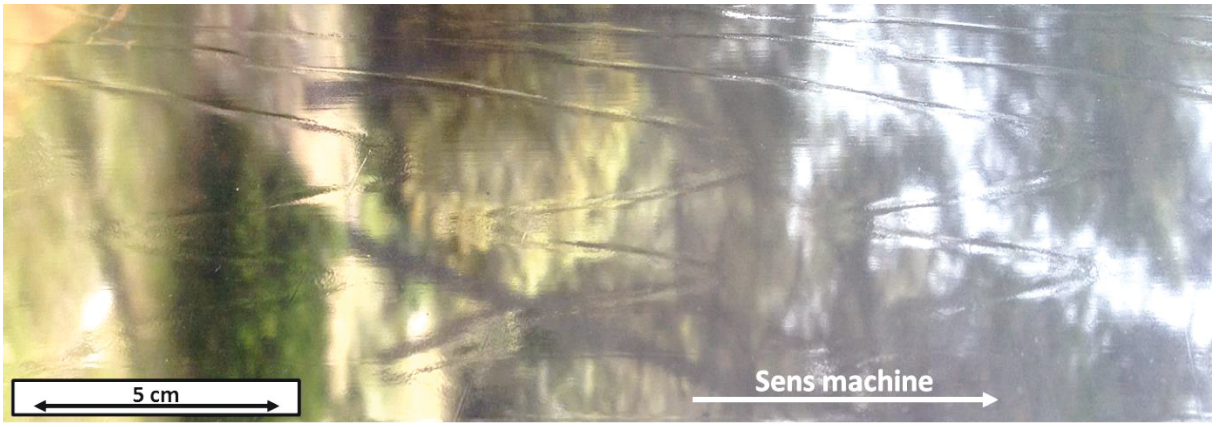


Figure III.2 - Aspect des veines de chêne sur la surface du complexe

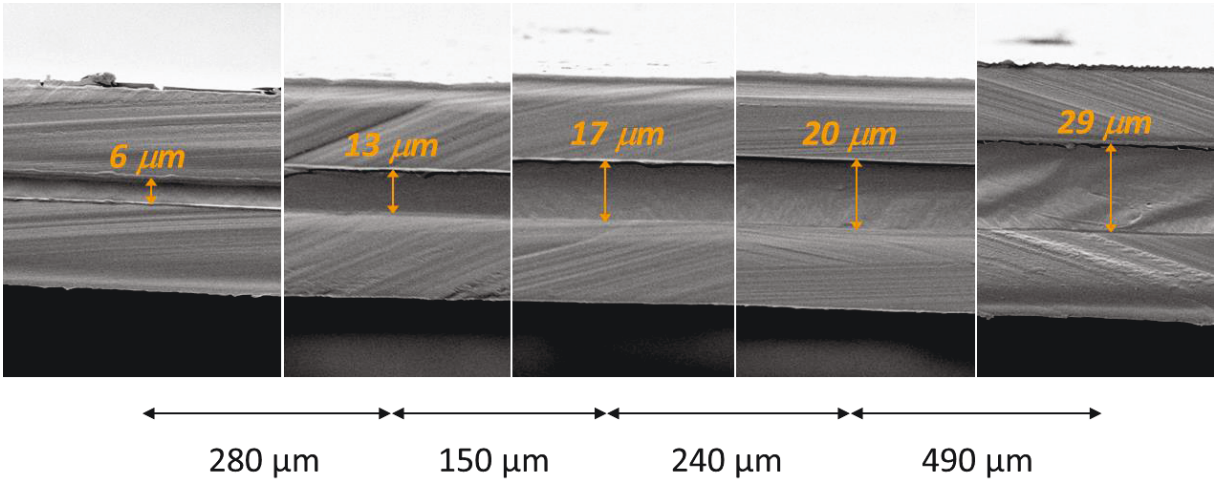


Figure III.3 - Mise en évidence de la présence de surépaisseurs dans le film de colle

Dans le cas du procédé d"extrusion de film à plat (*Cast film*), elle correspond à des variations périodiques dans la largeur et l"épaisseur du film extrudé et elle apparaît également à partir d"un taux d"étirage critique [Barq, 1990]. Même si l"étude de l"instabilité de « *Draw Resonance* » a été plus focalisée sur le procédé de filage textile, on trouve dans la littérature des études expérimentales qui concerne le procédé de *Cast film*. Barq et *al.* ont mesuré l"évolution de l"épaisseur et la largeur d"un film en PET sur de très longues distances et ils ont montré que la période des variations est la même dans l"épaisseur et la largeur du film (figure III.4) [Barq, 1990]. Shin et al. ont enregistré l"épaisseur dans la partie centrale de films en PEHD et PEBD en fonction du temps [Shin, 2007]. Agassant et al. ont pu détecter l"apparition de cette instabilité dans le procédé de *Cast film* en enregistrant en continu la force d"étirage en fonction du temps [Agassant, 2006].

Contrairement au procédé d"extrusion de film à plat où on observe plutôt des surépaisseurs en forme de bandes transversales, dans le procédé Revoluflex on obtient une série de chevrons périodiques dans la largeur du film (figure III.5). Les périodes spatiales et les angles (qui sont

arrondis) des chevrons sont très variables et ils sont compris respectivement entre 3 et 20 cm et entre 7° et 45°.

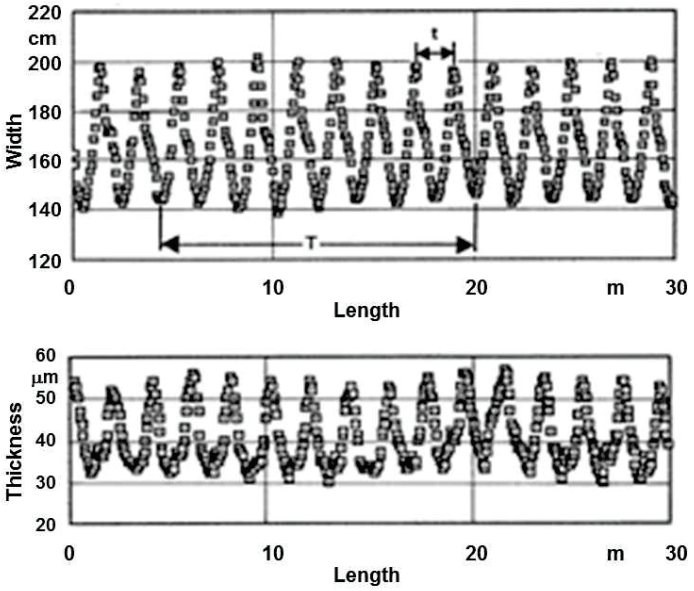


Figure III.4 - Mesures expérimentales de l'instabilité d'épaisseur et de largeur en étirage de film polyester

Enfin, ce défaut est très influencé par les paramètres du procédé et ne dépend pas uniquement du taux d"étirage. Il s"agit donc d"une forme absolument nouvelle de « *Draw Resonance* » qui n"a jamais été observée auparavant, ce qui n"est pas étonnant puisque le procédé de *Cast film* n"a pas été étudié dans ces conditions particulières.

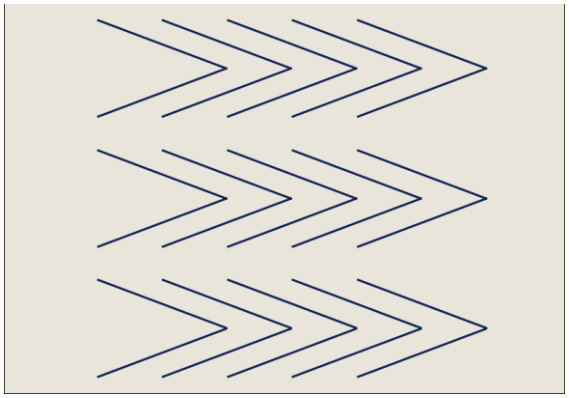


Figure III.5 - Aspect des défauts en chevrons sur la largeur du film complexe

Afin de comprendre les origines du défaut en « veines de chêne », il est nécessaire d"étudier l"influence des paramètres du procédé sur ce défaut.

III.2.2 Etude de l'influence des paramètres du procédé sur le défaut en « veines de chêne » :

Cette étude a été menée uniquement sur la formule de colle A190. Nous avons considéré deux entrefers (0.7 mm et 0.3 mm), deux températures de colle (150°C et 170°C), plusieurs grammages (de 1.5 à 20 g/m²), plusieurs vitesses de ligne (de 30 à 400 m/min), deux distances d"étirage (0.6 et 1.8 mm), trois dénivelés de la filière par rapport à la position d"étirage et plusieurs valeurs de pression pour la pompe à vide (de 0 à 70 mbar). Comme le dénivelé est

un paramètre dont la mesure n"est pas précise, nous avons considéré un dénivelé de référence noté position « 0 » (par la suite « Pos. 0 »). Une photo prise en vue de côté pour une distance d"étirage de 1.8 mm et un entrefer de 0.7 mm permet d"avoir une idée sur cette position (figure III.6). En remontant la filière verticalement de 0.7 mm par rapport à la position de référence, on obtient une deuxième position notée « + ». De la même manière, en baissant la filière verticalement de 0.7 mm par rapport à la position de référence, on obtient une troisième position notée « - » (figure III.6).

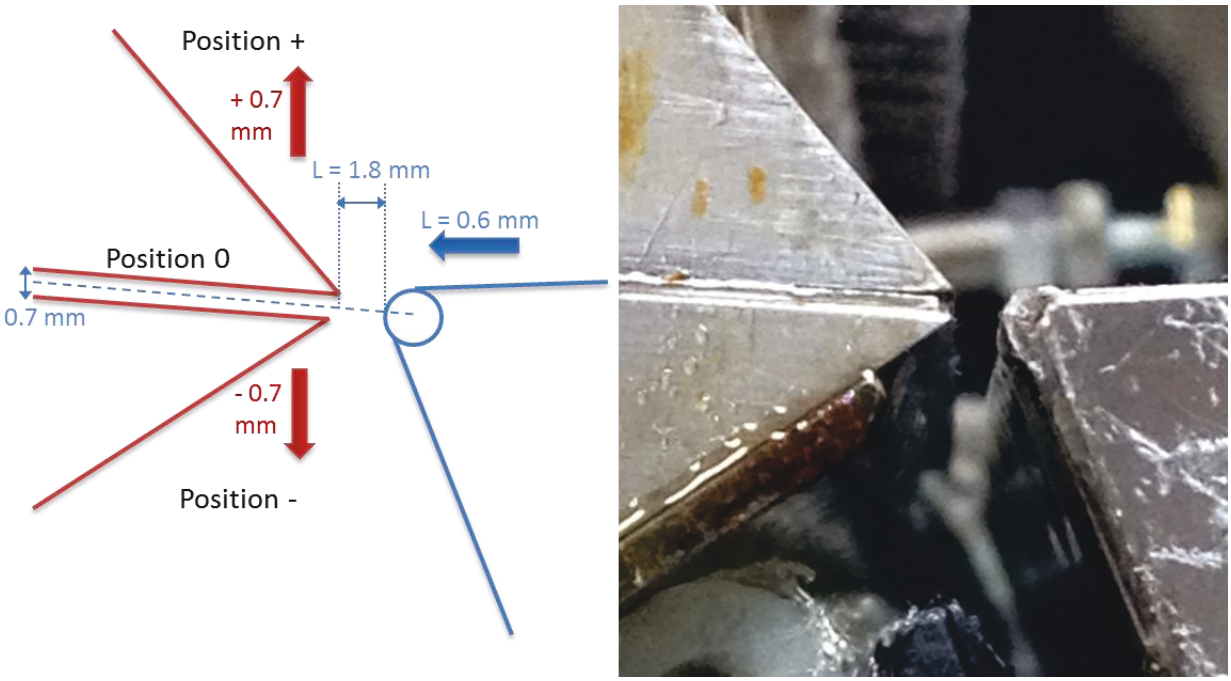


Figure III.6 - Hauteur de référence et géométries considérées

III.2.2.1 Le protocole expérimental :

L"objectif est de discriminer des domaines stables et des domaines instables selon les paramètres du procédé. Vu le grand nombre de paramètres du procédé, il n"est pas raisonnable d"effectuer une étude expérimentale qui fait varier tous les paramètres du procédé. Afin de réduire le nombre d"essais, un plan d"expériences qui consiste à comparer les différents essais à une situation de référence en modifiant en général un seul paramètre, a été considéré. Cette situation de référence est définie à partir des paramètres dont le réglage est difficile et/ou prend beaucoup de temps, à savoir l"entrefer $2h_0$, la température T, la distance d"étirage L et le dénivelé de la filière par rapport à la position d"étirage d. Les autres paramètres, étant facilement réglables, sont modifiés au cours des essais réalisées au sein d"une même situation. On a défini une première situation de référence correspondant à : $2h_0 = 0{,}7\ mm$; $Pos.\ 0$; $T = 150°C\ et\ L = 0{,}6mm$ (figure III.7). Autour de cette situation de référence, on a fait varier un ou deux paramètres simultanément engendrant ainsi une série de situations qui différent les unes des autres par les paramètres géométriques et la température (figure III.7). Chaque situation est constituée par les essais dont la température et les paramètres géométriques sont les mêmes. Une flèche reliant deux situations données

signifie qu"un seul paramètre a été modifié entre ces deux situations et qu"il est ainsi possible d"étudier l"influence du paramètre en question sur le défaut en « veines de chêne ».

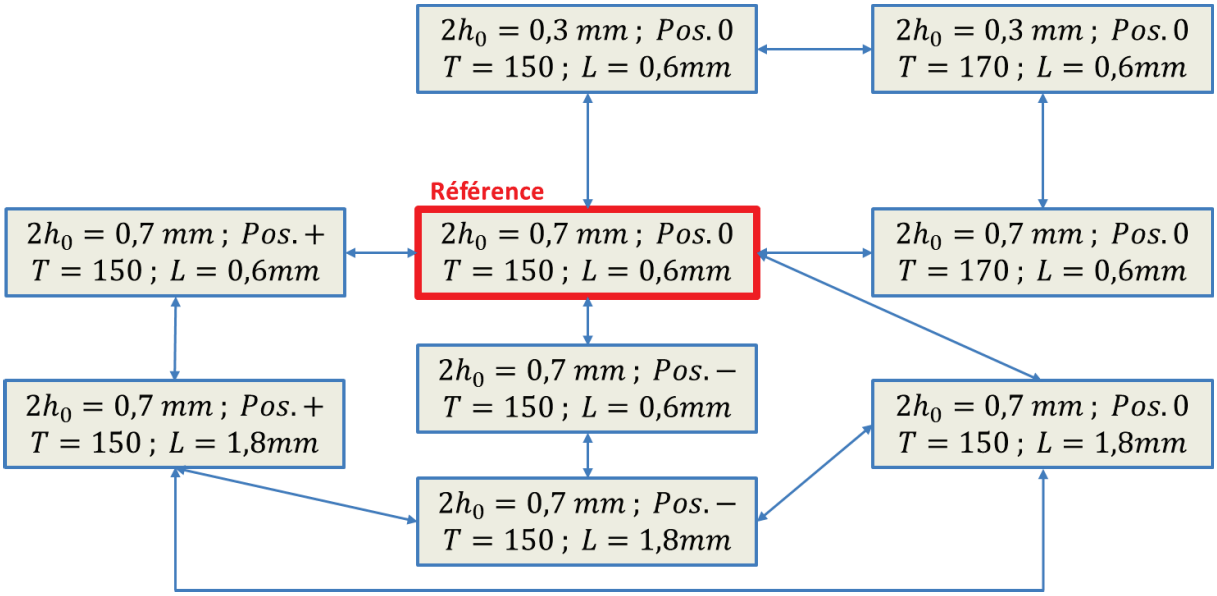


Figure III.7 - Diagramme expliquant le plan d'expériences considéré

Pour chacun de ces cas, une série d"essais à différents grammages, vitesses et différentiels de pression a été réalisée afin de discriminer les zones d"apparition et de disparition du défaut. Chaque essai consiste à produire quelques mètres de film complexe et un échantillon est systématiquement récupéré à la fin de chaque essai pour examiner l"aspect du film et vérifier la présence du défaut en « veines de chêne ». Si le défaut est présent, sa période spatiale et son angle géométrique sont mesurés (figure III.8). Il est à noter que la mesure de la période spatiale reste précise mais celle de l"angle géométrique est beaucoup moins précise puisque le sommet du défaut est parfois arrondi.

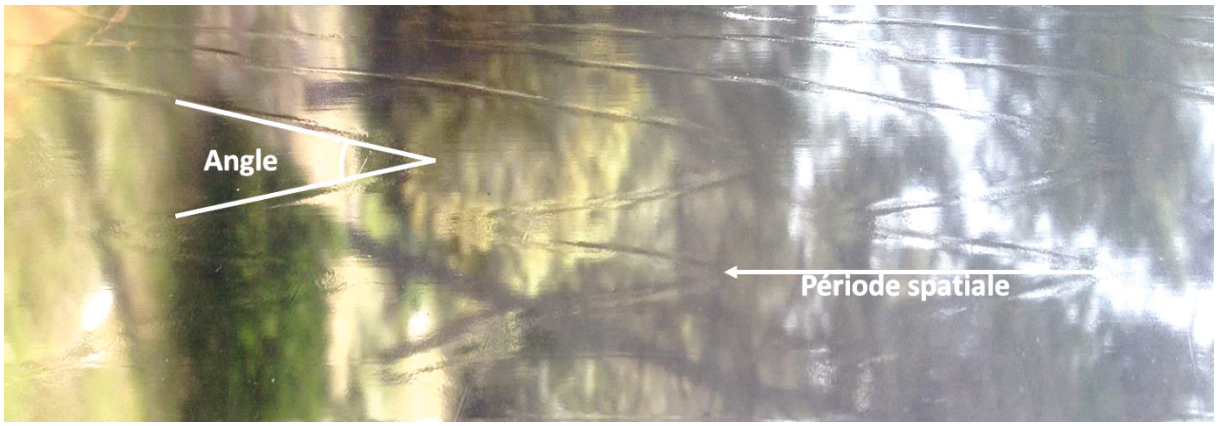


Figure III.8 - Période spatiale et angle géométrique du défaut en "veines de chêne"

III.2.2.2 Résultats des essais : Influence des paramètres du procédé

Les résultats des essais sont analysés et présentés dans les paragraphes qui suivent : chaque paragraphe montre l"influence d"un paramètre du procédé en comparant des cas où seulement ce paramètre est modifié. L"annexe II comporte des tableaux qui résument les essais qui

concernent chacun des paragraphes suivants (tableaux A-II.1 – A-II.8). 0 et 1 signifient respectivement absence et présence du défaut.

III.2.2.2.1 Reproductibilité des essais

La reproductibilité de certains des essais a été étudiée. Il s"agit de 24 essais réalisés avec les différentes géométries et sous plusieurs conditions mais à dépression nulle. En effet, comme il est très difficile d"avoir exactement la même dépression entre deux essais différents, seulement la reproductibilité des essais sans dépression a été considérée. Parmi les 24 essais reproduits, uniquement deux essais ont donné une mauvaise reproductibilité ce qui garantit la validité des résultats qu"on présente ci-après.

III.2.2.2.2 Influence de la dépression Δp

L"influence de la dépression sur le défaut en « veines de chêne » a été étudiée sous différentes conditions. Comme son effet est le même dans toutes les situations testées, on se limite dans ce paragraphe à montrer l"influence du différentiel de pression pour le cas de référence ($2h_0 = 0{,}7\ mm\ ;\ Pos.\ 0\ ;\ T = 150\ °C\ et\ L = 0{,}6mm$).

Deux grammages (3 et 5 g/m²) ont été considérés tout en gardant le débit constant ($Q = 6.7$ g/s). Comme l"entrefer est fixe pour le cas de référence, en imposant le grammage la vitesse d"étirage est déduite directement à partir de l"équation (II.2). Donc, pour chacun des grammages considérés, le seul paramètre qui varie est le différentiel de pression.

Un effet stabilisant du différentiel de pression a été observé dans tous les cas étudiés. D"après la figure III.9, on observe qu"à deux grammages différents le défaut disparaît à partir d"une dépression critique.

Il est aussi à noter qu"une forte dépression provoque la casse du film de colle.

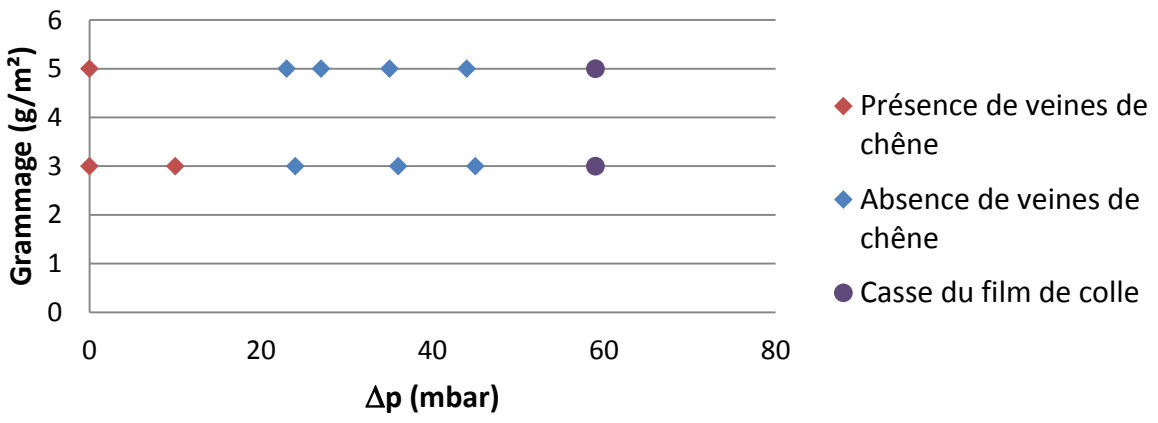


Figure III.9 - Influence de la dépression et du grammage sur la stabilité du procédé pour un débit Q=6.7 g/s dans le cas de référence

III.2.2.2.3 Influence du débit de colle :

On considère le cas suivant : $2h_0 = 0{,}7\ mm\ ;\ Pos.\ 0\ ;\ T = 170\ °C\ et\ L = 0{,}6mm$ et on teste différents grammages, vitesses d"étirage et valeurs de dépression.

On observe sur la figure III.10 qu'à entrefer et température fixes (0.7 mm et 170°C respectivement) et sans dépression, le défaut en « veines de chêne » est obtenu à partir d"un débit de colle critique. Dès que l"on applique une dépression significative, le défaut en « veines de chêne » disparaît quel que soit le débit.

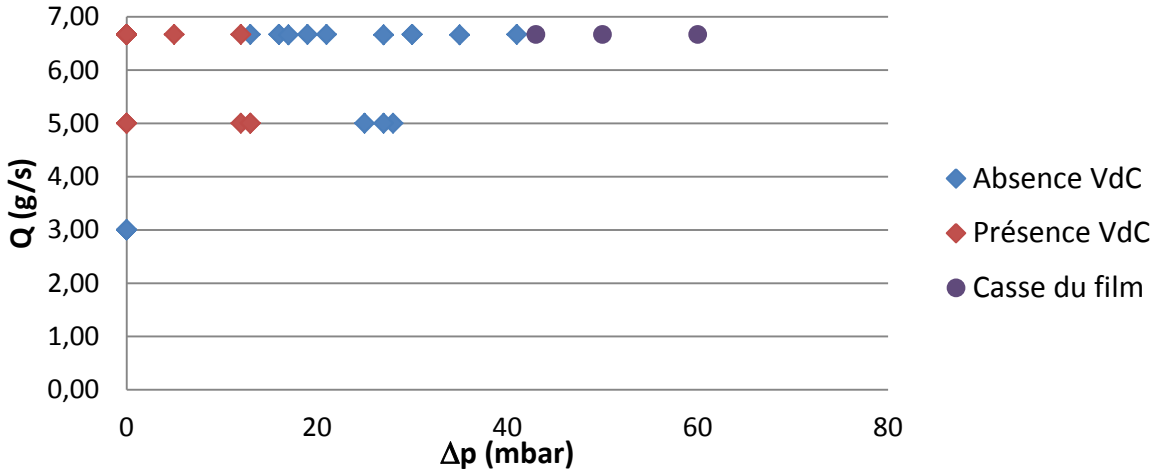


Figure III.10 - Influence du débit de colle et de la dépression sur le défaut en « veines de chêne » dans le cas $2h_0 = 0,7\ mm$; $Pos.\ 0$; $T = 170°C\ et\ L = 0,6mm$

L"influence du débit sur le défaut est confirmée par la figure III.11 où on observe que, pour une dépression nulle, l"apparition des veines de chêne est directement reliée au débit. Comme l"entrefer est constant pour cette série d"essais et d"après l"équation (II.2), un débit constant représente une vitesse moyenne d"extrusion $\overline{U_0}$ constante. Donc, la diminution du taux d"étirage revient à réduire la vitesse d"étirage ce qui se traduit aussi par une épaisseur finale plus élevée. Ainsi, en considérant un débit pour lequel le procédé est instable, on observe que la réduction du taux d"étirage (rapport de la vitesse de la ligne ou vitesse d"étirage sur la vitesse moyenne d"extrusion) ne permet pas de stabiliser le procédé, ce qui est contradictoire avec la littérature qui montre qu"on stabilise le procédé en réduisant le taux d"étirage en dessous d"une valeur critique ([Chang, 1979], [Demay, 1985], [Barq, 1990]).

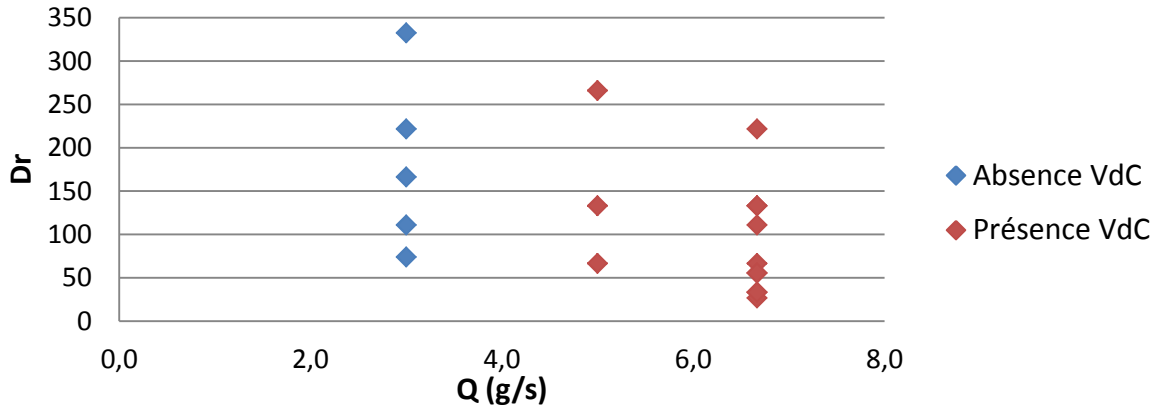


Figure III.11 - Influence du débit de colle et du taux d'étirage sur le défaut en « veines de chêne » pour Δp=0 dans le cas $2h_0 = 0,7\ mm$; $Pos.\ 0$; $T = 170°C\ et\ L = 0,6mm$

On verra dans la suite que cette influence du débit de colle sur le défaut n"est pas aussi marquée dans tous les cas étudiés.

III.2.2.2.4 Influence de la température de colle :

Deux températures de mise en œuvre ont été testées : 150°C et 170°C. On se met dans les conditions du cas de référence et on compare ces deux températures.

La figure III.12 montre l"influence du débit de colle et du taux d"étirage pour un entrefer de 0.7 mm, le dénivelé de référence, une distance d"étirage de 0.6 mm et une dépression nulle. Cette figure confirme les constats du paragraphe précédent sur le débit de colle critique et la faible influence du taux détirage. En comparant la figure III.12 à la figure III.11, on observe que la température n"a pas d"influence marquée sur le défaut en « veines de chêne ».

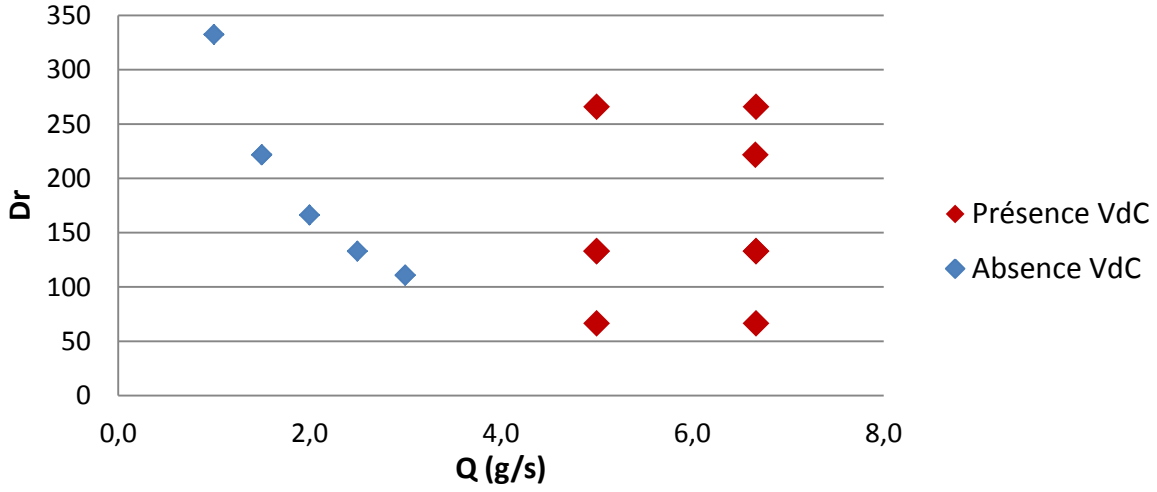


Figure III.12 - Influence du débit de colle et du taux d'étirage sur le défaut en « veines de chêne » pour Δp=0 dans le cas $2h_0 = 0,7\ mm$; $Pos.\ 0$; $T = 150°C\ et\ L = 0,6mm$

Dans les conditions de référence et pour une vitesse de 333 m/min et un grammage de 3 g/m², ce qui correspond à un débit de 6.7 g/s, on étudie l"évolution du défaut en fonction du différentiel de pression pour deux températures différentes (figure III.13).

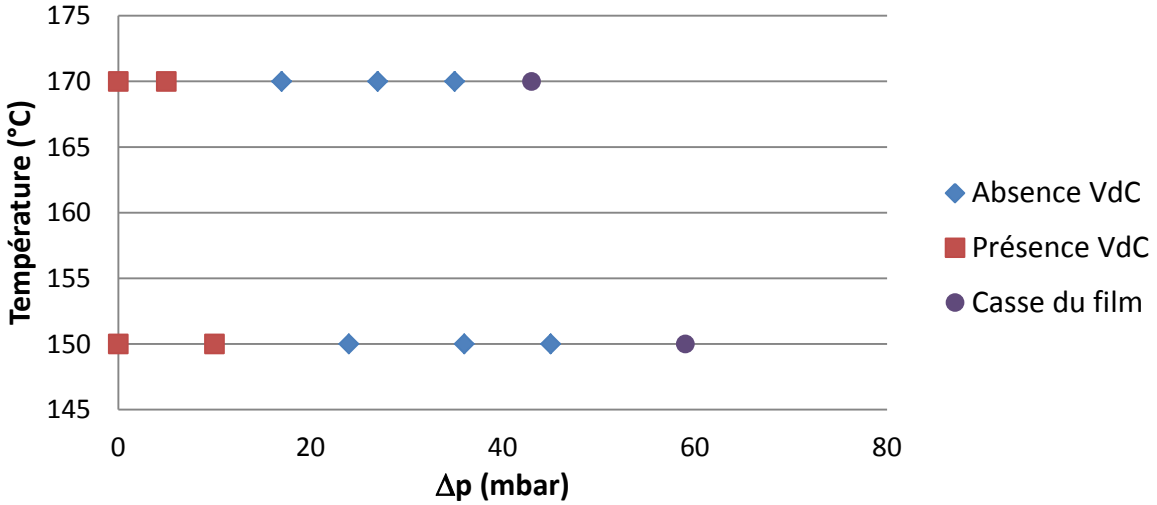


Figure III.13 - Influence de la température et du différentiel de pression pour $2h_0 = 0,7\ mm$; $Pos.\ 0$; $L = 0,6mm$; $U_L = 333\ m/min$; $grammage = 3g/m^2 et\ Q = 6.7g/s$

On observe que la dépression critique a le même ordre de grandeur pour les deux températures ce qui confirme que la température n"a pas une influence marquée sur le défaut.

Par contre, on remarque que le phénomène de casse du film de colle intervient à des pressions moins élevées à 170°C ce qui est très logique puisque la viscosité de la colle diminue en augmentant la température.

III.2.2.2.5 Influence de l'entrefer de la filière :

Deux entrefers ont été testés : 0.3 et 0.7mm. On considère une distance d"étirage de 0,6mm et le dénivelé de référence.

Similairement à la figure III.11, la figure III.14 montre l"influence du débit de colle et du taux d"étirage sur le défaut en « veines de chêne » dans les conditions de référence à l"exception de l"entrefer $2h_0 = 0.3\,mm$. Sur cette figure, on note que le débit de colle a une grande influence sur le défaut en « veines de chêne » mais il n"est pas aussi discriminant que dans le cas précédent (figure III.11). On peut remarquer également que le débit de colle critique pour l"apparition du défaut en « veines de chêne » est plus faible dans le cas d"un entrefer de 0.3mm. On observe par ailleurs le résultat paradoxal suivant : à 170°C et des débits de 2 et 3 g/s, on fait disparaître le défaut en « veines de chêne » en augmentant le taux d"étirage. Ainsi, on montre que, pour ce jeu de paramètres, l"instabilité de « Draw Resonance » disparaît à partir d"un taux d"étirage critique, contrairement aux résultats classiques ([Barq, 1990], [Chang, 1979], [Demay, 1985]). Dans ce cas, non seulement on n"a pas d"effet stabilisant mais on déstabilise le procédé en réduisant le taux d"étirage.

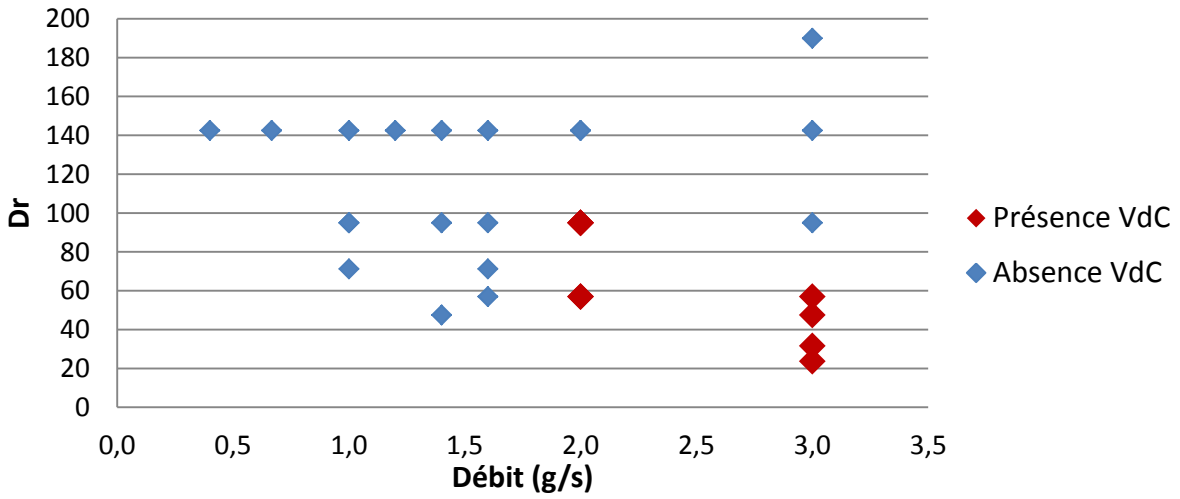


Figure III.14 - Influence du débit de colle et du taux d'étirage sur le défaut en « veines de chêne » pour Δp=0 dans le cas $2h_0 = 0,3\ mm$; $Pos.\ 0$; $T = 170°C\ et\ L = 0,6mm$

La figure III.15 montre qu"en abaissant la température, on déstabilise le procédé aux taux d"étirage les plus faibles ce qui n"était pas le cas pour un entrefer de 0,7mm. Quel que soit le débit de colle, on observe toujours le défaut à faible taux d"étirage. Aux débits élevés on ne réussit pas à éliminer le défaut en augmentant le taux d"étirage contrairement à ce que l"on observait à 170°C.

Notons qu"il existe quelques points très curieux sur la figure III.15 comme le point obtenu à $Dr = 71\ et\ Q = 2.7$ g/s. Il est donc possible qu"il soit un point non reproductible.

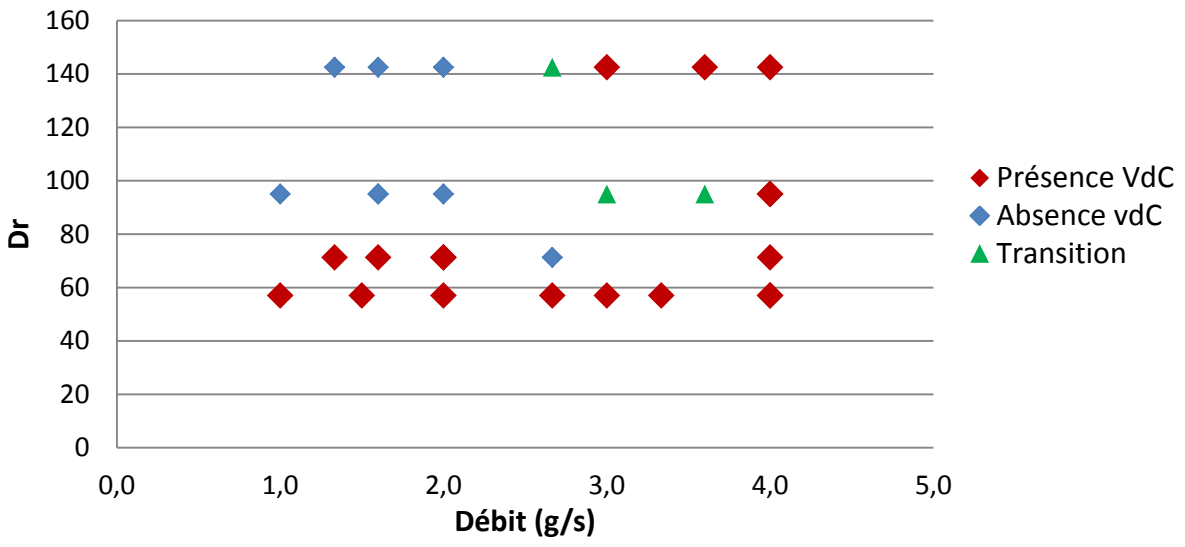


Figure III.15 - Influence du débit de colle et du taux d'étirage sur le défaut en « veines de chêne » pour Δp=0 dans le cas $2h_0 = 0,3\ mm$; $Pos.\ 0$; $T = 150°C\ et\ L = 0,6mm$

Comme l'entrefer est le même pour tous les essais de la figure III.15, chaque grammage de colle est équivalent à un taux d'étirage donné puisque ces deux paramètres sont reliés par l'équation (II.4). Donc, on ne peut pas affirmer si les défauts qui apparaissent pour des débits compris entre 1 et 2 g/s sont provoqués par un faible taux d'étirage ou bien un grammage élevé.

III.2.2.2.6 Influence du dénivelé de la filière :

Trois dénivelés de la filière ont été testés : la position de référence « 0 », la position basse « - » et la position haute « + » (voir paragraphe III.2.2). On considère un entrefer de 0.7 mm, une température de colle de 150°C, une distance d'étirage de 0.6 mm et une dépression nulle.

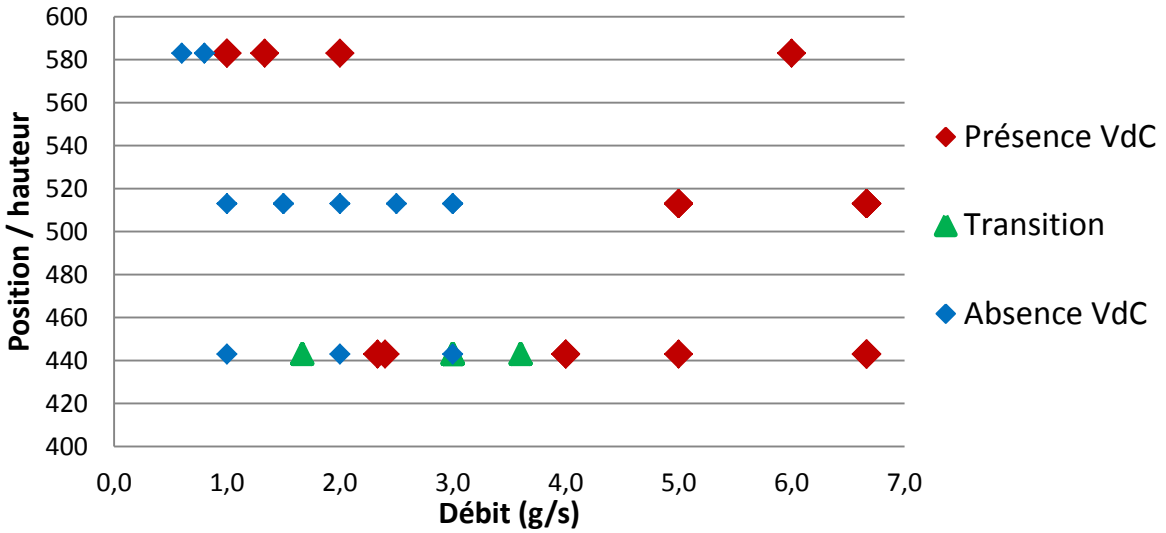


Figure III.16- Influence de la hauteur de la filière sur le défaut en « veines de chêne » pour $\Delta p = 0$; $2h_0 = 0,7\ mm$; $T = 150°C\ et\ L = 0,6mm$

La figure III.16 compare l"occurrence du défaut en fonction du débit de colle pour les trois dénivelés testés. On peut remarquer que la position de référence « 0 » est la position la plus stable puisqu"elle permet d"atteindre des débits relativement élevés sans provoquer le défaut en « veines de chêne ». La position la plus basse « - » présente quelques incertitudes mais reste meilleure que la position la plus haute « + ». Pour la position « - », le débit de colle devient un critère moins discriminant comme c"était le cas avec l"entrefer de 0.3mm. En effet, on observe toute une zone de transition dans laquelle l"occurrence du défaut dépend d"autres paramètres comme par exemple le taux d"étirage.

Il est important de noter qu"à la position « + » nous avons obtenu d"autres instabilités (la largeur de l"enduction varie en fonction du temps). De plus, les défauts en « veines de chêne » obtenus dans un même échantillon présentent des périodes spatiales différentes selon leur position dans la largeur du film.

III.2.2.2.7 Influence de la distance d'étirage :

On considère un entrefer $2h_0 = 0.7\,mm$, une température de colle $T = 150\,°C$ et un différentiel de pression $\Delta p = 0\,mbar$. Pour chacun des trois dénivelés, on compare deux distances d"étirage : 0.6 mm et 1.8mm.

La figure III.17 compare l"occurrence du défaut en fonction du débit de colle pour les trois dénivelés testés en considérant une distance d"étirage de 1.8mm.

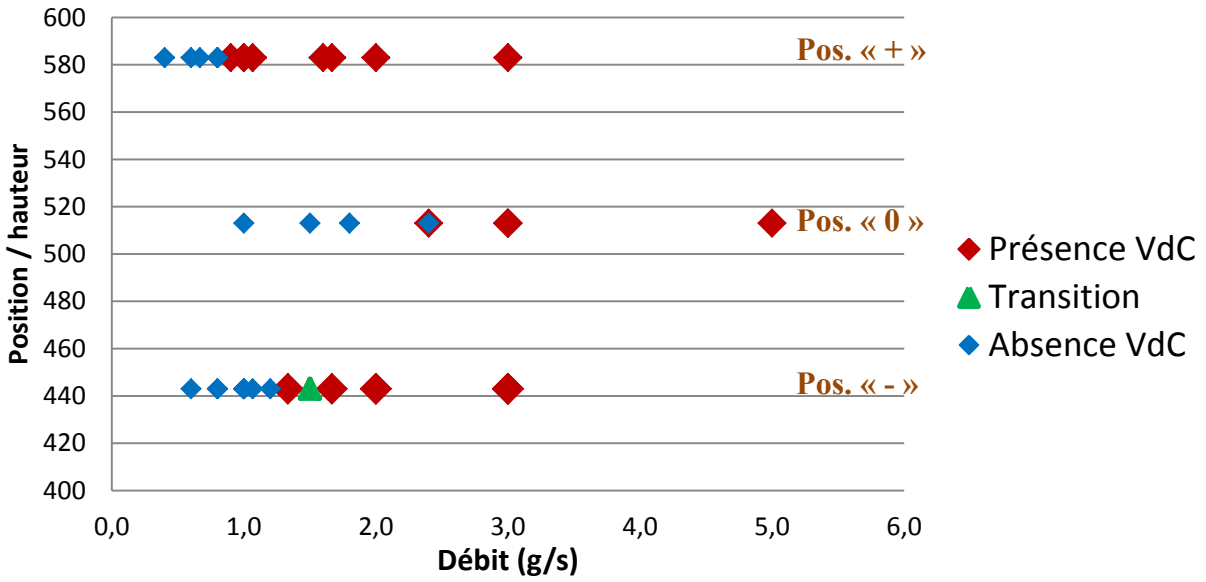


Figure III.17 - Influence de la hauteur de la buse sur le défaut en « veines de chêne » pour $\Delta p = 0$; $2h_0 = 0,7\,mm$; $T = 150°C$ et $L = 1,8mm$

On peut voir facilement que la position médiane « 0 » reste la position la plus stable même en augmentant la distance d"étirage. En comparant les figures III.16 et III.17, on peut noter que dans le cas de la position de référence « 0 », le débit de colle critique passe de 4 à 2.4 g/s environ en augmentant la distance d"étirage ce qui signifie que la réduction de la distance d"étirage est un facteur stabilisant vis-à-vis du procédé. Par contre, dans le cas de la position

« + », la distance d"étirage ne présente aucune influence sur le débit de colle critique. En ce qui concerne la position « - », on observe un comportement équivalent à la position « 0 » : en augmentant la distance d"étirage, le débit de colle critique passe de 2.4 à 1.3 g/s environ ce qui signifie que la réduction de la distance d"étirage a tendance à stabiliser le procédé.

III.2.2.2.8 Influence du dénivelé sur le différentiel de pression critique :

On considère un entrefer $2h_0 = 0.7\,mm$, une température de colle $T = 150\,°C$ et une distance d"étirage $L = 0.6\,mm$. Deux combinaisons de vitesse et de grammage permettant d"avoir un débit $Q = 6.7\,g/s$ sont considérées : ($V_L = 200\,m/min\,;grammage = 5g/m^2$) et ($V_L = 333\,m/min\,;grammage = 3g/m^2$). Pour chacune de ces deux combinaisons, on étudie l"évolution du défaut en fonction du différentiel de pression et du dénivelé (les positions « 0 » et « - »).

A la figure III.18, on considère une vitesse de 200 m/min et un grammage de 5 g/m² (Dr = 133) et à la figure III.19, on considère une vitesse de 333 m/min et un grammage de 3 g/m² (Dr = 222).

Dans ces deux figures, on remarque que le domaine de dépression pour lequel le défaut disparaît est plus large pour la position « 0 » ce qui signifie qu"il est plus facile de stabiliser le procédé dans cette position sans provoquer la casse du film.

De plus, dans le cas de la position « - », on remarque que le différentiel de pression critique est plus élevé. En effet, dans cette position, le film de colle va couvrir plus facilement l"entrée de la pompe à vide et la pression mesurée par le capteur installé dans la boîte à vide sera donc artificiellement plus élevée (voir figure III.20). Ainsi, il est possible que, pour les deux hauteurs de filière, la dépression critique soit identique mais c"est juste sa mesure qui diffère d"un cas à l"autre.

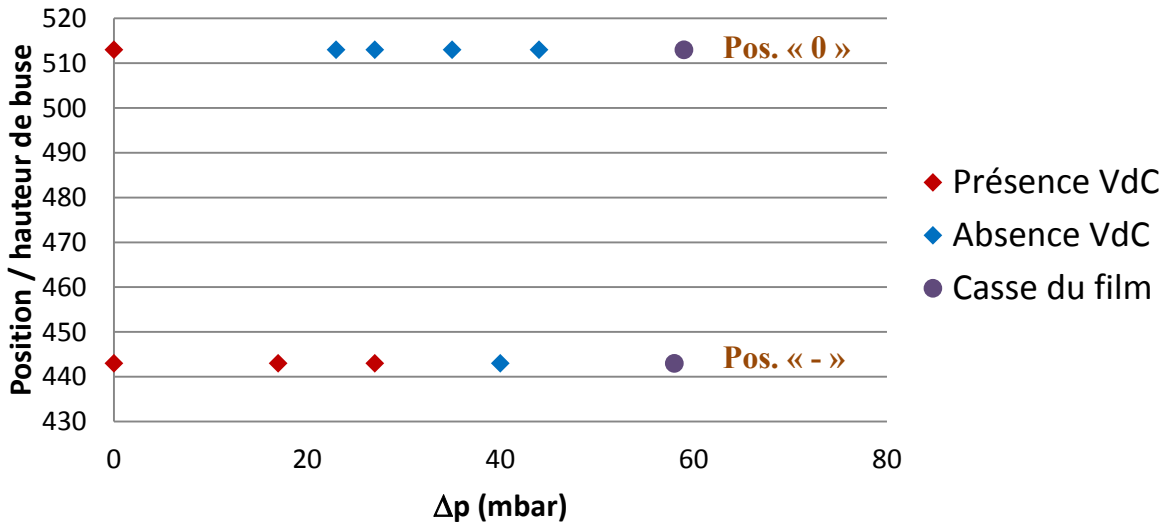


Figure III.18 - Evolution du défaut en « veines de chêne » en fonction de la hauteur de filière pour $2h_0 = 0,7\,mm$; $L = 0,6mm$; $U_L = 200\,m/min$; $grammage = 5g/m^2 et\ Q = 6.7g/s$

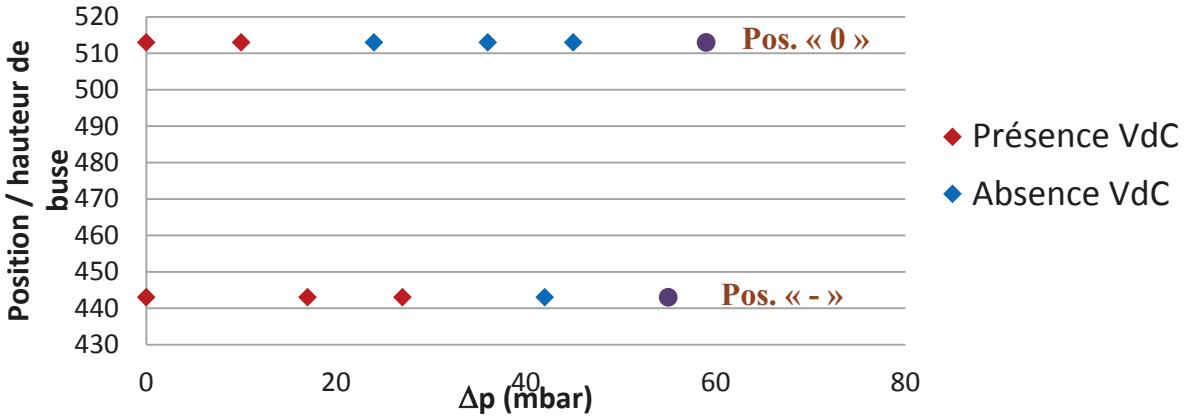


Figure III.19 - Evolution du défaut en « veines de chêne » en fonction de la hauteur de filière pour $2h_0 = 0,7\ mm$; $L = 0,6mm$; $U_L = 333\ m/min$; $grammage = 3g/m^2 et\ Q = 6.7g/s$

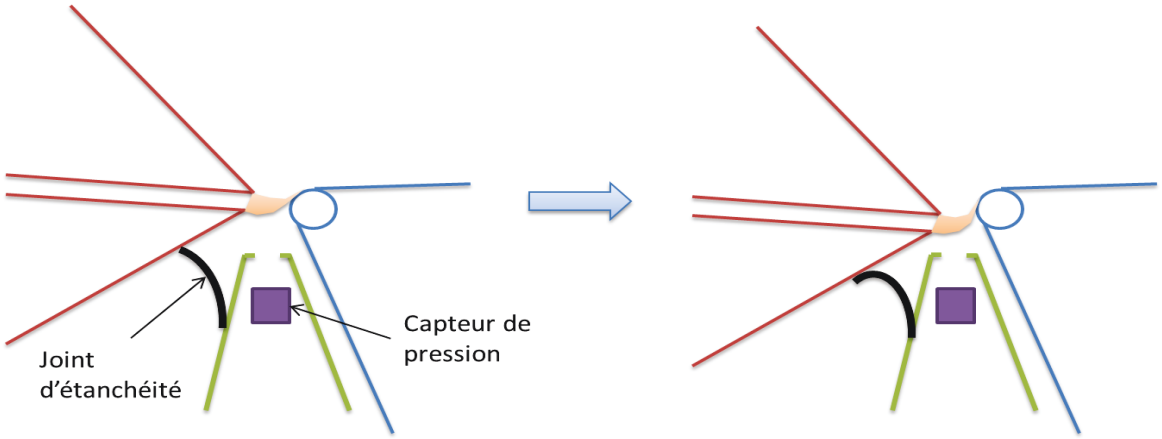
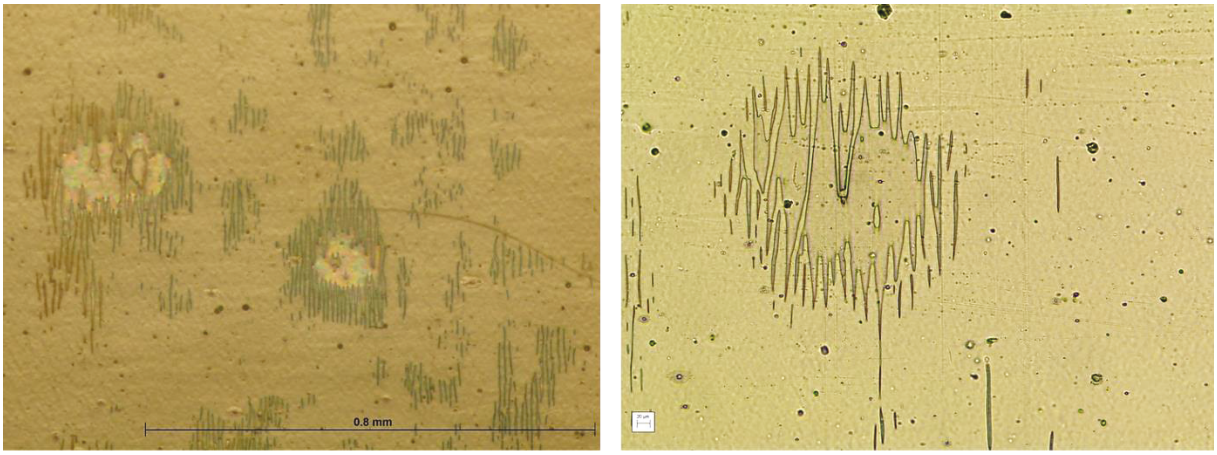


Figure III.20 - Effet de la réduction de la hauteur de filière sur la mesure de pression dans la boîte à vide

III.3 Le défaut de couverture :

Le défaut de couverture a été caractérisé en utilisant la formule A188 mais sa quantification en fonction des paramètres du procédé a été effectuée en utilisant la formule A190.



A188 ($2h_0 = 0,7\ mm$; $T = 180\ °C$; $L = 0,5mm$; $grammage = 3\ g/m^2$; $\Delta p = 16\ mbar$; $V_L = 100\ m/\min$)

A190 ($2h_0 = 0,7\ mm$; $T = 155\ °C$; $L = 0,5mm$; $grammage = 5\ g/m^2$; $\Delta p = 20\ mbar$; $V_L = 100\ m/\min$)

Figure III.21 - Comparaison des défauts de couverture obtenus avec les formules A188 et A190 par microscopie binoculaire

La figure III.21 montre que le défaut de couverture est retrouvé avec la formule A190 et qu"il présente le même aspect qu"avec la formule 188 (dans des conditions différentes) notamment avec la présence des défauts surfaciques et des canaux. Cela permet de justifier la validité de l"utilisation de la formule A190 dans la quantification de ce défaut.

III.3.1 Caractérisation et analyse du défaut de couverture :

Le défaut de couverture se manifeste par une dégradation de la transparence du film complexe. En effet, en observant ce dernier à l'œil nu, on aperçoit un « brouillard » sur toute la surface du film complexe. Comme les films primaire et secondaire sont très transparents, la couche de colle est donc à l"origine du défaut.

Afin de mieux comprendre ce défaut, la surface du film complexe a été observée au microscope binoculaire. Cette observation montre la présence de zones claires de différentes formes sur un fond plus sombre. Ce différentiel de couleurs nous fait penser que les zones claires contiennent moins de colle que les zones sombres et représentent donc des déchirures dans la couche de colle. Cependant, on ne peut pas affirmer que ces déchirures sont partielles ou bien traversantes.

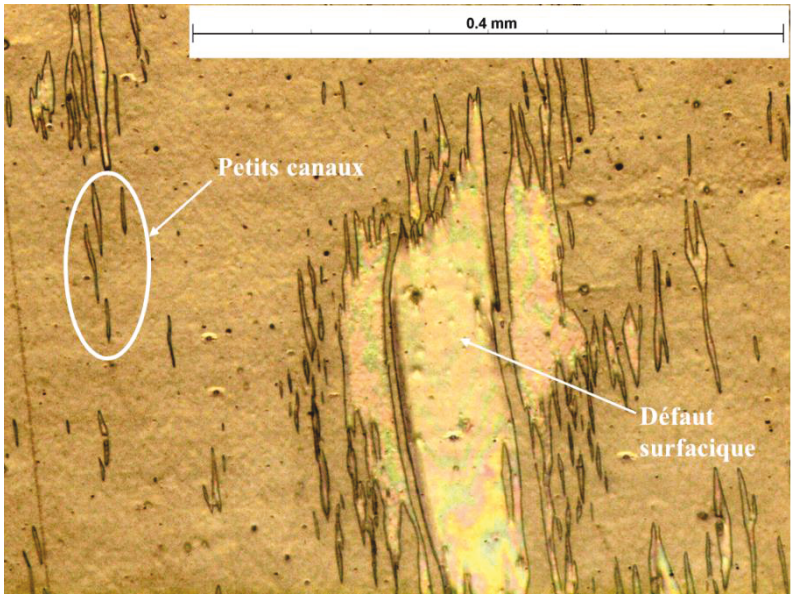


Figure III.22 - Défauts de couverture observés par microscope binoculaire

D"autres observations notamment dans l"épaisseur du film complexe permettront de répondre à cette question. L"observation de la surface du film complexe au microscope binoculaire montre également que le défaut de couverture peut prendre deux formes particulières : des défauts linéaires qu"on appellera « petits canaux » et des défauts surfaciques (figure III.22). Ces deux types du défaut de couverture sont caractérisés séparément en utilisant le microscope binoculaire et le MEB.

III.3.1.1 Les petits canaux :

Les petits canaux représentent une variante du défaut de couverture qui possède un facteur de forme très important et qui sont toujours orientés suivant la direction de l"étirage (figure III.23).

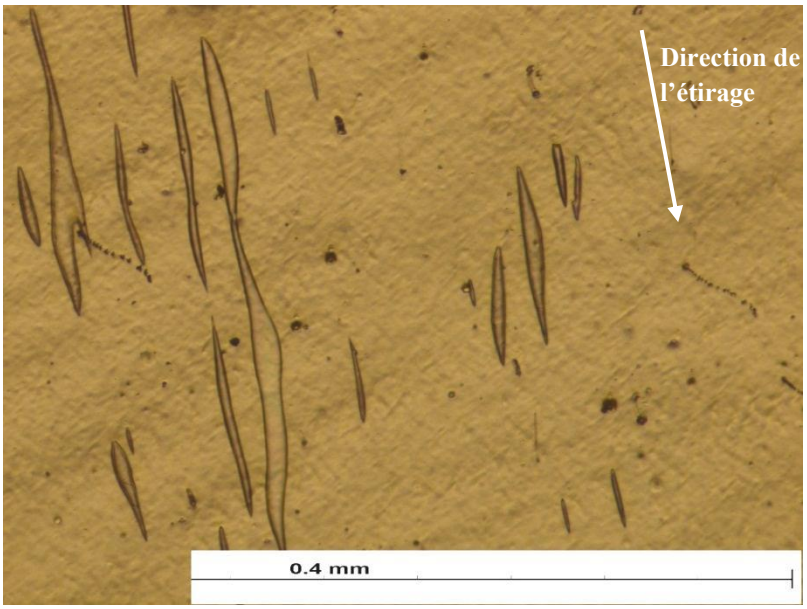


Figure III.23 - Petits canaux observés au microscope binoculaire

La distribution de taille de ce défaut est très polydisperse. En effet, la largeur du défaut varie entre 2 et 40 µm et sa longueur varie entre 10 µm et 1 mm ou même plus.

Des observations de ce défaut dans l'épaisseur du film ont permis de mieux comprendre son aspect. La figure III.24 montre une coupe en « marches d'escalier » au voisinage d'un petit canal (la découpe des trois films ne se fait pas dans le même plan) observée en perspective au microscope binoculaire. Cette observation révèle que les petits canaux sont des déchirures superficielles qui ne traversent pas la couche de colle.

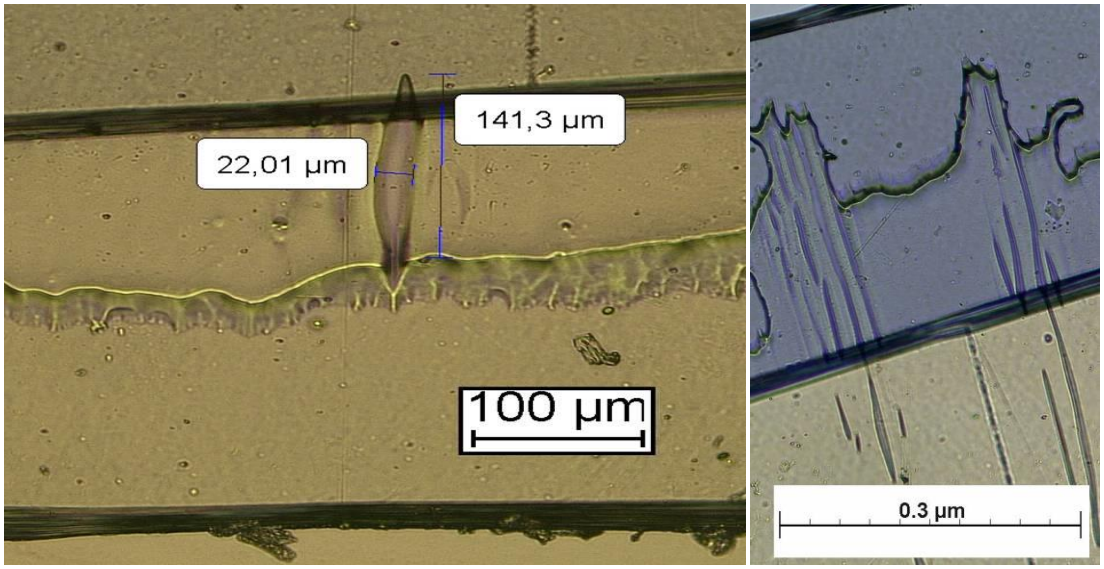


Figure III.24 – Découpe en « marches d'escalier » et observation d'un petit canal au microscope binoculaire

Plusieurs observations du défaut de petits canaux au MEB dans l'épaisseur du film complexe ont révélé que ces défauts sont toujours localisés du côté du film primaire avec une section circulaire qui met en évidence le rôle de la tension superficielle (figure III.25).

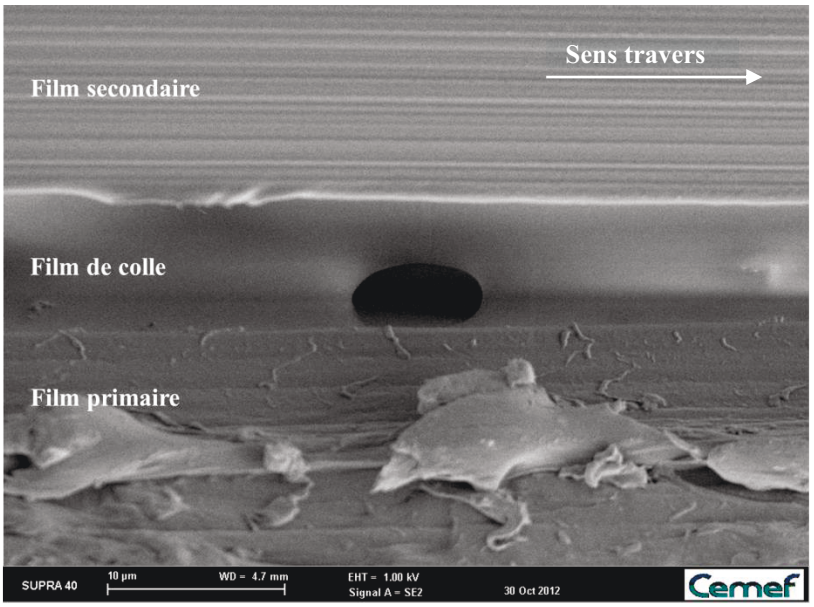


Figure III.25 - Petit canal observé au MEB dans l'épaisseur du film complexe

Ainsi, on peut conclure que les petits canaux correspondent à des déchirures superficielles dans la couche de colle qui sont localisées du côté du film primaire. La figure III.26 illustre l‘‘aspect général de ce défaut.

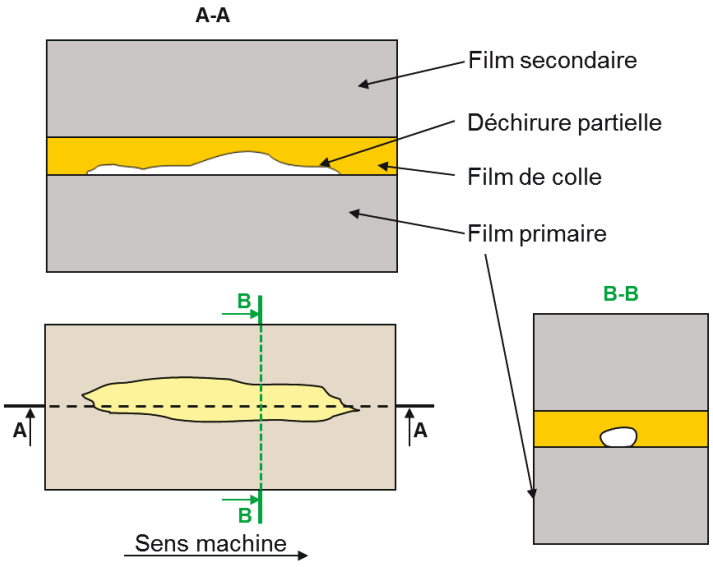


Figure III.26 – Aspect général des petits canaux

III.3.1.2 Les défauts surfaciques :

Les défauts surfaciques représentent une variante du défaut de couverture qui correspond à des « tâches » caractérisées par un faible facteur de forme (proche de 1) et qui possèdent à leurs bords plusieurs canaux orientés selon la direction de l‘‘étirage (figure III.27). La largeur de ces défauts varie en général entre 200 µm et 1mm.

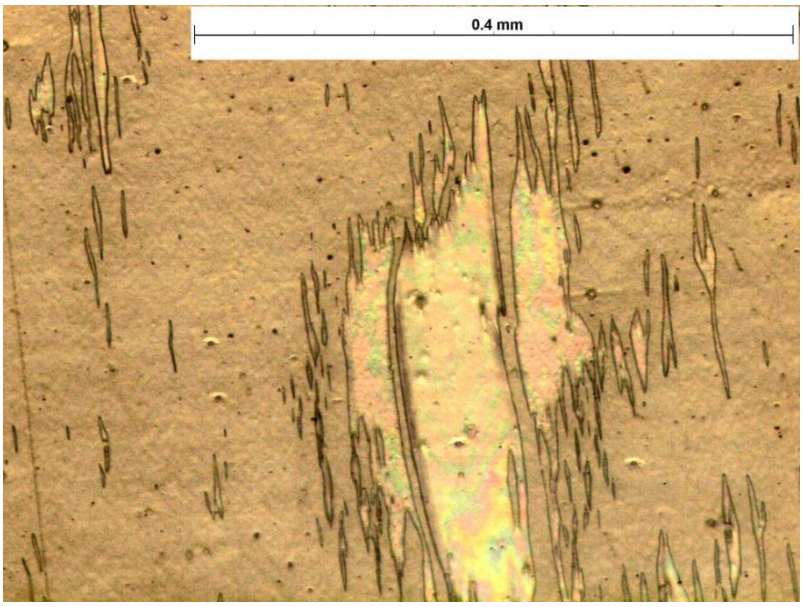


Figure III.27 - Défauts de couverture surfaciques observés au microscope binoculaire

Des observations du défaut surfacique dans l"épaisseur de la couche de colle ont permis de mieux comprendre son aspect. La figure III.28 montre une coupe en « marches d"escalier », autour d"un défaut surfacique, observée en perspective au microscope binoculaire. Cette coupe révèle que les défauts surfaciques représentent des inclusions d"air qui ne traversent pas la couche de colle.

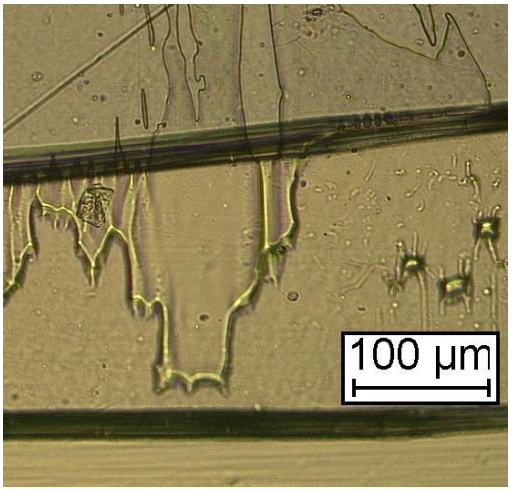


Figure III.28 - Découpe en « marches d'escalier » et observation d'un défaut surfacique au microscope binoculaire

De plus, plusieurs observations de défauts surfaciques au MEB dans l"épaisseur du film complexe ont révélé que ces défauts sont toujours localisés comme précédemment du côté du film primaire (figure III.29).

Ainsi, on peut conclure que les défauts surfaciques, comme les petits canaux, correspondent à des déchirures superficielles dans la couche de colle qui sont localisées du côté du film primaire. La figure III.30 illustre l"aspect général de ce défaut.

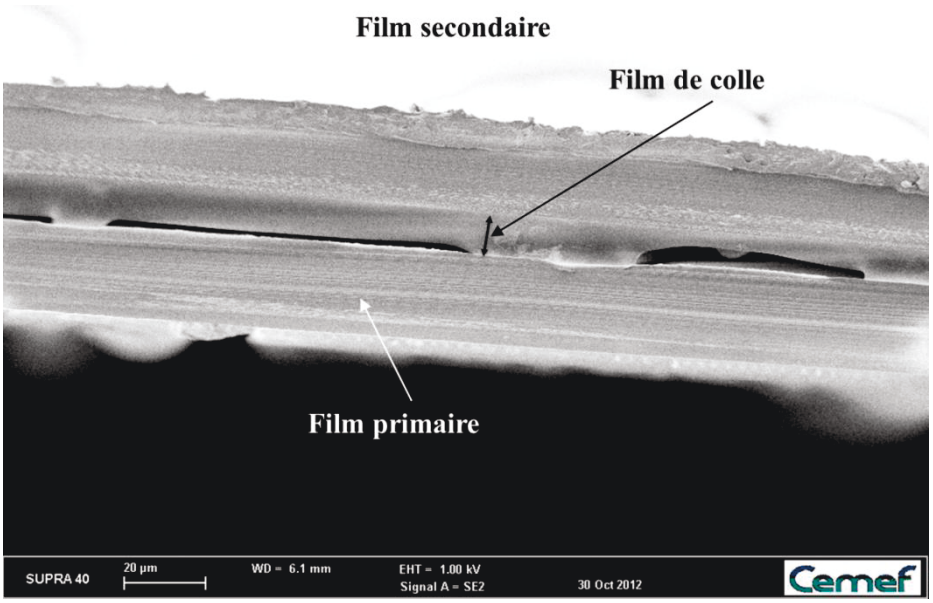


Figure III.29 – Défauts surfaciques observés au MEB dans l'épaisseur du film complexe

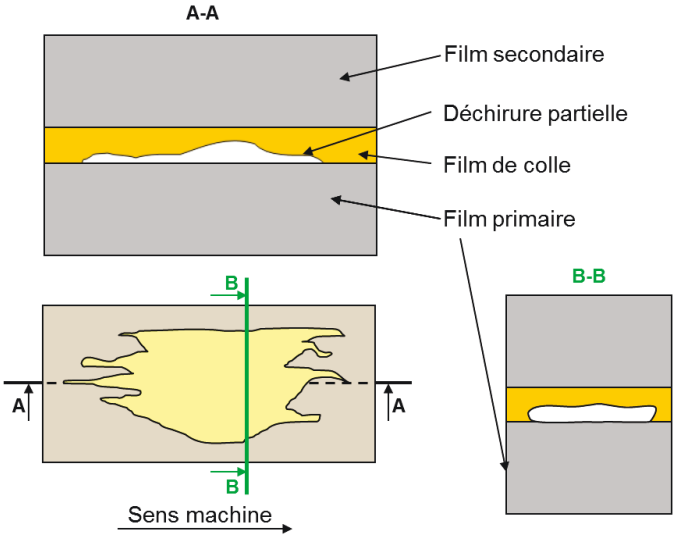


Figure III.30 - Aspect général des défauts de couverture surfaciques

III.3.2 Effets du fluage de la colle en bobine sur le défaut de couverture :

Nous avons remarqué que la transparence du film complexe s"améliore en le laissant quelques jours sous tension dans la bobine. Ce phénomène peut être expliqué par une cicatrisation d"une partie des déchirures du défaut de couverture suite au fluage de la colle provoqué essentiellement par les contraintes que subissent les différentes spires de la bobine sous l"effet de la tension d"enroulement. Afin de vérifier cette hypothèse, nous avons considéré deux protocoles pour simuler le fluage de la colle et nous avons observé le même défaut avant et après le fluage de la colle. Le premier protocole consiste à laisser un échantillon de film complexe tendu sur une lamelle par un ruban adhésif pendant trois jours. Le deuxième

protocole consiste à laisser un échantillon de film complexe tendu sur une lamelle par un ruban adhésif pendant une heure dans l"étuve à 50°C.

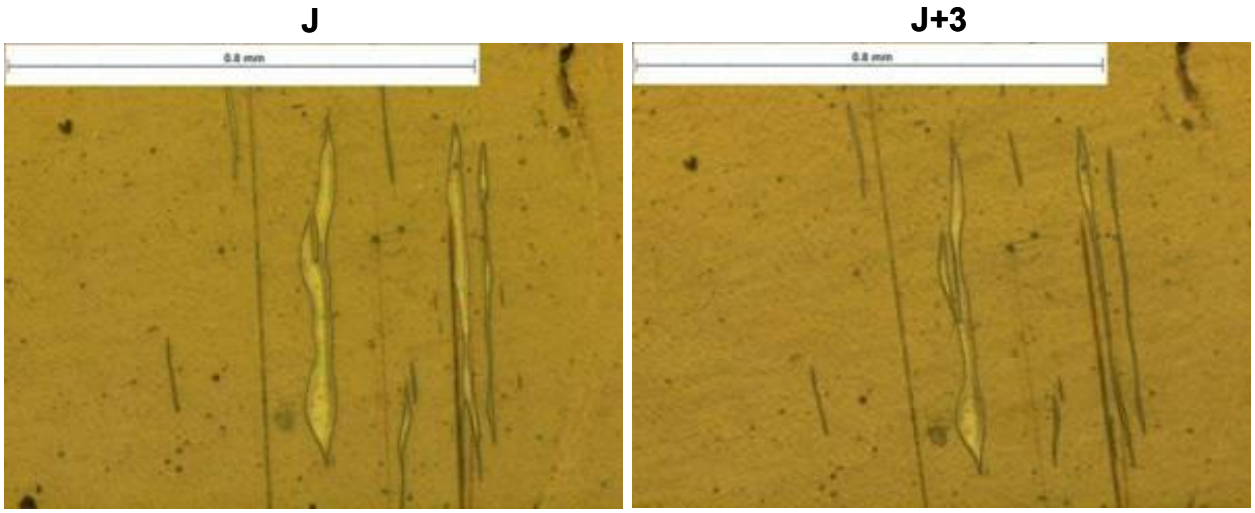


Figure III.31 - Evolution d'un défaut de petits canaux par fluage selon le premier protocole

La figure III.31 montre l"évolution de la forme de quelques petits canaux après fluage de la colle selon le premier protocole. On constate que le fluage de la colle a permis de réduire la surface du défaut mais cette réduction n"est pas très importante.

La figure III.32 montre l"évolution de la forme de petits canaux et de défauts surfaciques après fluage de la colle selon le deuxième protocole. On remarque que le deuxième protocole de fluage permet d"éliminer presque totalement les défauts de couverture.

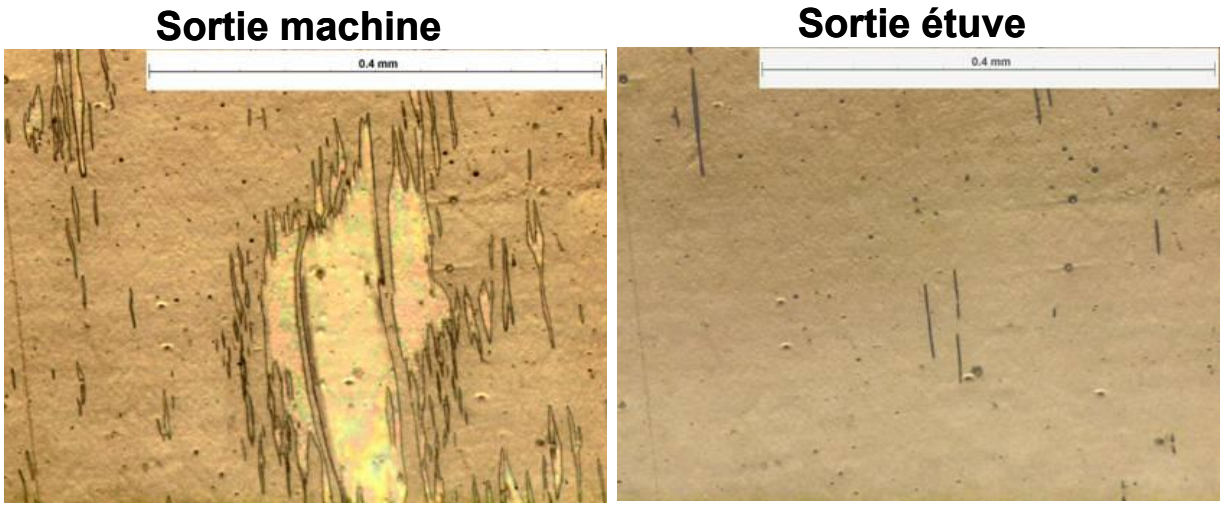


Figure III.32 - Evolution des défauts surfaciques par fluage de la colle selon le deuxième protocole

Cela démontre que le fluage est un phénomène thermiquement activé ce qui est classique. En effet, passer une heure à 50°C est plus efficace que passer 3 jours à température ambiante. Il est évident que le deuxième protocole met l"échantillon dans des conditions de fluage plus extrêmes et qu"il fait subir à l"adhésif un fluage plus rapide. Donc la différence entre ces deux protocoles est essentiellement due au fait qu"on n"est pas en train d"évaluer l"évolution du défaut au même stade de fluage.

Le fluage de la colle en bobine permet donc d"éliminer une bonne partie du défaut de couverture mais ce n"est pas le cas avec le défaut en « veines de chêne ».

Nous avons montré dans le paragraphe II.2 que les adhésifs thermofusibles utilisés présentent un seuil d"écoulement pour les faibles fréquences / taux de cisaillement. L"estimation du seuil de contrainte relatif à chaque formule de colle peut s"avérer d"une importance capitale puisqu"il nous permettra de déterminer la tension d"enroulement de la bobine minimale qui déclenche le fluage de la colle dans la bobine. Cependant, la détermination de la force radiale qui résulte de la tension d"enroulement de la bobine reste un problème compliqué.

III.4 Quantification du défaut de couverture en fonction des paramètres du procédé :

L"objectif est de comprendre comment évolue le défaut de couverture en fonction des différents paramètres du procédé. Pour ce faire, il est important de définir une grandeur permettant de quantifier l"occurrence de ce défaut : le taux de couverture. Cette grandeur est égale au pourcentage de la surface du film complexe qui n"est pas affectée par le défaut par rapport à la surface totale considérée.

III.4.1 Protocole expérimental :

Afin de mesurer le taux de couverture, des observations de la surface du film complexe au microscope binoculaire sont nécessaires. Il est donc nécessaire de définir un protocole de mesure du taux de couverture à partir d"une photo de la surface du film complexe.

III.4.1.1 Protocole de mesure du taux de couverture sur une photo de la surface du film complexe:

On considère une image prise par microscopie binoculaire sur la surface du film complexe (figure III.33).

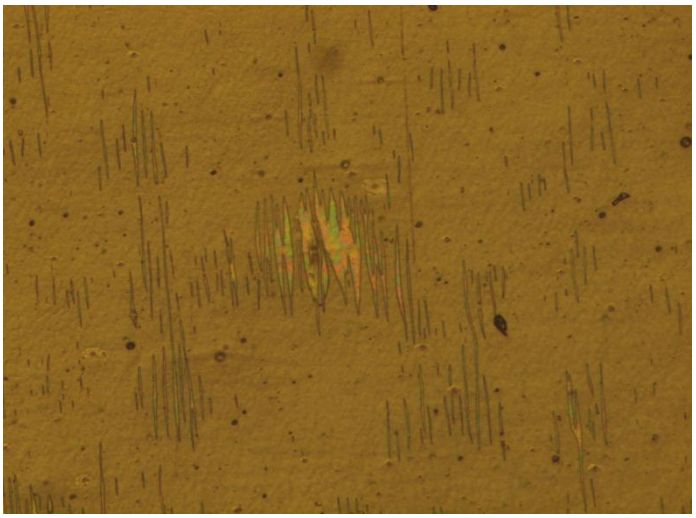


Figure III.33 - Photo prise par microscopie binoculaire sur la surface du film complexe

Cette image comporte des zones claires qui témoignent localement d"une mauvaise enduction et des zones sombres qui ne sont pas affectées par le défaut de couverture. La mesure du taux

de couverture nécessite donc la mesure des surfaces des deux zones considérées. Il est déterminé en calculant le rapport de la surface de la zone sombre sur la surface totale.

Le logiciel scientifique *Visilog* a été utilisé pour faire ce calcul de surface. Cette mesure n"est pas en général précise puisque le logiciel ne peut pas discriminer précisément les zones claires des zones sombres (figure III.34). Donc, il faut refaire la mesure 2 ou 3 fois en ajustant les seuils de couleurs pour se rapprocher au mieux du taux de couverture réel. Ensuite, on procède à une correction visuelle du taux de couverture obtenu sur la base de la comparaison de l"image traitée et l"image initiale (figure III.34). Cette correction nous permet d"avoir une précision de l"ordre de ±1%.

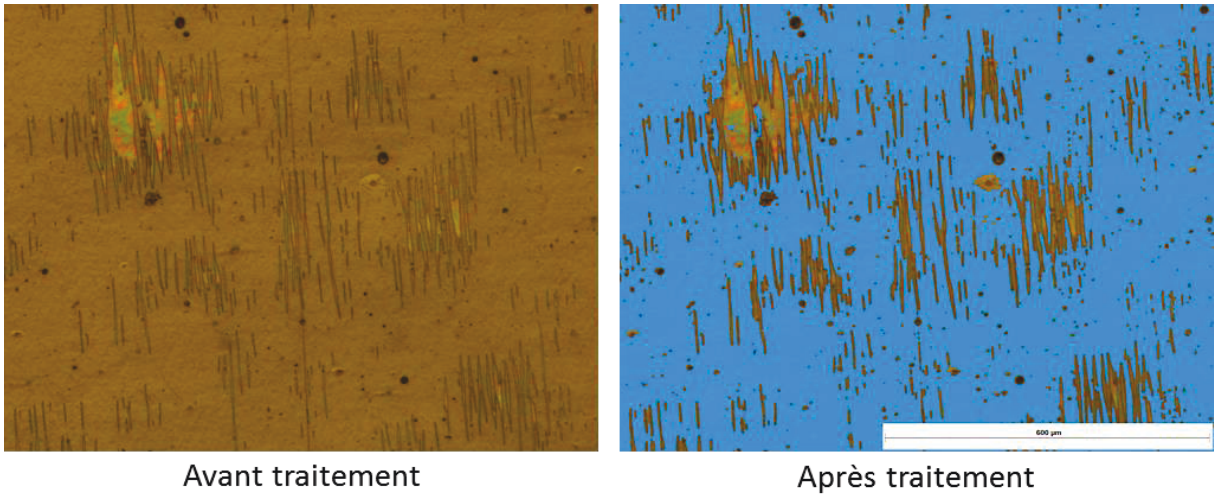


Figure III.34 - Exemple d'une image traitée par Visilog

III.4.1.2 Protocole de mesure du taux de couverture sur un film complexe échantillon

Le protocole de mesure a été appliqué de la même façon à tous les échantillons considérés. Ce protocole consiste à réaliser une mesure du taux de couverture sur un échantillon récupéré de la bobine en sortie machine (avant fluage de la colle). Sur cet échantillon, on repère le milieu du film dont la largeur est de 30 cm par un marqueur puis on prend une séquence de 20 photos juxtaposées de la surface du film complexe en commençant à partir du milieu de l"enduction et en allant selon la direction transverse dans le sens du « côté opérateur » (figure III.35). Pour ce faire, la partie de l"échantillon utile à la mesure est découpée puis fixée sur une lamelle par un ruban adhésif. Cette lamelle est placée dans un microscope binoculaire de marque *OLYMPUS* et elle est observée avec un objectif 5X. Une séquence de 20 photos accolées est ensuite prise par un appareil photo Reflex numérique *OLYMPUS E-620*.

Chacune de ces photos est par la suite traitée par le logiciel *Visilog* selon le protocole expliqué dans (III.4.1.1).

Ce traitement conduit à une mesure d"un taux de couverture relatif à chacune de ces photos. Le taux de couverture du film complexe échantillon est défini comme étant la moyenne arithmétique des taux de couverture des 20 photos ce qui revient finalement à mesurer un taux de couverture d"une cartographie de la surface du film complexe formée par les 20 photos.

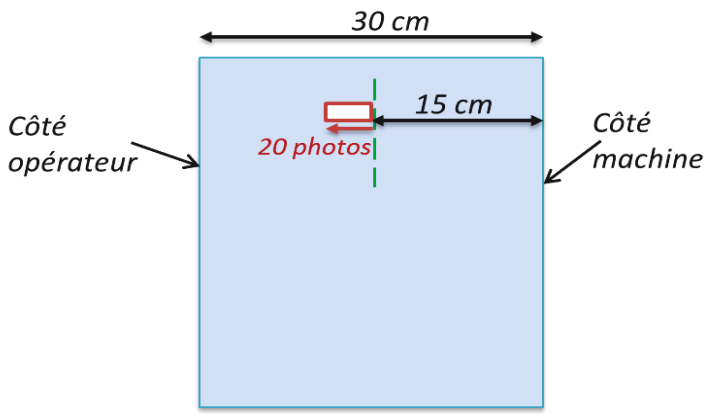


Figure III.35 - Schéma explicatif du protocole de prise de photos sur un film complexe échantillon

Le choix de prendre 20 photos par échantillon n"est pas arbitraire. En effet, l"évolution du taux de couverture moyen en fonction du nombre de photos considérées a été étudiée sur quelques échantillons. Une bonne convergence du taux de couverture moyen a été observée pour environ 12 photos (figure III.36). Notons que l"augmentation rapide du taux de couverture moyen (pour les trois premières photos) résulte de l"ordre de prise des photos : en changeant l"ordre des photos, on obtient une courbe avec une allure différente. Comme la taille du défaut de couverture peut varier en fonction des paramètres du procédé, on ne peut pas affirmer qu"une séquence de 12 photos représente une surface élémentaire représentative. Cependant, le choix de considérer 20 photos au lieu de 12 est un bon compromis entre la précision et le temps consacré à cette étude.

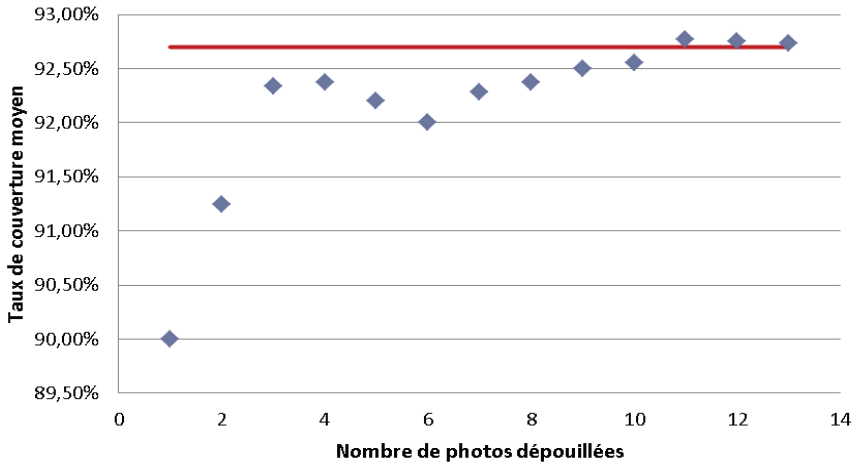


Figure III.36 - Evolution du taux de couverture en fonction des photos traitées

De plus, le taux de couverture peut sembler variable en fonction de la largeur du film complexe. Pour cela, une étude qui consiste à mesurer le taux de couverture dans plusieurs emplacements (au milieu et aux bords du film complexe) d"un même échantillon a été réalisée. Cette étude a montré que le taux de couverture mesuré n"est pas très affecté par l"endroit de mesure puisqu"on a des valeurs qui se situent dans un intervalle [$\bar{x}$-1.5% ; $\bar{x}$+1.5%] centrées autour d"une valeur moyenne $\bar{x}$. Ainsi, vu le grand nombre de conditions

expérimentales à tester, on s"est limité à mesurer le taux de couverture uniquement au milieu du film complexe.

III.4.1.3 Plan d'expérience et paramètres du procédé testés

Seule la formule de colle A190 a été utilisée dans la quantification du défaut de couverture en fonction des paramètres du procédé. Un seul entrefer $2h_0 = 0{,}7\ mm$ et une seule température de colle $T = 150°C$ ont été testés. Plusieurs combinaisons des autres paramètres du procédé ont été considérées : deux grammages (3 et 5 g/m²), quatre vitesses d"étirage (90, 100, 150 et 200 m/min), deux distances d"étirage (0.6 et 1.8 mm), trois positions en hauteur de la filière (« 0 », « - » et « + ») et plusieurs valeurs de dépression (de 0 à 40 mbar).

Vu le grand nombre de paramètres du procédé, il n"est pas raisonnable d"effectuer une étude expérimentale qui fait varier tous les paramètres du procédé. Afin de réduire le nombre d"essais, un plan d"expériences qui consiste à comparer les différents essais à une situation de référence en modifiant en général un seul paramètre, a été considéré.

L"entrefer et la température de colle étant fixés, la situation de référence est définie par la position « 0 » de la filière et une distance d"étirage $L = 0{,}6mm$. Cette situation de référence comporte quatre combinaisons (vitesse d"étirage ; grammage) et chacune de ces combinaisons a été testée avec différentes valeurs de dépression. Trois autres situations ont été considérés en plus de la situation de référence et chacune de ces situations comporte deux ou trois combinaisons (vitesse d"étirage ; grammage) parmi celles de la situation de référence pour pouvoir les comparer à celle-ci (figure III.37). Une flèche reliant deux cas donnés signifie qu"un seul paramètre a été modifié entre ces deux cas et qu"il est ainsi possible d"étudier l"influence du paramètre en question sur le taux de couverture.

$Pos. + et\ L = 0{,}6mm$

U_L (m/min)	Grammage (g/m²)
100	3
150	3
90	5

$Pos. 0\ et\ L = 0{,}6mm$

U_L (m/min)	Grammage (g/m²)
100	3
150	3
90	5
200	5

$Pos. 0\ et\ L = 1{,}8mm$

U_L (m/min)	Grammage (g/m²)
100	3
150	3
90	5

$Pos. -\ et\ L = 0{,}6mm$

U_L (m/min)	Grammage (g/m²)
100	3
90	5

Figure III.37 - Diagramme montrant les différents cas testés

III.4.2 Résultats de la mesure du taux de couverture :

Le taux de couverture est mesuré sur tous les échantillons produits selon le protocole défini précédemment. Ces mesures sont utilisées pour étudier l"influence de chacun des paramètres du procédé sur le défaut de couverture. Le tableau A-III.1 de l"annexe III résume les résultats des essais réalisés.

III.4.2.1 Influence du différentiel de pression Δp

On considère le cas de référence ($Pos.\ 0\ ;\ L = 0{,}6mm$), une vitesse d"étirage $U_L = 90\ m/min$ et un grammage de $5\ g/m^2$. On étudie l"évolution du taux de couverture en fonction du différentiel de pression Δp. On observe sur la figure III.38 que le taux de couverture augmente en augmentant le différentiel de pression. En observant les quatre échantillons considérés, à l"œil nu, on remarque que l"aspect du film s"améliore en augmentant le différentiel de pression. Donc, on constate une bonne corrélation entre le taux de couverture et l"aspect visuel du film complexe.

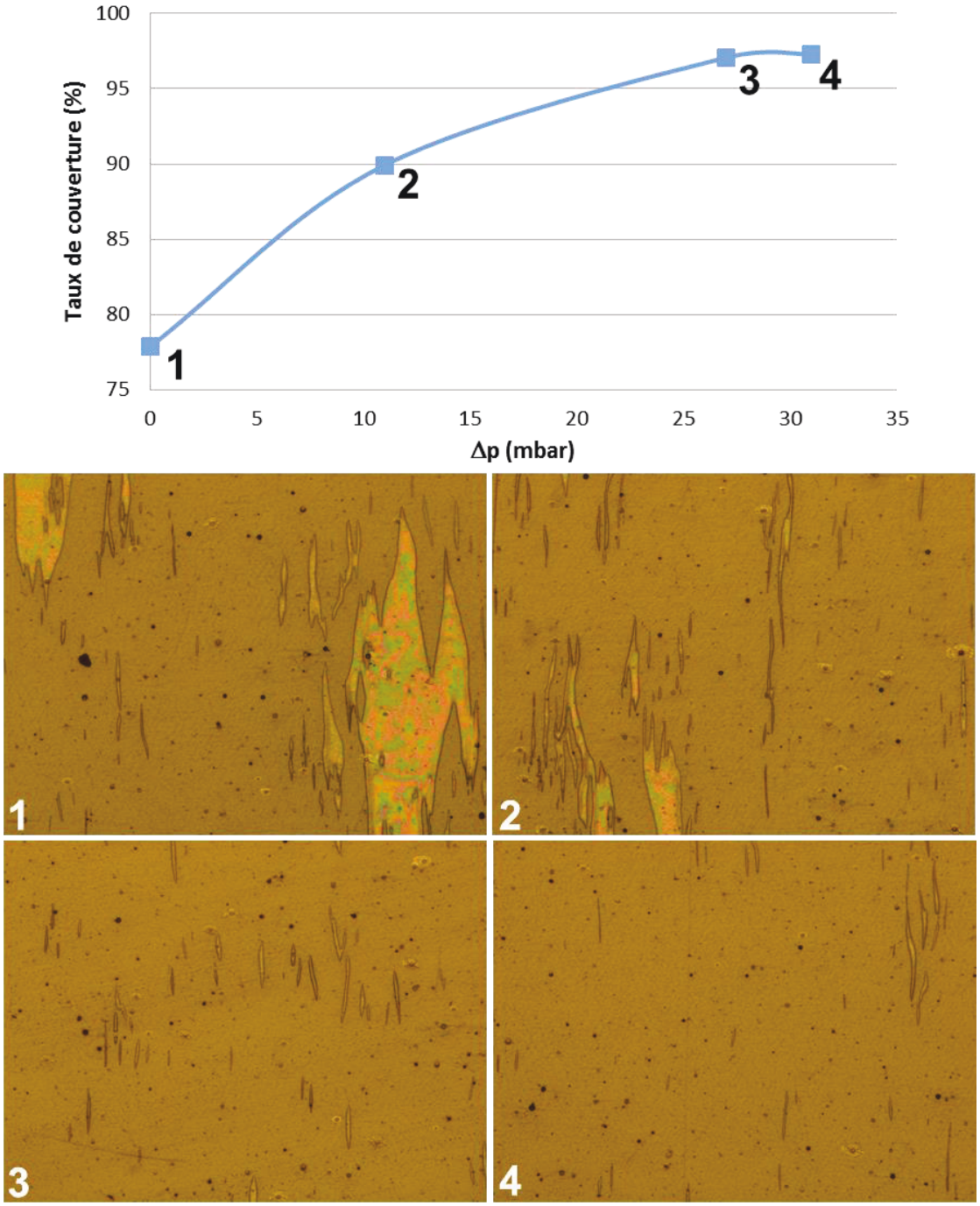


Figure III.38 - Evolution du taux de couverture et de l'aspect local des défauts en fonction du différentiel de pression pour un grammage de 5 g/m² et une vitesse d'étirage de 90 m/min

De plus, la figure III.38 montre pour chaque valeur du différentiel de pression une photo caractéristique de l"aspect local du défaut de couverture. Pour $\Delta p = 0\ mbar$, on observe les deux formes du défaut : les défauts surfaciques et les petits canaux. Pour $\Delta p = 11\ mbar$, on observe également les deux formes du défaut de couverture mais on note que les défauts surfaciques deviennent moins importants en terme de taille par rapport au cas précédent. A partir de $\Delta p = 27\ mbar$, les tâches surfaciques disparaissent et on observe uniquement des petits canaux. Ces observations nous montrent qu"on est confronté à deux types de défauts qui se superposent dans certaines conditions : les tâches surfaciques qui disparaissent à partir d"un différentiel de pression critique et les petits canaux qui ne disparaissent pas complètement même à des différentiels de pression importants.

Comme de plus les petits canaux sont étirés dans la direction d"étirage à l"inverse des tâches surfaciques, on peut associer à chacun de ces défauts une origine probable. En ce qui concerne les défauts surfaciques, il est très probable qu"ils correspondent à des bulles d"air admises entre le film support et le film de colle. L"augmentation du différentiel de pression fait de sorte que la pompe à vide positionnée en dessous du film de colle aspire l"air plus fortement et empêche ainsi son admission entre le film de colle et le film support. Le fait d"avoir montré que le défaut de couverture est localisé du côté du film support confirme bien cette hypothèse. En ce qui concerne les petits canaux, Nous avons l"impression qu"ils trouvent leur origine dans la filière et qu"ils prennent leur forme allongée pendant l"étirage. Cependant, nous formulons deux hypothèses sur leur origine. La première hypothèse stipule qu"ils représentent de petites bulles d"air emprisonnées dans le film de colle extrudé qui se transforment en canaux après l"étirage de ce dernier. Cependant, la caractérisation des petits canaux a montré que ces derniers se trouvent systématiquement du côté du film support. Compte tenu de ce résultat, il n"est pas évident d"expliquer pourquoi ces petites bulles d"air étirées apparaissent toujours du même côté. La deuxième hypothèse stipule que des micro-ruptures dans le film de colle sont à l"origine de ces petits canaux. Ces micro-ruptures sont étirées dans la direction d"étirage mais ne peuvent se propager dans la direction transverse et dans l"épaisseur vu le faible temps de couchage ($\sim 10^{-2}\ s$). La singularité de contrainte en sortie de filière peut être à l"origine de ces micro-ruptures. Ces hypothèses seront discutées au chapitre (VII). En ce sens, le défaut ne semble pas de nature comparable au défaut de rupture de film observé par Demay et Agassant dans le cas du PET et par Bourrigaud et *al.* dans le cas du PEBD ([Demay, 1985], [Bourrigaud, 2006].

Il est à noter que, dans la plupart des autres cas testés, on observe la même évolution du taux de couverture en fonction du différentiel de pression à l"exception de 2 ou 3 échantillons.

III.4.2.2 Influence de la vitesse d'étirage U_L

On considère le cas de référence ($Pos.\ 0\ ;\ L = 0{,}6mm$), deux grammages ($3\ g/m^2$ et $5\ g/m^2$) et pour chacun de ces grammages, on considère deux vitesses d"étirage et on étudie l"évolution du taux de couverture en fonction du différentiel de pression pour les quatre combinaisons.

La figure III.39 montre l'évolution du taux de couverture en fonction du différentiel de pression pour un grammage de 5 g/m^2 (c'est à dire un taux d'étirage $Dr = 133$) et pour deux vitesses d'étirage : $U_L = 90\ m/min$ et $U_L = 200\ m/min$.

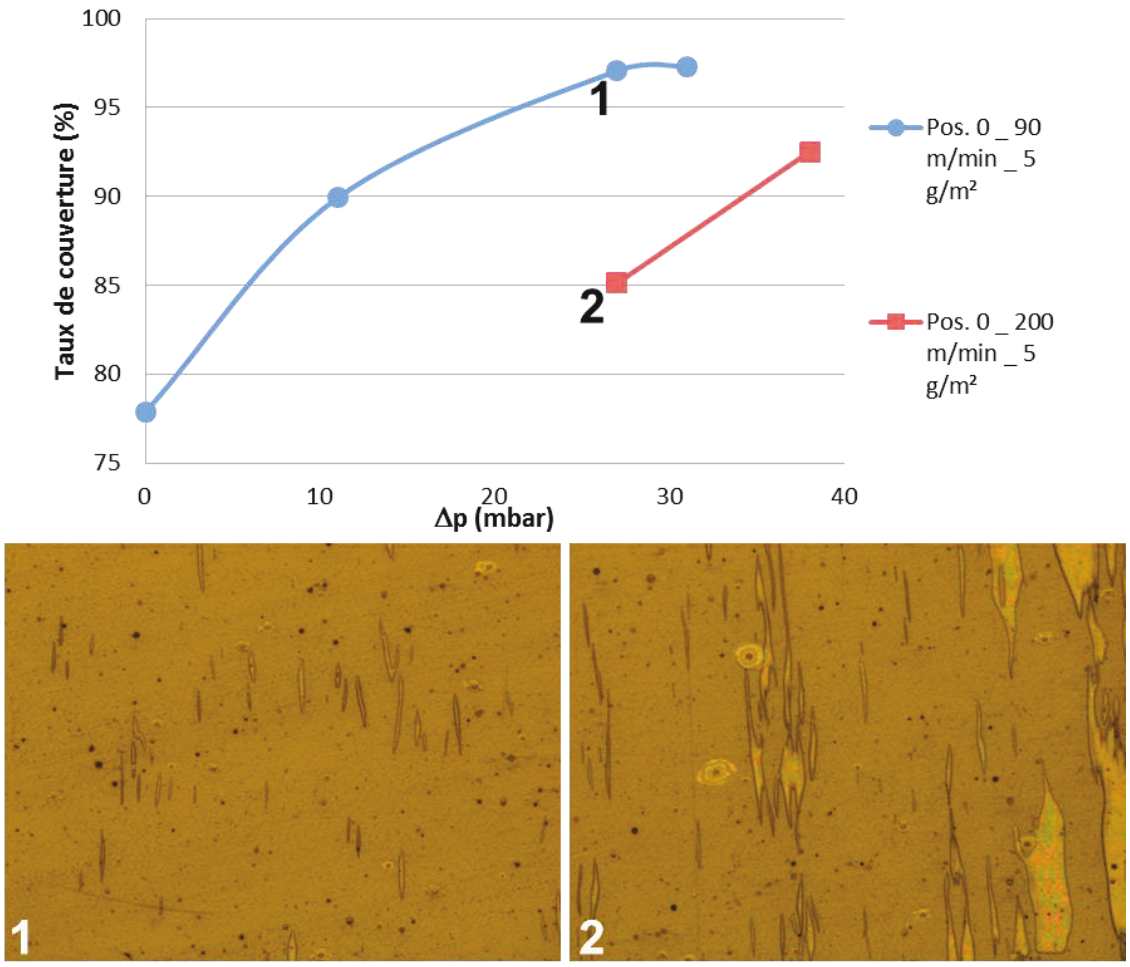


Figure III.39 - Evolution du taux de couverture en fonction du différentiel de pression pour un grammage de 5 g/m²

De la même manière, la figure III.40 compare le taux de couverture pour un grammage de 3 g/m^2 (c'est à dire un taux d'étirage $Dr = 222$) et deux vitesses d'étirage : $U_L = 100\ m/min$ et $U_L = 150\ m/min$.

On observe dans ces deux figures que le taux de couverture diminue en augmentant la vitesse d'étirage quel que soit la valeur du différentiel de pression. Ce résultat est très logique puisqu'en augmentant la vitesse d'étirage on favorise l'admission de bulles d'air entre le film de colle et le film primaire. Donc le différentiel de pression nécessaire à la disparition des tâches surfaciques devient plus important en augmentant la vitesse d'étirage. Ainsi pour le même différentiel de pression, la présence des tâches surfaciques est plus marquée dans le cas de la vitesse d'étirage la plus élevée. Comme la taille des petits canaux est négligeable devant celle des tâches surfaciques, le taux de couverture est plus influencé par ces dernières et il décroît donc en augmentant la vitesse d'étirage. Deux photos caractéristiques de l'aspect local du défaut pour la même $\Delta p = 27\ mbar$ confirment cette explication (figure III.39). Il est à noter que le taux de couverture obtenu à $\Delta p = 0\ mbar$ pour un grammage de 3 g/m^2 et une

vitesse d'étirage $U_L = 150\ m/min$ semble très élevé par rapport aux autres points de la même courbe, ce qui reste un résultat un peu curieux (figure III.40).

Sur les figures III.39 et III.40, on observe également l'influence du débit massique moyen Q qui augmente en augmentant la vitesse d'étirage puisque l'entrefer et le grammage sont fixés.

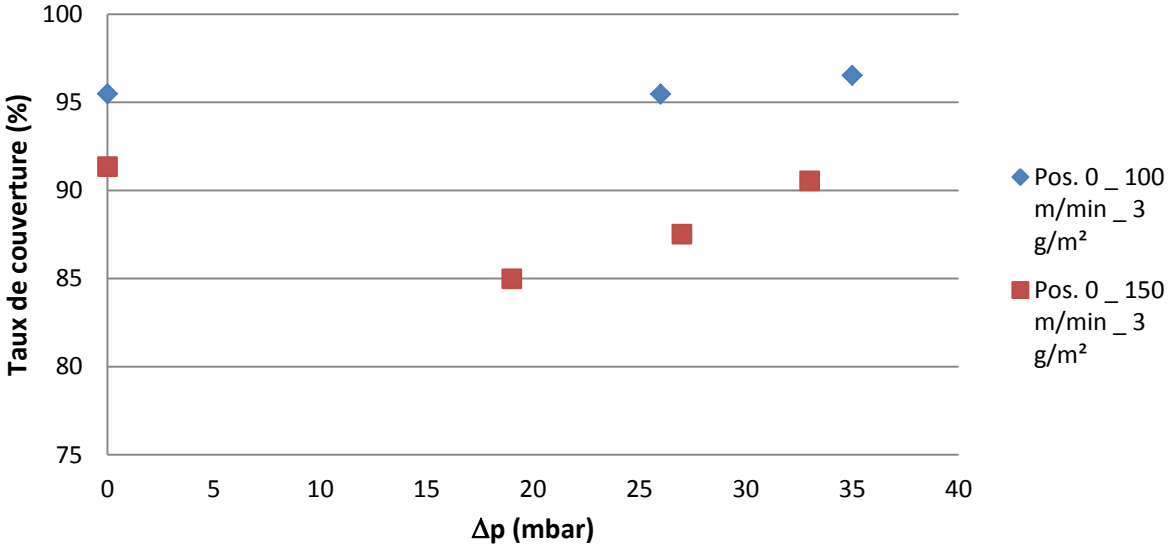


Figure III.40 - Evolution du taux de couverture en fonction du différentiel de pression pour un grammage de 3 g/m²

III.4.2.3 Influence de la distance d'étirage L

On considère le dénivelé de référence et trois combinaisons de grammage et vitesse d'étirage ($5\ g/m^2$ et $U_L = 90\ m/min$ - $3\ g/m^2$ et $U_L = 100\ m/min$ - $3\ g/m^2$ et $U_L = 150\ m/min$). Pour chacune de ces combinaisons, on compare l'évolution du taux de couverture en fonction du différentiel de pression pour deux distances d'étirage différentes : $L = 0.6\ mm$ et $L = 1.8\ mm$.

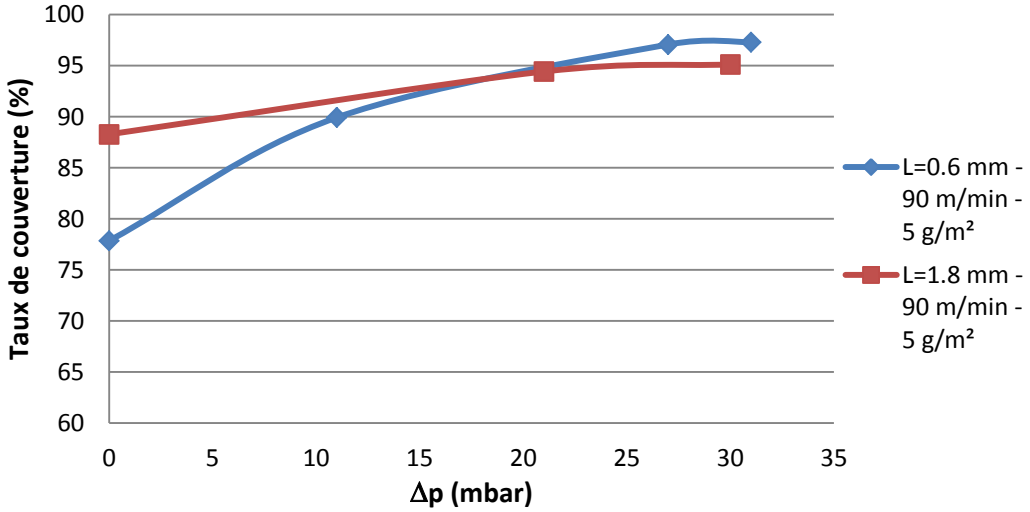


Figure III.41 - Evolution du taux de couverture en fonction du différentiel de pression et de la distance d'étirage pour un grammage de 5 g/m² et une vitesse d'étirage de 90 m/min

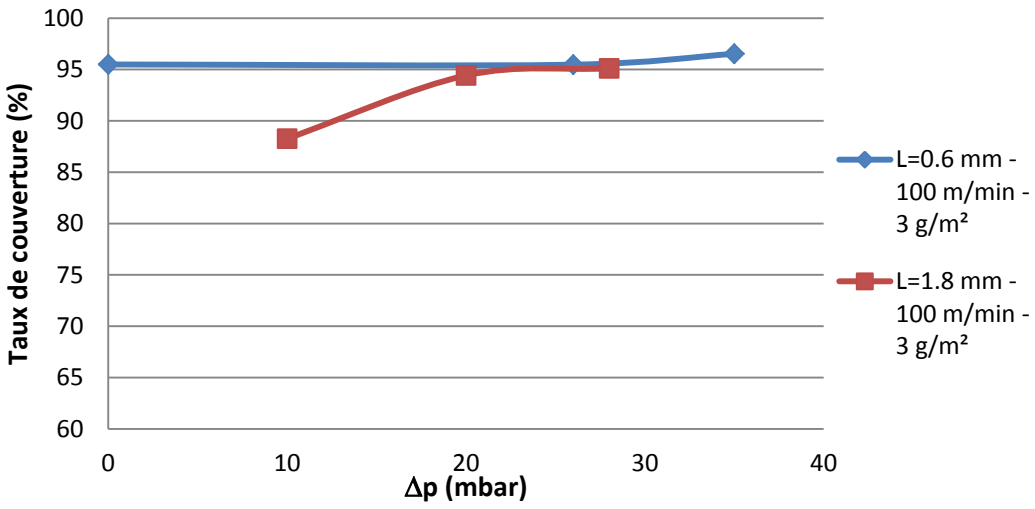


Figure III.42 - Evolution du taux de couverture en fonction du différentiel de pression pour un grammage de 3 g/m² et une vitesse d'étirage de 100 m/min

Les figures III.41, III.42 et III.43 montrent que, d"une manière générale, en considérant des différentiels de pression non nuls, le taux de couverture devient légèrement plus élevé en réduisant la distance d"étirage. De plus, on observe dans les figures III.41 et III.42, un grand écart entre les taux de couvertures pour les faibles différentiels de pression, mais cet écart diminue en augmentant Δp. Cela peut être expliqué par le fait que le défaut dominant en termes de surface est le défaut de bulles d"air (défaut surfacique). En augmentant Δp, les bulles d"air commencent à disparaître en laissant la place aux petits canaux qui ont une taille beaucoup moins importante.

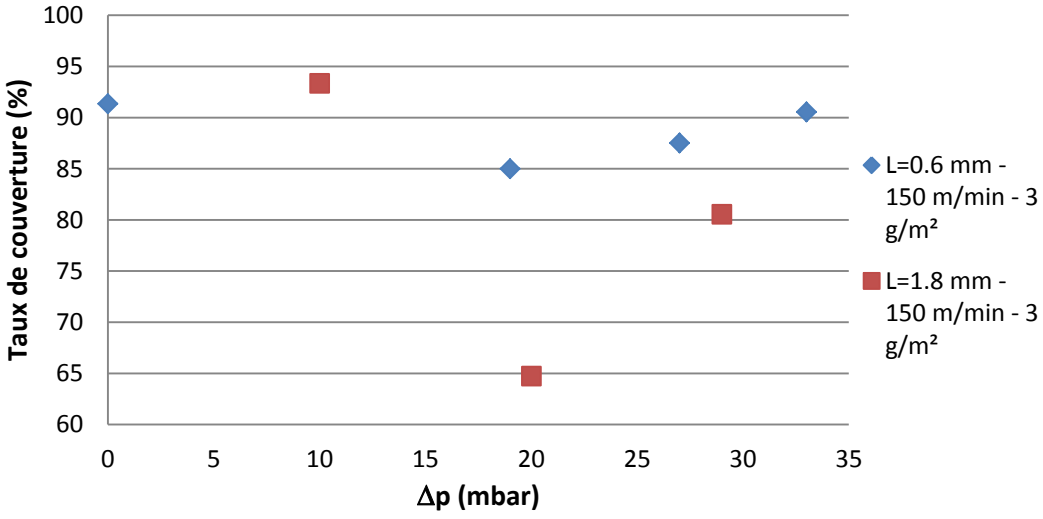


Figure III.43 - Evolution du taux de couverture en fonction du différentiel de pression pour un grammage de 3 g/m² et une vitesse d'étirage de 150 m/min

A la figure III.43, pour une vitesse d"étirage élevée, on observe que l"on obtient les meilleurs taux de couvertures pour les plus faibles valeurs de Δp ce qui est un peu curieux surtout que la vitesse est considérée comme élevée.

III.4.2.4 Influence du dénivelé de la filière

On considère une distance d"étirage fixe $L = 0.6\,mm$ et trois combinaisons de grammage et vitesse d"étirage ($5\,g/m^2$ et $U_L = 90\,m/min$ - $3\,g/m^2$ et $U_L = 100\,m/min$ - $3\,g/m^2$ et $U_L = 150\,m/min$). Pour chacune de ces combinaisons, on compare l"évolution du taux de couverture en fonction du différentiel de pression pour les trois dénivelés de la filière « 0 », « + » et « - ».

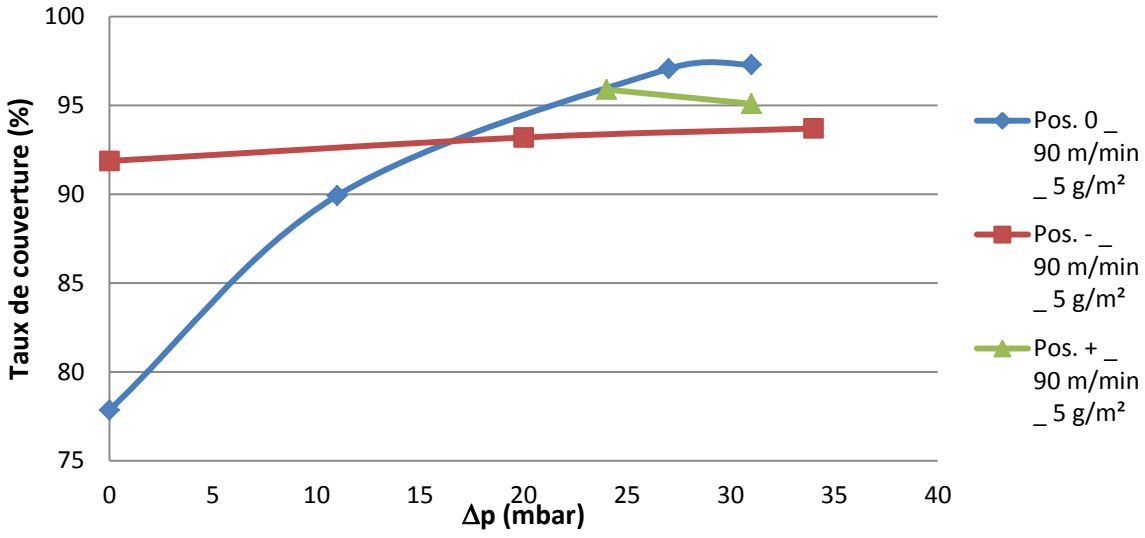


Figure III.44 - Evolution du taux de couverture en fonction du différentiel de pression pour un grammage de 5 g/m² et une vitesse d'étirage de 90 m/min

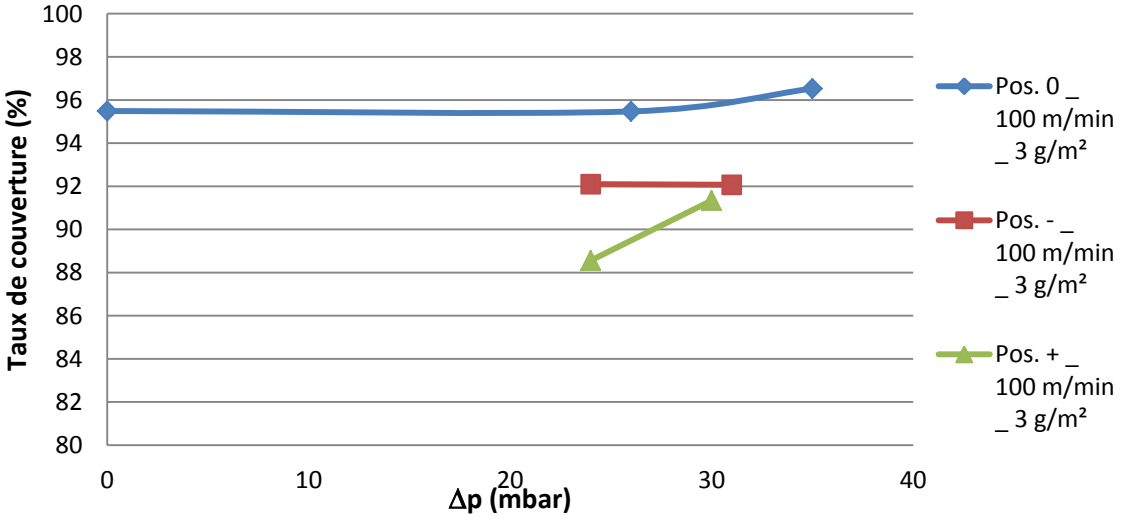


Figure III.45- Evolution du taux de couverture en fonction du différentiel de pression pour un grammage de 3 g/m² et une vitesse d'étirage de 100 m/min

Les figures III.44, III.45 et III.46 montrent que les meilleurs taux de couverture sont obtenus avec la position de référence de la hauteur de filière et un différentiel de pression $\Delta p \geq 20$ mbar. Par contre, en comparant les deux autres hauteurs de filière « + » et « - », on note que la position « - » donne un meilleur taux de couverture que la position « + » pour une vitesse d"étirage de 100 m/min et un grammage de 3 g/m², et inversement pour une vitesse d"étirage

de 90 m/min et un grammage de 5 g/m². Ainsi, l'ordre de ces deux positions en termes de taux de couverture dépendrait des autres paramètres du procédé et notamment la vitesse d'étirage et le grammage.

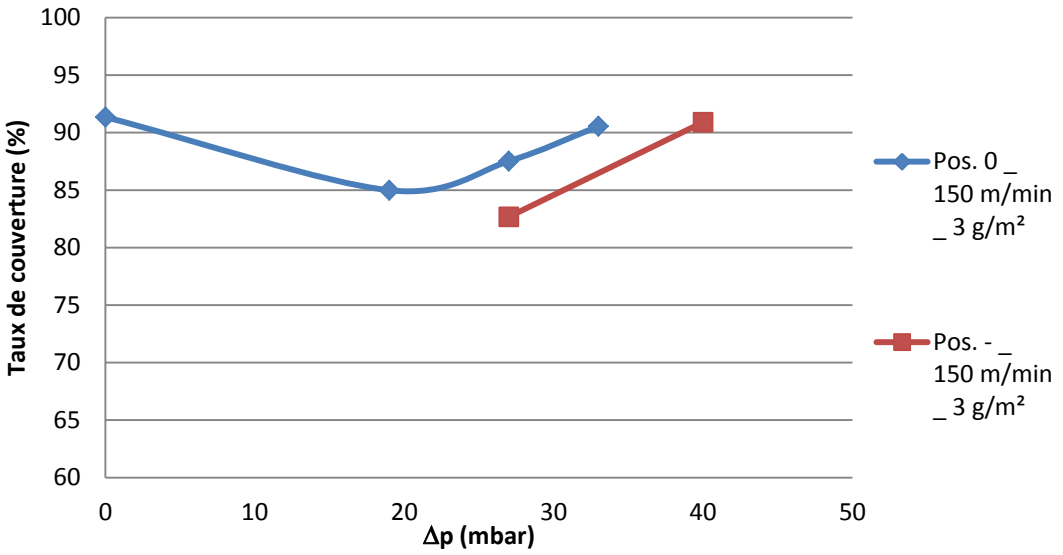


Figure III.46 - Evolution du taux de couverture en fonction du différentiel de pression pour un grammage de 3 g/m² et une vitesse d'étirage de 150 m/min et deux hauteurs de filière

III.5 Conclusion

Nous avons présentés deux défauts rencontrés avec le procédé « Revoluflex » : le défaut en « veines de chêne » et le défaut de couverture.

Nous avons montré que le défaut en « veines de chêne » est caractérisé par des surépaisseurs périodiques dans la couche de colle du complexe et qu'il s'apparente à une instabilité dynamique appelée *« Draw Resonance »*. L'évolution du défaut en « veines de chêne » en fonction des paramètres du procédé a été étudiée. Nous avons montré que les paramètres qui ont le plus d'influence sur ce défaut sont la dépression Δp et le débit de colle Q. L'application d'une dépression stabilise le procédé dans tous les cas. En l'absence de dépression, on observe l'apparition du défaut dès que l'on dépasse un débit critique qui dépend de l'entrefer de la filière, du dénivelé de la filière par rapport au film primaire et de la distance d'étirage. A débit donné, il est possible dans certaines situations d'éliminer le défaut en augmentant le taux d'étirage ce qui est en contradiction avec les expériences classiques effectuées en *Cast film*. On pense que cet écart s'explique par la courte distance d'étirage par rapport au procédé de *Cast film*. Nous avons montré également que la température de colle et le grammage n'ont pas d'influence marquée sur le défaut. L'étude de l'effet du dénivelé de la filière sur le défaut a montré qu'il existe une position optimale entre deux positions extrêmes. La modification de ce paramètre peut provoquer d'autres types d'instabilités.

En résumé, il apparait que le réglage de la filière à la position de référence en hauteur (position « 0 »), l"utilisation d"une distance d"étirage courte et l"application d"une faible dépression permettent d"éliminer le défaut en « veines de chêne ».

En ce qui concerne le défaut de couverture, nous avons montré qu"il est caractérisé par des déchirures partielles dans la couche de colle situées du côté du film primaire. Un protocole de mesure du taux de couverture de la surface d"un film complexe a été développé afin de quantifier l"occurrence du défaut de couverture en fonction des paramètres du procédé. Ce protocole a permis de mesurer des taux de couverture d"une série d"échantillons obtenus avec différentes combinaisons de paramètres de procédé. Ces mesures ont montré que le défaut de couverture considéré est la superposition de deux défauts dont l"origine n"est pas forcément la même. En effet, les défauts surfaciques semblent plutôt liés à une admission de bulles d"air entre le film de colle et le film primaire alors que les petits canaux seraient le résultat de micro-ruptures initiées dans le film de colle extrudé. Il est difficile de quantifier séparément ces deux défauts. De ce fait, la correction de ces défauts n"est pas univoque : pour supprimer les défauts surfaciques, il faut appliquer une dépression pour éliminer l"adjonction d"air entre le film primaire et le film de colle. Le fait que les défauts de type « canaux » soient également systématiquement du côté du film primaire est plus surprenant. Une spéculation qui sera évoquée au chapitre VII est de relier le développement de ces canaux aux singularités de contraintes existant en sortie de filière : l"application d"une dépression exacerbe les singularités de contraintes à la partie inférieure du film de colle alors qu"elle les atténue à sa partie supérieure.

Le procédé est donc confronté à l"influence contradictoire de certains paramètres : l"application d"une dépression permet d"éliminer le défaut en « veines de chêne » et les défauts surfaciques mais exacerbe les micro-ruptures. Il y a donc un terrain d"exercice pour l"optimisation du procédé.

Ces expériences très complètes peuvent être confrontées aux modèles que nous développons.

BIBLIOGRAPHIE

[Agassant, 2006] J.F. Agassant, R. Bouamra, C. Peiti, J.M. Haudin, "Cast film extrusion geometrical defects and stability," *Proceedings of the Polymer Processing Society Meeting*, Yamagata (Japan), 2006.

[Agassant, 2014] J.-F. Agassant, P. Avenas, J.-P. Sergent, B. Vergnes, and M. Vincent, *Mise en forme des polymères*. Cachan: Lavoisier, 4 ed., 2014.

[Barq, 1990] P. Barq, J.M. Haudin, J.F. Agassant, H. Roth, P. Bourgin, Instability phenomena in film casting process : Experimental and numerical approaches *Intern. Polym. Proc.*, vol. 5, pp. 264–271, 1990.

[Bourrigaud, 2006] S. Bourrigaud, G. Marin, V. Dabas, C. Dupuy, D. Silagy, "The Draw ratio-Deborah number diagram: A useful tool for coating applications," *Polym. Eng. Sci.*, vol. 46, pp. 372–380, 2006.

[Chang, 1979] J.C. Chang, M.M. Denn, "An Experimental Study of Isothermal Spinning of Newtonian and Viscoelastic Liquid," *J. Non-Newtonian Fluid Mech*., vol. 5, pp. 369385, 1979.

[Demay, 1985] Y. Demay, J.F. Agassant, "Experimental Study of the Draw Resonance in Fiber Spinning," *J. Non-Newtonian Fluid Mech.*, vol. 18, pp. 187–198, 1985.

[Demay, 2014] Y. Demay and J.-F. Agassant, "An overview of molten polymer drawing instabilities," *Int. Polym. Proc.*, vol. 29, pp. 128–139, 2014.

[Ghiljels, 1980] A. Ghiljels, J.J.S.M. Ente, "Draw Resonance Studies on Polypropylene Melts," *Proceedings of the International Conference on Rheology*, Naples (Italy), 1980.

[Gupta, 1981] R.K. Gupta, P.D. Drechsel, "Draw Resonance in the Non-isothermal Spinning of Polypropylene," *2nd World Congress of Chemical Engineering*, Montréal (Canada), 1981.

[Shin, 2007] D.M. Shin, J.S. Lee, J.M. Kim, H.W. Jung, J.C. Hyun, "Transient and steady-state solutions of 2D viscoelastic non-isothermal simulation model of film casting process via finite element method," *J. Rheol.*, vol. 5, pp. 393–407, 2007.

Chapitre IV : Modèles membrane 1D

Dans ce chapitre, deux modèles simples de type membrane tenant compte du différentiel de pression sont développés pour modéliser le procédé « Revoluflex ». Le premier modèle fait l"hypothèse d"un comportement newtonien tandis que le deuxième modèle fait l"hypothèse d"un comportement viscoélastique de type Maxwell surconvecté. Ces modèles serviront pour étudier le régime stationnaire du procédé ainsi que sa stabilité en fonction des paramètres du procédé.

Nous commençons par présenter un état de l"art des différents modèles membrane qu"on trouve dans la littérature du procédé d"extrusion de film à plat ou *Cast film*.

IV.1 Bibliographie :

On trouve dans la littérature du procédé d"extrusion de film à plat plusieurs modèles permettant d"expliquer une partie des phénomènes physiques rencontrés avec ce genre de procédés [Demay, 2014]. Ces phénomènes sont principalement le rétrécissement latéral du film appelé « *necking* », la diminution inhomogène de l"épaisseur du film appelée défaut en « os de chien » (bourrelet latéral), l"apparition d"instabilités d"étirage et la casse du film. Dans la littérature, plusieurs approches cinématiques ont été utilisées pour modéliser le procédé *Cast film* et comprendre ses différents défauts et instabilités.

Le modèle le plus simple est le modèle membrane 1D à largeur constante [Agassant, 2014]. Dans ce modèle, la largeur du film extrudé est supposée constante, le comportement du polymère est supposé newtonien, l"hypothèse du film mince est considérée et les transferts thermiques sont négligés. L"axe x étant orienté dans la direction d"étirage, on note $U(t,x)$ la vitesse moyenne de l"écoulement dans l"épaisseur du film et $e(t,x)$ son épaisseur, où t est la variable temps. Ce modèle possède une solution stationnaire analytique qui s"écrit :

$$\begin{cases} \bar{U}(x) = \overline{U_0}(Dr)^{\frac{x}{L}} \\ \bar{e}(x) = e_0(Dr)^{-\frac{x}{L}} \end{cases}$$

avec $\overline{U_0}$ et e_0 la vitesse moyenne et l"épaisseur du film en sortie de filière, L la distance d"étirage et Dr le taux d"étirage. La stabilité de cette solution stationnaire est étudiée en utilisant la méthode de stabilité linéaire. Cette méthode consiste à étudier la réponse du système d"équations à une perturbation infinitésimale de la solution stationnaire. Il s"agit de rechercher des solutions du problème sous la forme :

$$X(t,x) = \bar{X}(x) + e^{\Lambda t}\hat{X}(x)$$

La fonction $\bar{X}(x)$ représente la solution stationnaire et la fonction $\hat{X}(x)$ représente la fonction propre [Silagy, 1996]. Cette méthode nous amène à résoudre un problème aux valeurs propres. La condition de stabilité est donnée par $Re(\Lambda) < 0$ avec Λ la valeur propre ayant la plus grande partie réelle (on obtient en fait une paire de valeurs propres complexes conjuguées). Cette méthode permet de calculer un taux d"étirage critique très connu dans la littérature $Dr_c = 20.2$ [D"Halewyn, 1990]. Silagy et *al.* ont étudié la stabilité du procédé *Cast film* avec des modèles membrane isothermes 2D et 1D à largeur variable dans les cas

newtonien et viscoélastique. Ils ont montré un effet stabilisant du facteur de forme longitudinal $I = \frac{L}{W_0}$ (W_0 étant la largeur initiale du film). Notons que ce facteur de forme est différent du facteur de forme considéré dans notre étude.

D"autres lois de comportement viscoélastiques ont été testées avec le modèle membrane 1D à largeur constante ([Denn, 1975], [Antukar, 1988]). Silagy et al. ont également mis en évidence l"existence d"une « zone inatteignable » avec un modèle membrane 1D à largeur variable dans le cas d"une loi de Maxwell et d"une loi de Phan-Thien-Tanner. En effet, pour chaque valeur du nombre de Deborah $De = \frac{\lambda \overline{U_0}}{L}$ (λ est le temps de relaxation du polymère), il existe un taux d"étirage critique à partir duquel il n"est plus possible de calculer une solution stationnaire ou la force d"étirage obtenue est irréaliste (figure IV.1) [Silagy, 1998]. Notons que le nombre de Deborah est le rapport entre le temps de relaxation du polymère et un temps caractéristique du procédé.

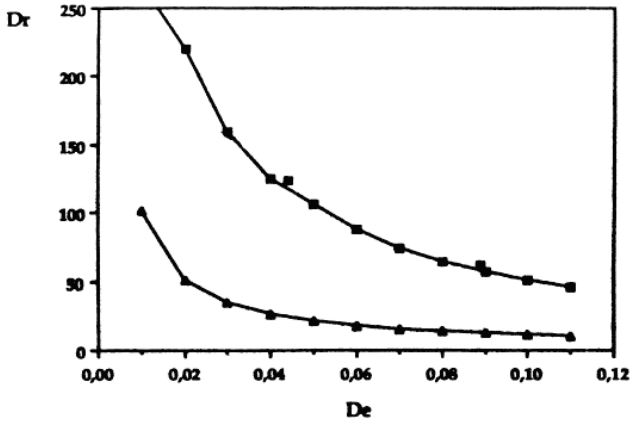


Figure IV.1 - Courbe limite de la "zone inatteignable" : (Δ) Modèle de Maxwell ; (■) Modèle de Phan-Thien-Tanner ([Silagy, 1998])

Des études de stabilité par simulation directe ou par la méthode de stabilité linéaire ont permis de mettre en évidence un effet stabilisant de la viscoélasticité à partir d"un nombre de Deborah critique [Demay, 2014]. Silagy et al. ont montré que l"augmentation du facteur de forme longitudinal $\boldsymbol{I = \frac{L}{W_0}}$ permet de réduire ce nombre de Deborah critique et donc d"améliorer la stabilité du procédé (figure IV.2) [Silagy, 1998].

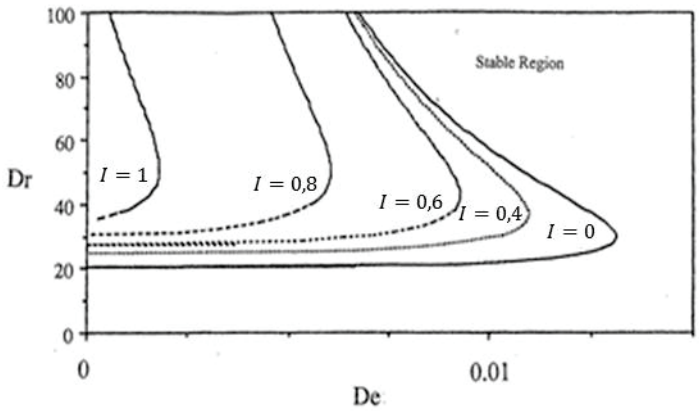


Figure IV.2 - Influence du facteur de forme longitudinal sur la stabilité du procédé *Cast film*

Les modèles membrane 1D à largeur variable et membrane 2D dans le plan du film extrudé ont été développés principalement pour étudier le « *necking* » et le défaut en « os de chien » ([Dobroth, 1986], [D"Halewyn, 1990], [Debbaut., 1995], [Silagy, 1996], [Sakaki, 1996], [Silagy et *al.*, 1998], [Beaulne et Mitsoulis, 1999], [Kim, 2005], [Sollogoub, 2006] , [Shin, 2007]). Ces modèles n"ont pas un grand intérêt dans le cadre de notre étude. En effet, vu la courte distance d"étirage, on n"observe expérimentalement sur le procédé « Revoluflex » ni le « *necking* » ni le défaut en « os de chien ».

Enfin, on trouve dans la littérature des modèles développés pour le procédé de soufflage de gaine qui constituent une bonne référence pour la modélisation de l"action de la pompe à vide (c"est à dire du différentiel de pression) sur le film extrudé dans le procédé « Revoluflex » [André, 1999]. L"équation d"équilibre de la contrainte avec la pression en fin d"étirage s"écrit :

$$\sigma_n = \Delta p \frac{R}{e}$$

σ_n, Δp, R et e étant respectivement la contrainte dans la direction normale, la surpression, le rayon et l"épaisseur de la bulle. Une équation équivalente est à développer dans le cas du procédé « Revoluflex ».

IV.2 Présentation du modèle membrane 1D :

IV.2.1 Les paramètres du modèle :

Un film de colle est extrudé en filière plate d"entrefer $2h_0$ puis étiré sur une distance d"étirage L entre la filière d"extrusion et le film primaire. Ce film de colle est considéré comme une membrane subissant d"une part un étirage entre la filière d"extrusion et le film primaire et d"autre part un différentiel de pression Δp entre ses deux faces (voir figure IV.3).

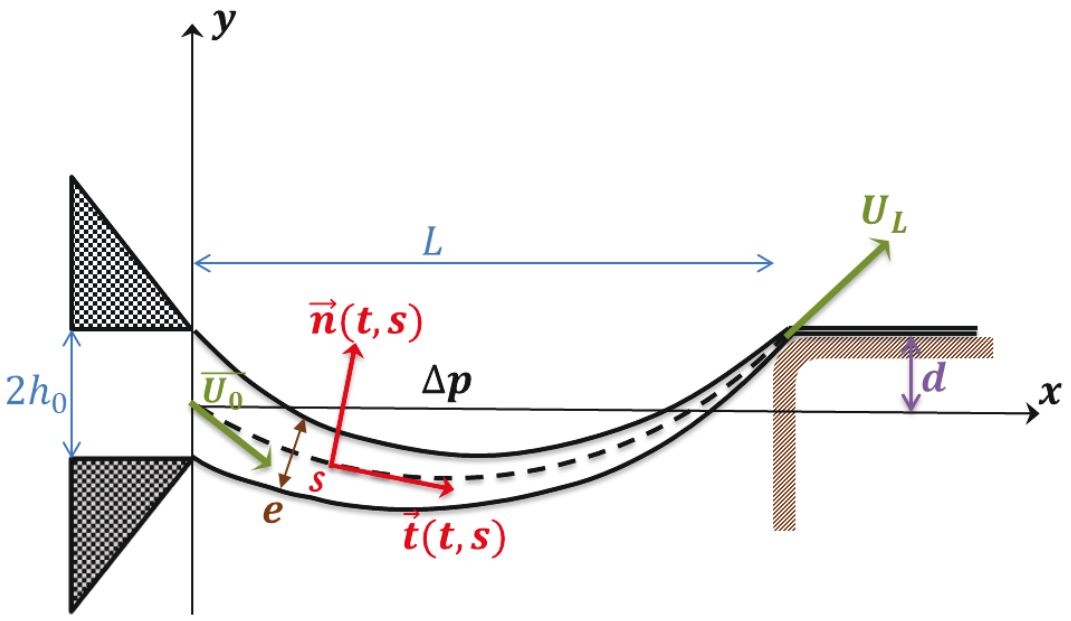


Figure IV.3 - Schéma du modèle utilisé pour le procédé Revoluflex

Si l"étirage permet de réduire l"épaisseur du film extrudé, le différentiel de pression, quant à lui, induit la courbure du film extrudé. Le taux d"étirage est défini par $Dr = \frac{U_L}{\overline{U_0}}$ avec U_L la vitesse d"étirage (vitesse du film support) et $\overline{U_0}$ la vitesse d"extrusion (vitesse moyenne d"écoulement de la colle en sortie de filière en négligeant le gonflement en sortie de filière).

Les différents paramètres du procédé sont notés comme suit :

- Entrefer : $2h_0$
- Distance d"étirage : L
- Vitesse moyenne d"extrusion : $\overline{U_0}$
- Vitesse d"étirage : U_L
- Dénivelé de la filière par rapport à la position d"étirage : d
- Largeur du film : W
- Force d"étirage : F
- Viscosité de la colle : η_p
- Différence de pression entre les deux faces du film de colle : Δp

IV.2.2 Les hypothèses du modèle

Les hypothèses considérées pour le développement de ce modèle sont données par :

- Hypothèse du film mince : $2h_0 << L$;
- Incompressibilité ;
- La largeur du film reste constante (pas de « *necking* ») ;
- Les forces de pesanteur et d"inertie sont négligées ;
- Les transferts thermiques sont négligés (voir annexe I).

Il est à préciser que, dans la réalité, on a $2h_0 \sim L$. Par conséquent, l"hypothèse du film mince n"est pas licite. Ce modèle a été donc développé en raison de la simplicité d"usage des modèles 1D. L"influence de cette hypothèse sera discutée après l"étude du modèle 2D dans le plan (x,y).

IV.2.3 Hypothèse cinématique :

On considère un repère $(\vec{e}_x, \vec{e}_y)$ lié à la filière d"extrusion (voir figure IV.3). Vu que le film extrudé est déformé sous l"effet du différentiel de pression, sa courbe moyenne est décrite dans ce repère par la courbe d"équation $y = Y(t,x)$. La forme de la membrane varie en fonction du temps et donc l"équation de sa courbe moyenne dépend aussi du temps. On désigne par s une abscisse curviligne sur cette courbe, $\vec{t}(t,s)$ le vecteur tangent à cette courbe en s, $\vec{n}(t,s)$ le vecteur normal à cette courbe en s et on définit $\theta(t,s)$ par la mesure de l"angle $(\vec{e}_x, \vec{t}(t,s))$.

Ainsi, le changement de repère se fait à travers la transformation suivante :

$$\begin{cases} \vec{t}(t,s) = \cos\,\theta(t,s)\vec{e}_x + sin\,\theta(t,s)\vec{e}_y \\ \vec{n}(t,s) = -sin\,\theta(t,s)\vec{e}_x + \cos\,\theta(t,s)\vec{e}_y \end{cases}$$

Par conséquent :

$$\frac{\partial \vec{t}}{\partial s} = \frac{\partial \theta}{\partial s}\vec{n} \quad avec \quad \frac{\partial \theta}{\partial s} = \frac{1}{\mathcal{R}(t,s)}$$

$\mathcal{R}(t,s)$ étant le rayon de courbure à l‟abscisse curviligne s de la courbe $y = Y(t,x)$ dans le repère $(\vec{e}_x, \vec{e}_y)$.

On considère une vitesse moyenne $\vec{U}(s)$ tangente à la courbe moyenne de la membrane au point d‟abscisse curviligne s :

$$\vec{U}(t,s) = U(t,s)\,\vec{t}(t,s)$$

S‟agissant d‟un écoulement purement élongationnel, les termes de cisaillement sont négligés devant les termes d‟élongation et donc le tenseur des vitesses de déformation s‟écrit dans le repère $(\vec{t}(s), \vec{n}(s))$:

$$\dot{\varepsilon} = \begin{bmatrix} \frac{dU}{ds} & 0 \\ 0 & -\frac{dU}{ds} \end{bmatrix} \qquad \text{(IV.1)}$$

IV.3 Modèle membrane Newtonien :

IV.3.1 Les équations du problème :

IV.3.1.1 Conservation de la matière :

L‟équation de conservation de la matière a été déterminée en utilisant une technique de développement en petit paramètre. Cette technique permet d‟obtenir un problème 1D en partant d‟un problème 2D. On obtient l‟équation suivante :

$$\frac{\partial}{\partial t}\left(\frac{e}{\cos\theta}\right) + \frac{\partial}{\partial x}(eU) = 0 \qquad \text{(IV.2)}$$

Cette équation est similaire à celle établie par Yoon et Park dans le cas du procédé de soufflage de gaine [Yoon, 1999]. En effet, il existe une similitude entre le procédé « Revoluflex » et le procédé de soufflage de gaine puisque dans les deux cas le film de polymère extrudé est soumis à une différence de pression entre ses deux parois.

IV.3.1.2 Comportement newtonien :

En considérant un comportement newtonien du polymère, le tenseur de contrainte dans le repère $(\vec{t}(s), \vec{n}(s))$ s‟écrit :

$$\sigma = \begin{bmatrix} 2\eta_p \frac{dU}{ds} - p & 0 \\ 0 & -2\eta_p \frac{dU}{ds} - p \end{bmatrix} \qquad \text{(IV.3)}$$

D‟après l‟hypothèse de film mince ($\sigma_n = 0$), on obtient :

$$p = -2\eta_p \frac{dU}{ds} \qquad \text{(IV.4)}$$

Et donc
$$\sigma_t = 4\eta_p \frac{dU}{ds} \qquad \text{(IV.5)}$$

En utilisant la relation géométrique $dx = \cos(\theta)ds$, on obtient localement l"équation de Trouton :

$$\sigma_t = 4\eta_p \cos(\theta) \frac{\partial U}{\partial x} \qquad \text{(IV.6)}$$

IV.3.1.3 Equations d'équilibre :

En écrivant l"équilibre des efforts intérieurs et extérieurs sur un élément de la membrane de longueur ds, on obtient :

$$W\, e(s+ds)\, \sigma_t(s+ds)\, \vec{t}(s+ds) - W\, e(s)\, \sigma_t(s)\, \vec{t}(s) - W\, ds\, \Delta p\, \vec{n} = \vec{0} \qquad \text{(IV.7)}$$

Donc

$$ds\, \frac{d}{ds}\left(W\, e\, \sigma_t\, \vec{t}\right) - W\, ds\, \Delta p\, \vec{n} = \vec{0} \qquad \text{(IV.8)}$$

Par conséquent,

$$\frac{d}{ds}(We\sigma_t)\, \vec{t} + \frac{We\sigma_t}{\mathcal{R}}\, \vec{n} - W\, \Delta p\, \vec{n} = \vec{0} \qquad \text{(IV.9)}$$

C"est à dire

$$\begin{cases} \dfrac{d}{ds}(We\sigma_t) = 0 & \text{(IV.10)} \\ \dfrac{e\sigma_t}{\mathcal{R}} = \Delta p & \text{(IV.11)} \end{cases}$$

On obtient les équations d"équilibre suivantes :

$$\frac{\partial F}{\partial x} = 0 \qquad avec \quad F = We\sigma_t \qquad \text{(IV.12)}$$

et
$$\frac{e\sigma_t}{\mathcal{R}} = \Delta p \quad avec \quad \frac{1}{\mathcal{R}} = \frac{\dfrac{\partial^2 Y}{\partial x^2}}{\left(\sqrt{1+\left(\dfrac{\partial Y}{\partial x}\right)^2}\right)^3} \qquad \text{(IV.13)}$$

Il est à noter que, d"après l"équation (IV.12), la force d"étirage $F = We\sigma_t$ ainsi que la largeur du film de polymère W sont constantes et donc $e\sigma_t$ est constant tout le long de l"abscisse curviligne. D"après l"équation (IV.13) et sachant que le différentiel de pression Δp est constant, on peut conclure que le rayon de courbure $\mathcal{R}$ est constant le long de l"abscisse curviligne ce qui signifie que la courbe moyenne de la membrane $Y(t,x)$ est un arc de cercle.

IV.3.1.4 Equation géométrique

Géométriquement, l"angle $\theta(t,x)$ est exprimé en fonction de la courbe moyenne de la membrane $Y(t,x)$ comme suit :

$$\tan\theta = \frac{\partial Y}{\partial x} \qquad \text{(IV.14)}$$

IV.3.1.5 Conditions aux limites

En utilisant un modèle 1D, on est amené à moyenner la vitesse d"écoulement du liquide par rapport à l"épaisseur de l"écoulement. Ce choix rend la définition des conditions aux limites en $x = 0$ délicate. En effet, on obtient une vitesse d"écoulement qui est orientée selon l"axe $\vec{e}_x$ juste avant la sortie de la filière et qui est tangente à la courbe moyenne de la membrane (faisant un angle θ avec l"axe $\vec{e}_x$) à la sortie de la filière. Il s"agit donc d"une discontinuité dans la direction de la vitesse en $x = 0$ qui est due à la transition d"un écoulement de Poiseuille plan dans la filière à un écoulement élongationnel uniforme dans l"air. L"effet de cette transition sera négligé avec ce modèle 1D mais il sera étudié par la suite avec le modèle 2D.

En ce qui concerne les conditions aux limites en $x = 0$, comme on doit imposer la vitesse et l"épaisseur du liquide en sortie de filière, on est amené à choisir entre deux cas extrêmes (figure IV.4).

Dans le premier cas, on considère que la vitesse initiale $U(0)$ est tangente à la courbe moyenne de la membrane en $x = 0$ et qu"elle est égale à la vitesse moyenne d"extrusion en module. Cette hypothèse provoque une discontinuité de la direction de la vitesse et suppose que la courbure change uniquement l"orientation du vecteur vitesse en sortie de filière. L"épaisseur initiale $e(0)$ est choisie de manière à conserver le débit. On obtient ainsi :

$$U(0) = \overline{U_0} \quad et \quad e(0) = 2h_0 \qquad \text{(IV.15.a)}$$

Cette première hypothèse est notée « CL-1 ».

Dans le deuxième cas, on considère que la vitesse moyenne du liquide $\overline{U_0}$ n"est que la projection de la vitesse initiale $U(0)$ (tangente à la courbe moyenne de la membrane en $x = 0$) sur l"axe $\vec{e}_x$. Ainsi la courbure due à la différence de pression entre les deux parois de la membrane permet l"accélération de l"écoulement. Par analogie, et afin de respecter l"équation de conservation de la matière (IV.2), l"épaisseur initiale du film extrudé $e(0)$ est considérée comme la projection de l"épaisseur de l"ouverture de la filière e_0 sur la normale à la courbe moyenne de la membrane en $x = 0$. On obtient les conditions aux limites suivantes :

$$U(0) = \frac{\overline{U_0}}{\cos\theta} \quad et \quad e(0) = 2h_0\cos\theta \qquad \text{(IV.15.b)}$$

Cette deuxième hypothèse est notée « CL-2 ». On comparera dans la suite les résultats obtenus par ces deux hypothèses.

En $x = L$, le choix des conditions aux limites relatives à la vitesse est plus simple. Il suffit d"imposer une vitesse en aval du film extrudé égale à celle du film primaire :

$$U(L) = U_L \qquad \text{(IV.15.c)}$$

On impose également en $x = L$ le dénivelé que fait la position d"étirage par rapport à la filière :

$$Y(L) = d \tag{IV.15.d}$$

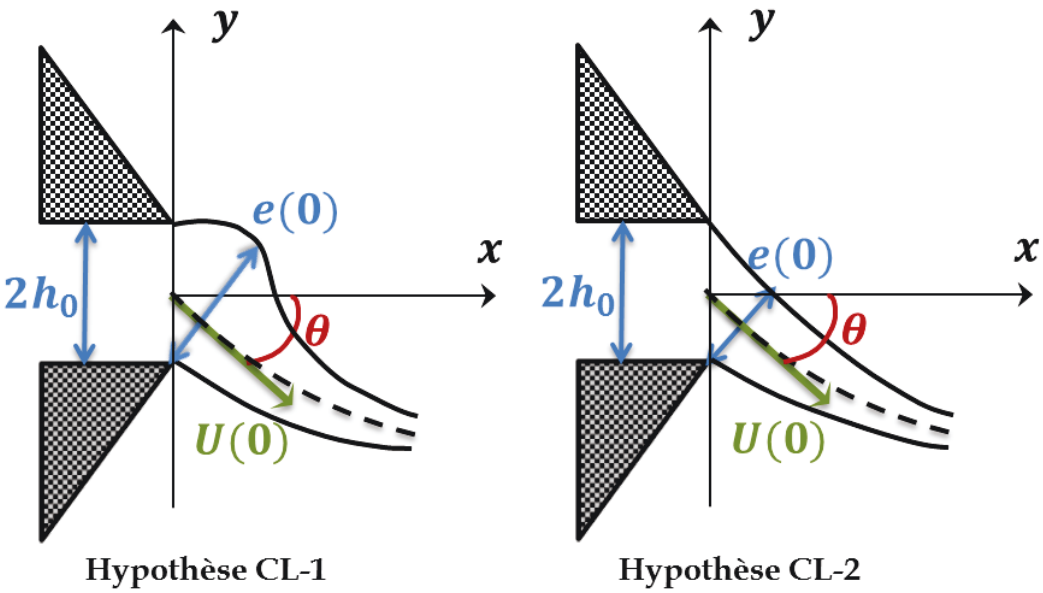


Figure IV.4 - Hypothèses considérées dans le choix des conditions aux limites en x=0

IV.3.2 Les équations adimensionnelles :

Afin d"étudier notre problème en fonction de nombres adimensionnels, toutes les équations sont réécrites en utilisant un changement de variable sans dimension. Pour cela, on définit les variables et fonctions adimensionnelles suivantes :

$$x = L\bar{x}\ ; t = \frac{L}{\overline{U_0}}\bar{t}\ ; U(t,x) = \overline{U_0}\bar{U}(\bar{t},\bar{x})\ ; Y(t,x) = L\bar{Y}(\bar{t},\bar{x});\ e(t,x) = 2h_0\bar{e}(\bar{t},\bar{x})\ ;$$

$$\sigma_t(t,x) = \frac{\eta_p\overline{U_0}}{L}\bar{\sigma}_t(\bar{t},\bar{x})\ ; F = \frac{2\eta_p\overline{U_0}Wh_0}{L}\bar{F};\ B = \frac{L^2\Delta p}{2\eta_p\overline{U_0}h_0}$$

On obtient le système d"équations suivant :

$$\begin{cases} \tan\theta = \dfrac{\partial\bar{Y}}{\partial\bar{x}} & \text{(IV.16.a)} \\ \dfrac{\partial}{\partial\bar{t}}\left(\dfrac{\bar{e}}{\cos\theta}\right) + \dfrac{\partial}{\partial\bar{x}}(\bar{e}\bar{U}) = 0 & \text{(IV.16.b)} \\ \bar{F} = \bar{e}\bar{\sigma}_t \quad avec \quad \dfrac{\partial\bar{F}}{\partial\bar{x}} = 0 & \text{(IV.16.c)} \\ \bar{\sigma}_t = 4\cos(\theta)\dfrac{\partial\bar{V}}{\partial\bar{x}} & \text{(IV.16.d)} \\ \bar{F}(\cos\theta)^3\dfrac{\partial^2\bar{Y}}{\partial\bar{x}^2} = B & \text{(IV.16.e)} \end{cases}$$

Les conditions aux limites sont données par :

- En $\bar{x} = 0$:

En considérant l"hypothèse CL-1, on obtient :

$$\bar{U}(0) = 1\,;\bar{e}(0) = 1;\ \bar{Y}(0) = 0 \qquad \text{(IV.16.f.a)}$$

En revanche, en considérant l"hypothèse CL-2, on obtient :

$$\bar{U}(0) = \frac{1}{\cos\big(\theta(0)\big)}\,;\bar{e}(0) = \cos\big(\theta(0)\big)\,;\ \bar{Y}(0) = 0 \qquad \text{(IV.16.f.b)}$$

- En $\bar{x} = 1$:

$$\bar{U}(1) = Dr\,;\ \bar{Y}(1) = \bar{d} \qquad \text{(IV.16.g)}$$

Il est à noter que les conditions opératoires du procédé correspondent à des nombres adimensionnels B compris entre 0 et 16 comme indiqué au chapitre VII.

Pour alléger l"écriture, les symboles $\bar{X}$ sont notés X dans la suite.

IV.3.3 Solution stationnaire :

IV.3.3.1 Equations du problème :

La solution stationnaire est obtenue en résolvant le système d"équations suivant :

$$\begin{cases} \tan\theta = \dfrac{dY}{dx} & \text{(IV.17.a)} \\ \dfrac{d}{dx}(eU) = 0 & \text{(IV.17.b)} \\ F = e\sigma_t \quad avec \quad \dfrac{dF}{dx} = 0 & \text{(IV.17.c)} \\ \sigma_t = 4\cos(\theta)\dfrac{dU}{dx} & \text{(IV.17.d)} \\ F(\cos\theta)^3\dfrac{d^2Y}{dx^2} = B & \text{(IV.17.e)} \end{cases}$$

Les conditions aux limites sont données dans les équations (IV.16.f.a) et (IV.16.g) (ou bien (IV.16.f.b) et (IV.16.g)).

IV.3.3.2 Résolution numérique :

En dérivant l"équation (IV.17.a) on obtient :

$$\frac{d\theta}{dx} = \cos(\theta)^2\frac{d^2Y}{dx^2} \qquad \text{(IV.18)}$$

La combinaison de cette équation avec l"équation (IV.17.e) donne

$$F\cos(\theta)\frac{d\theta}{dx} = B \qquad \text{(IV.19)}$$

Ce qui conduit à :

$$\frac{d}{dx}(\sin\theta) = \frac{B}{F}$$

C"est à dire :

$$\sin(\theta(x)) = \frac{B}{F}x + C_1$$

C_1 est une constante d"intégration à déterminer.

Grâce à des considérations géométriques, C_1 est solution de l"équation suivante :

$$\arcsin(C_1) + arcsin\left(\frac{B}{F} + C_1\right) = 2\ arctg(d) \qquad \text{(IV.20)}$$

La valeur de C_1 est déterminée par la méthode de Newton-Raphson.

En considérant l"équation (IV.17.b) ainsi que les conditions aux limites (IV.16.f.a) ou (IV.16.f.b), on obtient :

$$e(x)\ U(x) = 1 \qquad \text{(IV.21)}$$

Sachant que $-\frac{\pi}{2} \leq \theta(t,x) \leq \frac{\pi}{2}$ (car $Y(t,x)$ est au maximum un demi-cercle et que l"étirage se fait dans le sens de l"écoulement), on a $\cos(\theta(t,x)) \geq 0$ et par conséquent

$$\frac{1}{\cos(\theta)} = \frac{1}{\cos\left(arcsin\left(\frac{B}{F}x + C_1\right)\right)} = \frac{1}{\sqrt{1 - \left(\frac{B}{F}x + C_1\right)^2}} \qquad \text{(IV.22)}$$

Comme de plus F est constante, la combinaison des équations (IV.17.d), (IV.17.c) et (IV.21) donne l"équation différentielle de premier ordre suivante :

$$\frac{dU}{dx} = \frac{FU}{4\sqrt{1 - \left(\frac{B}{F}x + C_1\right)^2}} \qquad \text{(IV.23)}$$

- En considérant la condition initiale (IV.16.f.a), la solution de l"équation (IV.23) en fonction de la force d"étirage F est donnée par :

$$U(x) = exp\left(\frac{F^2}{4B}\left(\arcsin\left(\frac{B}{F}x + C_1\right) - \arcsin(C_1)\right)\right)$$

La force d"étirage est déterminée en résolvant numériquement l"équation donnée par la condition au bord (IV.16.g) :

$$\frac{F^2}{4B}\left(\arcsin\left(\frac{B}{F} + C_1\right) - \arcsin(C_1)\right) = log(Dr) \qquad \text{(IV.24)}$$

- Par contre, en considérant la condition initiale (16.f.b), la solution de l"équation (IV.23) en fonction de la force d"étirage F est donnée par :

$$U(x) = \frac{exp\left(\frac{F^2}{4B}\left(\arcsin\left(\frac{B}{F}x + C_1\right) - \arcsin(C_1)\right)\right)}{\sqrt{1 - C_1^2}} \qquad \text{(IV.25)}$$

De façon similaire, la force d"étirage est déterminée en résolvant numériquement l"équation donnée par la condition au bord (IV.16.g) :

$$\frac{F^2}{2B}\left(arctg(d) - \arcsin(C_1)\right) = log\left(Dr\sqrt{1 - C_1^2}\right) \qquad \text{(IV.26)}$$

Comme la constante C_1 dépend de la force d"étirage considérée, les équations (IV.24) et (IV.26) sont résolues par une méthode de tir sur F couplée à une méthode de Newton-Raphson où la constante C_1 est mise à jour à chaque itération selon la valeur de la force d"étirage.

Ayant déterminé $U(x)$ et F, il est possible de calculer toutes les autres inconnues du problème.

Il est à noter que la solution obtenue dépend uniquement de deux nombres adimensionnels qui sont le taux d"étirage Dr et le nombre adimensionnel B.

IV.3.3.3 Résultats

Plusieurs simulations utilisant les deux hypothèses sur les conditions initiales sont réalisées afin d"étudier l"influence des deux nombres adimensionnels Dr et B sur la solution stationnaire du problème.

IV.3.3.3.1 Mise en évidence d'une zone d'absence de solution stationnaire :

Une zone d"absence de solution stationnaire à de faibles taux d"étirage est mise en évidence pour des valeurs de B différentes de 0. En effet, pour une valeur du nombre B donnée, il est impossible de calculer une solution stationnaire pour le problème en dessous d"un taux d"étirage critique. Ce constat est expliqué par une compétition entre la force d"étirage qui tend le film et la dépression qui tire le film vers le bas. A mesure que le nombre adimensionnel B (corrélé avec l"importance de la dépression) augmente, on a besoin de dépasser un taux d"étirage critique pour obtenir une solution stationnaire. Ce taux d"étirage critique correspond bien à une force d"étirage critique permettant d"équilibrer la dépression qui tire le film vers le bas. Sans cet équilibre, il n"existe aucune solution stationnaire. Dans le cas de l"hypothèse CL-1 ($U(0) = \overline{U_0}$) et en considérant le cas $d = 0$, ce résultat peut être expliqué mathématiquement. En effet, dans ce cas particulier, on obtient $C_1 = -\frac{B}{2F}$ et donc en dérivant l"expression de $Ln(Dr)$ de l"équation (IV.24) par rapport à F, on obtient :

$$\frac{dlog(Dr)}{dF} = \frac{F}{B}\arcsin\left(\frac{B}{2F}\right) - \frac{1}{4\sqrt{1 - \left(\frac{B}{2F}\right)^2}} \qquad \text{(IV.27)}$$

En étudiant cette fonction, on trouve qu"elle change de signe en $\frac{B}{2F} \approx 0.919$, c"est à dire que la fonction $Ln(Dr)$ admet un minimum en $F \approx 0.544\,B$. On obtient donc une valeur approchée du taux d"étirage critique en fonction du nombre adimensionnel B :

$$Dr_c = e^{0.173\,B} \qquad \text{(IV.28)}$$

En considérant l"hypothèse CL-2 ($U(0) = \frac{\overline{U_0}}{\cos\theta}$), il n"est pas possible de faire un raisonnement similaire puisque l"équation (IV.26) est plus compliquée. Cependant, on montre

numériquement, de la même façon, que la fonction Dr atteint un minimum (taux d"étirage critique) en fonction de F pour un nombre B donné. On note aussi que ce taux d"étirage critique est croissant en fonction de B.

IV.3.3.3.2 Influence de l'hypothèse sur les conditions initiales sur la forme de la solution stationnaire

On considère un taux d"étirage $Dr = 25$, un nombre adimensionnel $B = 10$ et un dénivelé $d = 0$. On calcule dans cette situation la solution stationnaire pour les deux hypothèses sur les conditions initiales CL-1 et CL-2. La figure IV.5 montre la forme de la membrane obtenue avec chacune des hypothèses.

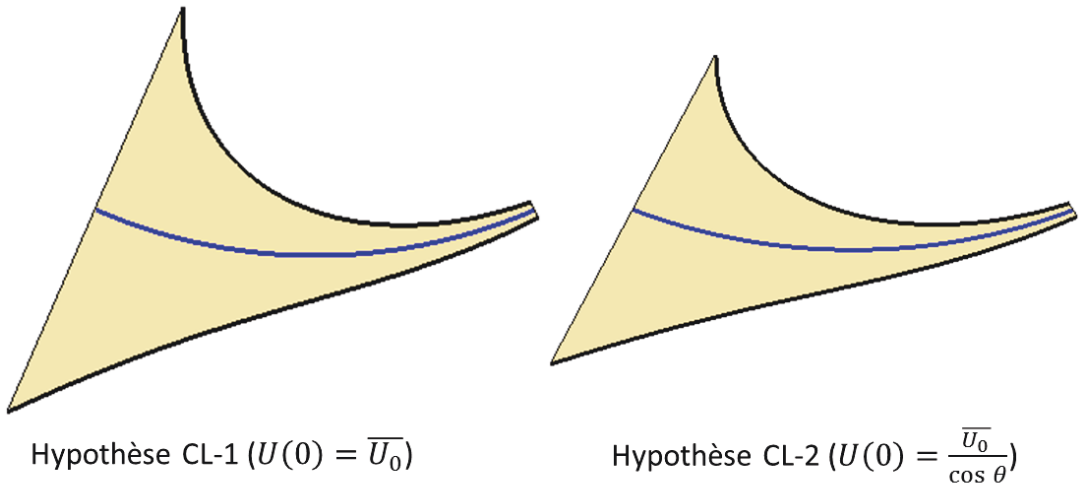


Figure IV.5 - Comparaison de la forme de la membrane stationnaire obtenue avec les deux hypothèses sur les conditions initiales pour $Dr = 25$ et $B = 10$

On observe que les deux membranes ont presque la même forme. On remarque que la force d"étirage est un peu plus faible dans le cas de l"hypothèse CL-2 ($U(0) = \frac{\overline{U_0}}{\cos\theta}$) ($F = 12.13$ contre 12.51 avec l"hypothèse CL-1 ($U(0) = \overline{U_0}$)) et cela se traduit par une courbure un peu plus prononcée (une déflection minimum sur la courbe moyenne de -0.107 contre -0.104).

IV.3.3.3.3 Influence du taux d'étirage sur la courbe moyenne de la membrane

On considère un nombre adimensionnel $B = 4$, un dénivelé $d = 0$ et plusieurs taux d"étirage Dr. On calcule la solution stationnaire pour chacun des taux d"étirage en utilisant l"hypothèse CL-2 ($U(0) = \frac{\overline{U_0}}{\cos\theta}$). La figure IV.6 montre l"évolution du rayon de courbure de la membrane en fonction du taux d"étirage. On voit très bien qu"en augmentant le taux d"étirage pour une valeur de B fixe, le rayon de courbure augmente. Ce constat est logique puisqu"en augmentant le taux d"étirage, la force d"étirage augmente et par conséquent la courbure diminue.

La figure IV.7 illustre ce qu"on vient de dire en montrant l"évolution de la courbe moyenne de la membrane en fonction du taux d"étirage. On observe bien que la courbure est plus importante pour les plus faibles taux d"étirage.

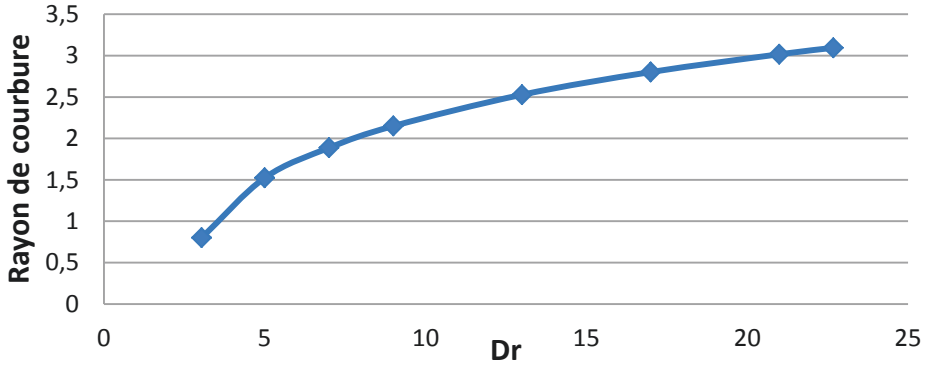


Figure IV.6 - Evolution du rayon de courbure en fonction de Dr pour B=4

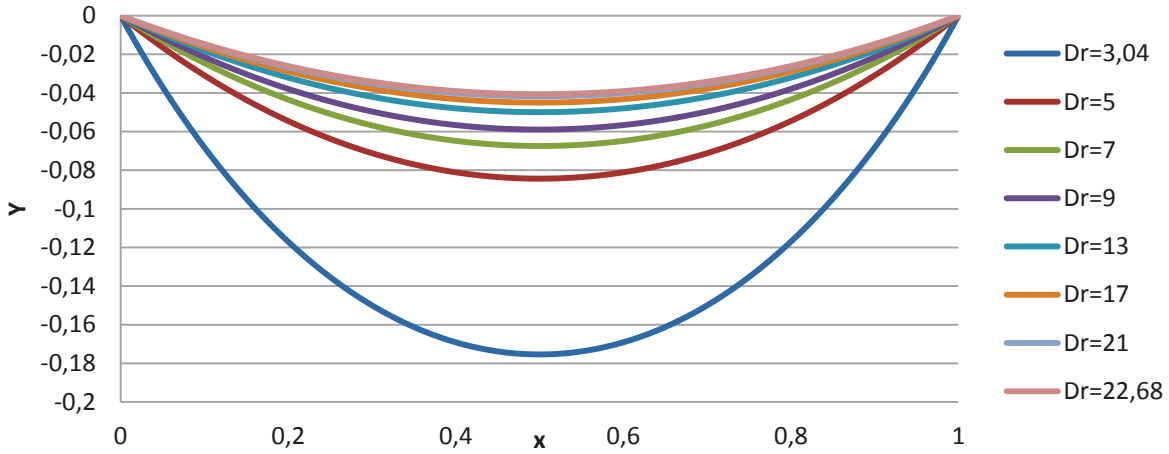


Figure IV.7 - Evolution de courbe moyenne de la membrane en fonction du taux d'étirage pour $B = 4$

IV.3.3.3.4 Influence du nombre adimensionnel B sur la courbe moyenne de la membrane

On considère un taux d"étirage $Dr = 20$, un dénivelé $d = 0$ et plusieurs valeurs du nombre adimensionnel B. On calcule la solution stationnaire pour chacun de ces nombres B en utilisant l"hypothèse CL-2 ($U(0) = \frac{\overline{U_0}}{\cos\theta}$).

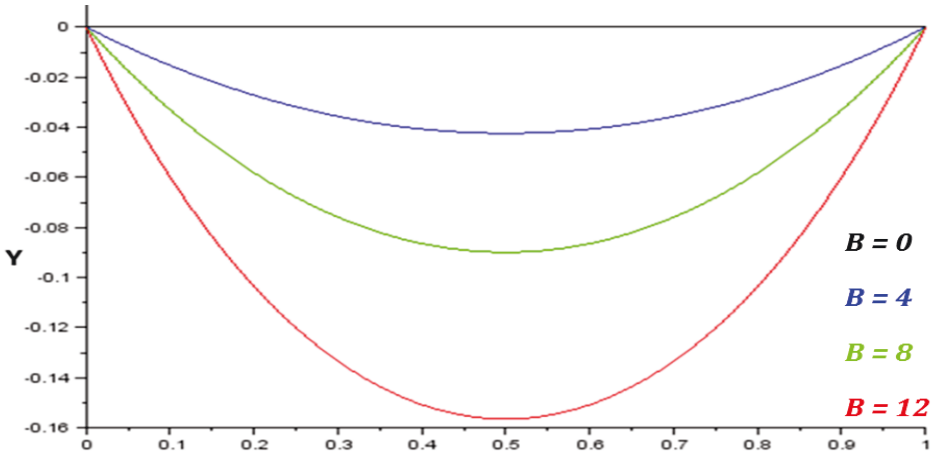


Figure IV.8 - Evolution de courbe moyenne de la membrane en fonction du nombre adimensionnel B pour $Dr = 20$

La figure IV.8 montre l"évolution de la courbe moyenne de la membrane en fonction du nombre adimensionnel pour un taux d"étirage $Dr = 20$. On observe qu"en augmentant B, c"est à dire en augmentant le différentiel de pression par exemple, la courbure de la membrane augmente ce qui est très logique.

IV.3.3.3.5 Influence du dénivelé d sur la forme de la membrane :

On considère un taux d"étirage $Dr = 50$ et un nombre adimensionnel $B = 8$.

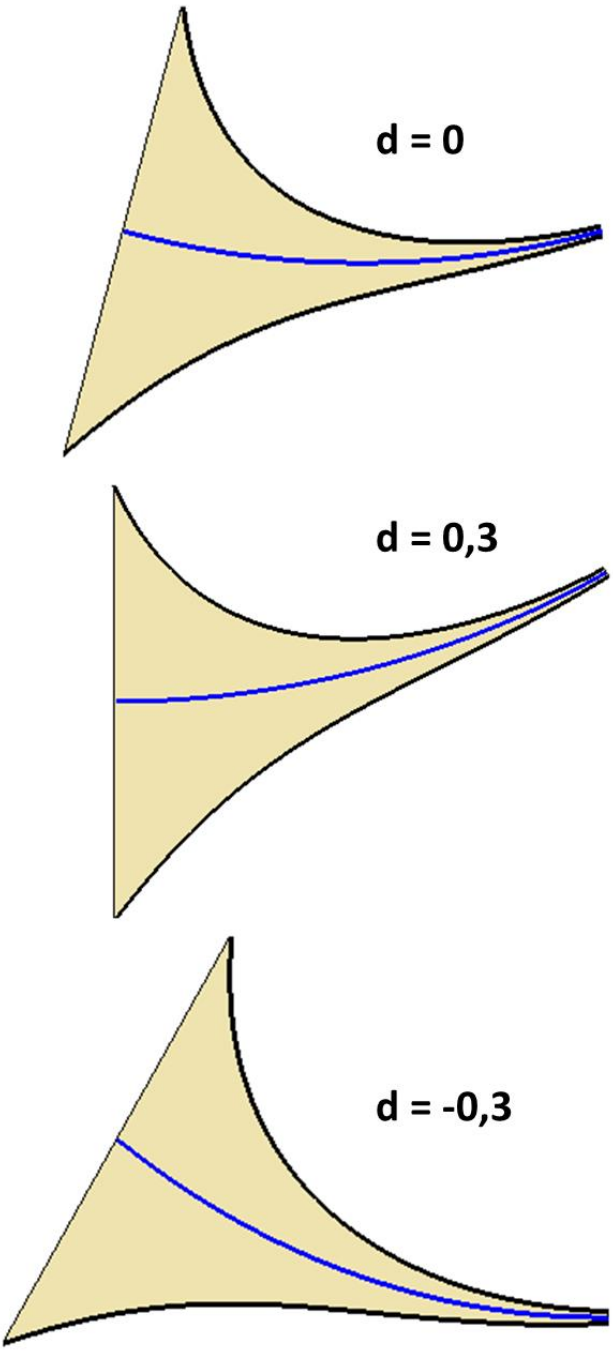


Figure IV.9 - Forme de la membrane en fonction du dénivelé pour Dr=50 et B=8

La figure IV.9 montre la forme de la membrane stationnaire pour trois valeurs de dénivelé de la position d"étirage par rapport à la sortie de filière : $d = 0$, $d = 0.3$ et $d = -0.3$. On constate que la forme de la membrane est influencée par le dénivelé d considéré.

IV.3.4 Problème instationnaire : Stabilité

Dans cette partie, les symboles X de la solution stationnaire sont notés $\bar{X}$. Ayant une solution stationnaire du problème, il est important de vérifier s"il s"agit d"un équilibre stable ou instable. Pour ce faire, la méthode de stabilité linéaire est utilisée. Cette méthode est bien détaillée dans le paragraphe suivant.

IV.3.4.1 La méthode de stabilité linéaire

La méthode de stabilité linéaire consiste à étudier l"effet d"une petite perturbation autour de la solution stationnaire obtenue. Pour cela, on introduit pour chacune des inconnues du problème $X(t,x)$ une perturbation de la forme $e^{\Lambda t}\hat{X}(x)$ par rapport à la solution stationnaire $\bar{X}(x)$. Par conséquent, on résout le problème instationnaire (IV.16.a – IV.16.e) en cherchant des solutions sous la forme particulière $X(t,x) = \bar{X}(x) + e^{\Lambda t}\hat{X}(x)$. Il est à noter que les équations du problème et les conditions aux limites sont linéarisées autour de la solution stationnaire en négligeant tous les termes d"ordre 2. On obtient donc un problème aux valeurs propres : Λ est une valeur propre et $\hat{X}(x)$ une fonction propre. Ce problème admet en fait une infinité de valeurs propres solutions Λ. Le critère de stabilité porte sur la valeur propre dominante (en fait une paire de valeurs propres complexes conjuguées) c"est à dire la valeur propre ayant la plus grande partie réelle. Si la partie réelle de la valeur propre dominante est négative alors toutes les perturbations s"évanouiront dans le temps et la solution stationnaire est considérée comme stable.

En revanche, si la partie réelle de la valeur propre dominante est positive, la perturbation qui lui est associée augmente avec le temps. La solution stationnaire est instable.

IV.3.4.2 Les équations instationnaires :

En appliquant cette procédure au système d"équations (IV.16.a – IV.16.e) on obtient :

$$\begin{cases} \hat{\theta} = (\cos\bar{\theta})^2 \dfrac{d\hat{Y}}{dx} & \text{(IV.27.a)} \\ \Lambda \dfrac{\hat{e}}{\cos\bar{\theta}} + \Lambda\, \bar{e}\, \sin\bar{\theta}\, \dfrac{d\hat{Y}}{dx} + \dfrac{d}{dx}(\hat{e}\,\bar{U} + \bar{e}\,\hat{U}) = 0 & \text{(IV.27.b)} \\ \hat{F} = \hat{e}\bar{\sigma}_t + \bar{e}\hat{\sigma}_t & \text{(IV.27.c)} \\ \hat{\sigma}_t = -4\, \sin\bar{\theta}\, (\cos\bar{\theta})^2 \dfrac{d\bar{U}}{dx}\dfrac{d\hat{Y}}{dx} + 4\cos\bar{\theta}\dfrac{d\hat{U}}{dx} & \text{(IV.27.d)} \\ \hat{F}(\cos\bar{\theta})^3 \dfrac{d^2\bar{Y}}{dx^2} - 3\,\bar{F}\, \sin\bar{\theta}\,(\cos\bar{\theta})^4 \dfrac{d^2\bar{Y}}{dx^2}\dfrac{d\hat{Y}}{dx} + \bar{F}(\cos\bar{\theta})^3 \dfrac{d^2\hat{Y}}{dx^2} = 0 & \text{(IV.27.e)} \end{cases}$$

Les conditions aux limites associées à ce système s"écrivent :

- En $\bar{x} = 0$:

En considérant l"hypothèse CL-1 ($U(0) = \overline{U_0}$), on obtient :

$$\hat{U}(0) = 0;$$
$$\hat{e}(0) = 0;\ \hat{Y}(0) = 0 \qquad \text{(IV.27.f.a)}$$

En considérant l"hypothèse CL-2 ($U(0) = \frac{\overline{U_0}}{\cos\theta}$), comme la perturbation $e^{\Lambda t}\hat{\theta}$ est infinitésimale, on se sert du développement limité d"ordre 1 suivant :

$$\begin{cases} cos\left(\bar{\theta} + e^{\Lambda t}\hat{\theta}\right) = cos(\bar{\theta}) - sin(\bar{\theta})e^{\Lambda t}\hat{\theta} \\ \dfrac{1}{cos\left(\bar{\theta} + e^{\Lambda t}\hat{\theta}\right)} = \dfrac{1}{cos(\bar{\theta})} + \dfrac{sin(\bar{\theta})}{cos(\bar{\theta})^2}e^{\Lambda t}\hat{\theta} \end{cases}$$

On obtient :

$$\hat{U}(0) = \sin\left(\bar{\theta}(0)\right)\frac{d\hat{Y}}{dx}(0);$$
$$\hat{e}(0) = -\sin\bar{\theta}(0)\ (\cos\bar{\theta}(0))^2\ \frac{d\hat{Y}}{dx}(0)\ ;\ \hat{Y}(0) = 0 \qquad \text{(IV.27.f.b)}$$

- En $x = 1$:

$$\hat{U}(1) = 0\ ;\ \hat{Y}(1) = 0 \qquad \text{(IV.27.g)}$$

IV.3.4.3 La résolution numérique du problème aux valeurs propres

D"après l"équation (IV.18) on peut écrire :

$$\frac{d\bar{\theta}}{dx} = \cos(\bar{\theta})^2\frac{d^2\overline{Y}}{dx^2} \qquad \text{(IV.28)}$$

De plus, comme la force d"étirage est indépendante de x, $\hat{F}$ est constante et on peut choisir sa valeur d"une manière arbitraire (ce choix n"a pas d"incidence sur la valeur propre). On pose donc $\hat{F} = \bar{F}$.

Par conséquent, l"équation (IV.27.e) s"écrit :

$$B - 3\,\bar{F}\ \sin\bar{\theta}\,(\cos\bar{\theta})^2\frac{d\bar{\theta}}{dx}\frac{d\hat{Y}}{dx} + \bar{F}(\cos\bar{\theta})^3\ \frac{d^2\hat{Y}}{dx^2} = 0 \qquad \text{(IV.29)}$$

C"est à dire :

$$B + \frac{d}{dx}\left(\bar{F}\ (\cos\bar{\theta})^3\ \frac{d\hat{Y}}{dx}\right) = 0 \qquad \text{(IV.30)}$$

L"intégration de cette équation par rapport à x donne :

$$Bx + \bar{F}\ (\cos\bar{\theta})^3\ \frac{d\hat{Y}}{dx} = BC$$

C est une constante d"intégration à déterminer. On obtient donc :

$$\frac{d\hat{Y}}{dx} = (C - x)\frac{d^2\overline{Y}}{dx^2} \qquad \text{(IV.31)}$$

D"après les conditions aux limites en $\hat{Y}$, on a

$$\int_0^1 \frac{d\hat{Y}}{dx}\, dx = \hat{Y}(1) - \hat{Y}(0) = 0$$

Donc

$$\int_0^1 (C - x)\frac{d^2\bar{Y}}{dx^2}\, dx = \left[(C - x)\frac{d\bar{Y}}{dx} + \bar{Y}\right]_0^1 = C\left(\frac{d\bar{Y}}{dx}(1) - \frac{d\bar{Y}}{dx}(0)\right) - \frac{d\bar{Y}}{dx}(1) = 0$$

D‟où

$$C = \frac{\frac{d\bar{Y}}{dx}(1)}{\frac{d\bar{Y}}{dx}(1) - \frac{d\bar{Y}}{dx}(0)} = \frac{tg\left(\frac{B}{\bar{F}} + C_1\right)}{tg\left(\frac{B}{\bar{F}} + C_1\right) - tg(C_1)}$$

C_1 est la constante relative à la solution stationnaire. Par conséquent :

$$\hat{Y}(x) = \left(\frac{1}{2} - x\right)\frac{d\bar{Y}}{dx} + \bar{Y} + D$$

avec une constante d‟intégration D qui est déterminée avec la condition $\hat{Y}(0) = 0$, ce qui donne :

$$\hat{Y}(x) = \left(\frac{1}{2} - x\right)\frac{d\bar{Y}}{dx} + \bar{Y} - \frac{1}{2}\frac{d\bar{Y}}{dx}(0) \qquad \text{(IV.32)}$$

Après avoir déterminé les expressions de $\hat{Y}(x)$ et $\hat{\theta}(x)$ en fonction de la solution stationnaire, il ne nous reste qu‟à trouver les quatre inconnues restantes qui sont $\lambda, \hat{V}, \hat{e}$ et $\hat{\sigma_t}$.

Grâce aux équations (IV.21) et (IV.27.c), on peut exprimer $\hat{\sigma_t}$ en fonction de $\hat{e}$:

$$\hat{\sigma_t} = \bar{U}(\bar{F} - \hat{e}\bar{\sigma_t})$$

En remplaçant $\hat{\sigma_t}$ par son expression dans l‟équation (IV.27.d), on obtient un système de deux équations différentielles d‟ordre 1 en $\hat{e}$ et $\hat{U}$:

$$\begin{cases} \bar{U}\frac{d\hat{e}}{dx} + \bar{e}\frac{d\hat{U}}{dx} = -\left(\frac{\Lambda}{\cos\bar{\theta}} + \frac{d\bar{U}}{dx}\right)\hat{e} - \frac{d\bar{e}}{dx}\hat{U} - \Lambda\,\bar{e}\,\sin\bar{\theta}\,\frac{d\hat{Y}}{dx} \\ 4\cos\bar{\theta}\frac{d\hat{U}}{dx} = \bar{U}\bar{F} - \bar{U}\bar{\sigma_t}\hat{e} + 4\,\sin\bar{\theta}\,(\cos\bar{\theta})^2\,\frac{d\bar{U}}{dx}\,\frac{d\hat{Y}}{dx} \end{cases}$$

Ce système peut être écrit sous forme matricielle comme suit :

$$\begin{bmatrix} \bar{e} & \bar{U} \\ 4\cos\bar{\theta} & 0 \end{bmatrix}\frac{d}{dx}\begin{bmatrix} \hat{U} \\ \hat{e} \end{bmatrix} = f(\hat{U}, \hat{e}) = \begin{bmatrix} -\left(\frac{\Lambda}{\cos\bar{\theta}} + \frac{d\bar{U}}{dx}\right)\hat{e} - \frac{d\bar{e}}{dx}\hat{U} - \Lambda\,\bar{e}\,\sin\bar{\theta}\,\frac{d\hat{Y}}{dx} \\ \bar{U}\bar{F} - \bar{U}\bar{\sigma_t}\hat{e} + 4\,\sin\bar{\theta}\,(\cos\bar{\theta})^2\,\frac{d\bar{U}}{dx}\,\frac{d\hat{Y}}{dx} \end{bmatrix}$$

En considérant l‟hypothèse CL-1 ($U(0) = \overline{U_0}$), ce système différentiel est combiné avec les conditions initiales suivantes :

$$\begin{cases} \hat{U}(0) = 0 \\ \hat{e}(0) = 0 \end{cases}$$

Par contre, en considérant l‟hypothèse CL-2 ($U(0) = \frac{\overline{U_0}}{\cos\theta}$), le système différentiel est combiné avec les conditions initiales suivantes :

$$\begin{cases} \widehat{U}(0) = \frac{1}{2}\sin\left(\bar{\theta}(0)\right)\frac{d^2\bar{Y}}{dx^2}(0) \\ \hat{e}(0) = -\frac{1}{2}\sin\bar{\theta}(0)\ \left(\cos\bar{\theta}(0)\right)^2\frac{d^2\bar{Y}}{dx^2}(0) \end{cases}$$

Pour une valeur du quadruplet (Dr, B, d, Λ) donnée, la solution de ce problème est calculée en utilisant une méthode de Runge-Kutta d"ordre 4 en considérant l"une des deux hypothèses sur les conditions aux limites. On obtient dans ce cas une solution $\widehat{U}(Dr, B, d, \Lambda)$ et $\hat{e}(Dr, B, d, \Lambda)$. Le nombre complexe Λ est une valeur propre si et seulement si la condition $\widehat{U}(1) = 0$ est vérifiée (IV.27.g). Cette équation admet en fait une infinité de Λ solutions pour chaque triplet (Dr, B, d) donné. Une méthode de tir associée à une boucle de Newton-Raphson est utilisée pour déterminer les valeurs propres du problème et plus précisément la valeur propre dominante Λ.

IV.3.4.4 Résultats

IV.3.4.4.1 Spectre des valeurs propres :

Pour un triplet (Dr, B, d) donné, il existe une infinité de valeurs propres Λ, complexes conjuguées, solutions du problème. On détermine une grande partie du spectre des valeurs propres et on s"intéresse principalement à celle de plus grande partie réelle.

Nous avons suivi de proche en proche l"évolution des 6 valeurs propres de plus grande partie réelle en fonction du taux d"étirage (figure IV.10). On observe qu"en augmentant le taux d"étirage, la valeur propre dominante (de plus grande partie réelle), initialement négative, devient positive tout en passant par 0. Cela signifie que l"augmentation du taux d"étirage est un facteur déstabilisant du procédé et que ce dernier devient stable à partir d"un taux d"étirage critique.

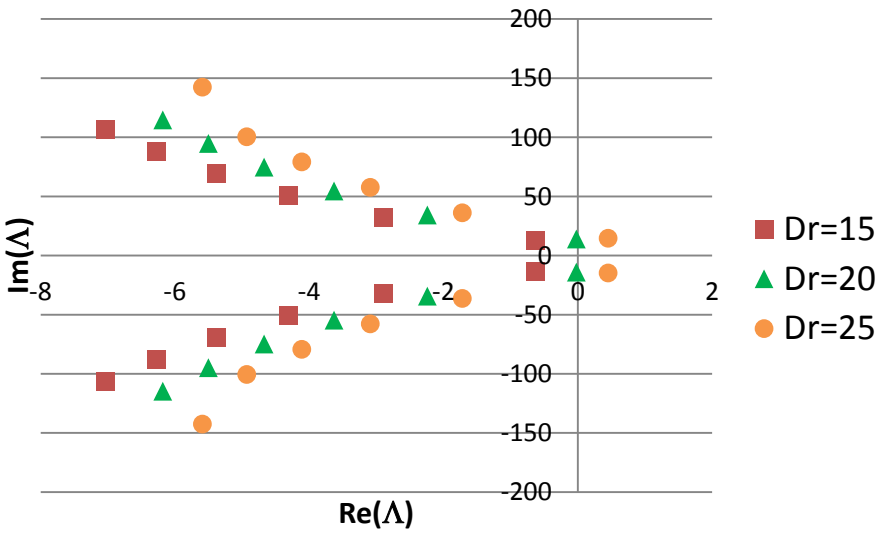


Figure IV.10 - Evolution des 6 valeurs propres de plus grandes partie réelle avec le taux d'étirage ($B = 0$)

Nous avons suivi également de proche en proche l"évolution des 5 valeurs propres de plus grande partie réelle en fonction du nombre adimensionnel B (figure IV.11). On observe qu"en

augmentant le nombre adimensionnel B, la partie réelle de la valeur propre dominante décroit, ce qui signifie que l'augmentation de B est un facteur stabilisant du procédé.

Par ailleurs, on remarque que généralement, en modifiant l'un des paramètres du modèle, toutes les valeurs propres sont décalées dans le même sens et la valeur propre dominante reste la même. Cependant, il est possible d'observer dans certains cas un changement dans l'ordre des valeurs propres suite à la modification de l'un des paramètres du modèle (voir paragraphe suivant).

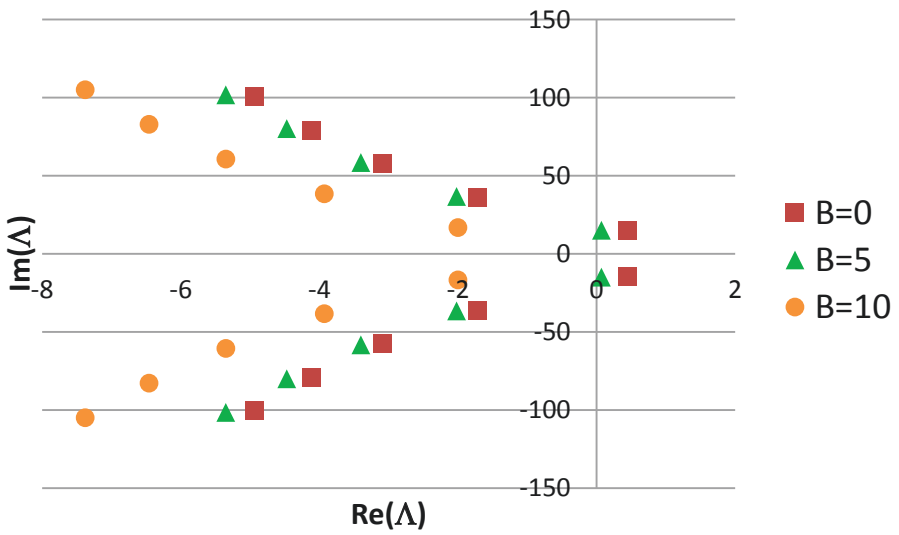


Figure IV.11 - Evolution des 5 valeurs propres de plus grande partie réelle avec le nombre adimensionnel B ($Dr = 25$)

On considère un taux d'étirage $Dr = 25$ et un nombre adimensionnel $B = 0$. La figure IV.12 montre la représentation des parties réelle et imaginaire de la fonction propre $\widehat{U}(x)$ associée aux deux valeurs propres de plus grande partie réelle. On remarque que le vecteur propre relatif à la valeur propre dominante, qu'on appellera le premier mode est plus régulier que le deuxième mode.

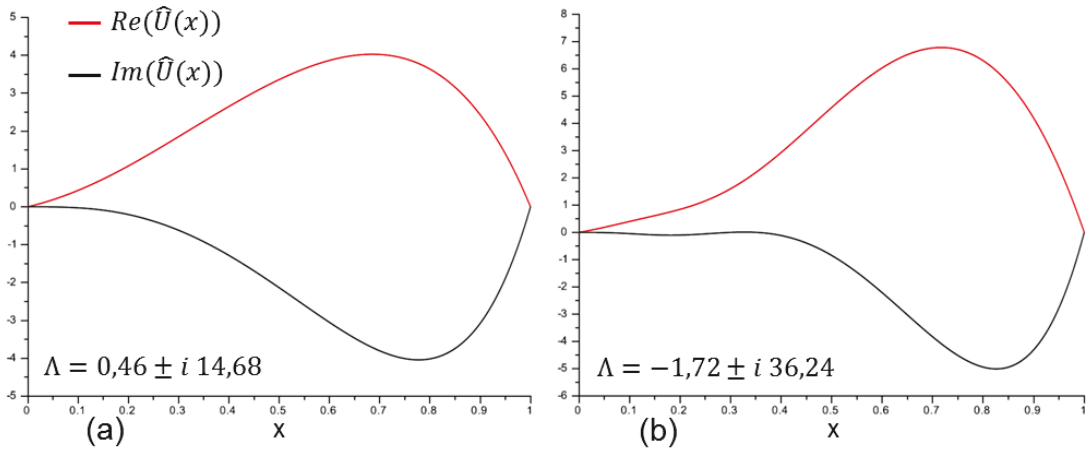


Figure IV.12 - Représentation des parties réelle et imaginaire de la fonction propre $\widehat{U}(x)$ associée à la valeur propre dominante ($Dr = 25$) : (a) Premier mode – (b) Deuxième mode

IV.3.4.4.2 Recherche de courbes critiques dans le cas $d = 0$

On considère un dénivelé nul entre la position d"étirage et la sortie de filière. Plusieurs simulations ont été réalisées afin de discriminer les régions du plan (Dr, B) dans lesquelles le procédé est stable. Les deux hypothèses CL-1 $(U(0) = \overline{U_0})$ et CL-2 $(U(0) = \frac{\overline{U_0}}{\cos\theta})$ ont été considérées et il a été possible de tracer les courbes critiques de transition stable-instable (c"est à dire les points pour lesquels la partie réelle de la valeur propre dominante est nulle). La figure IV.13 montre les zones stables et instables obtenues avec l"hypothèse CL-2.

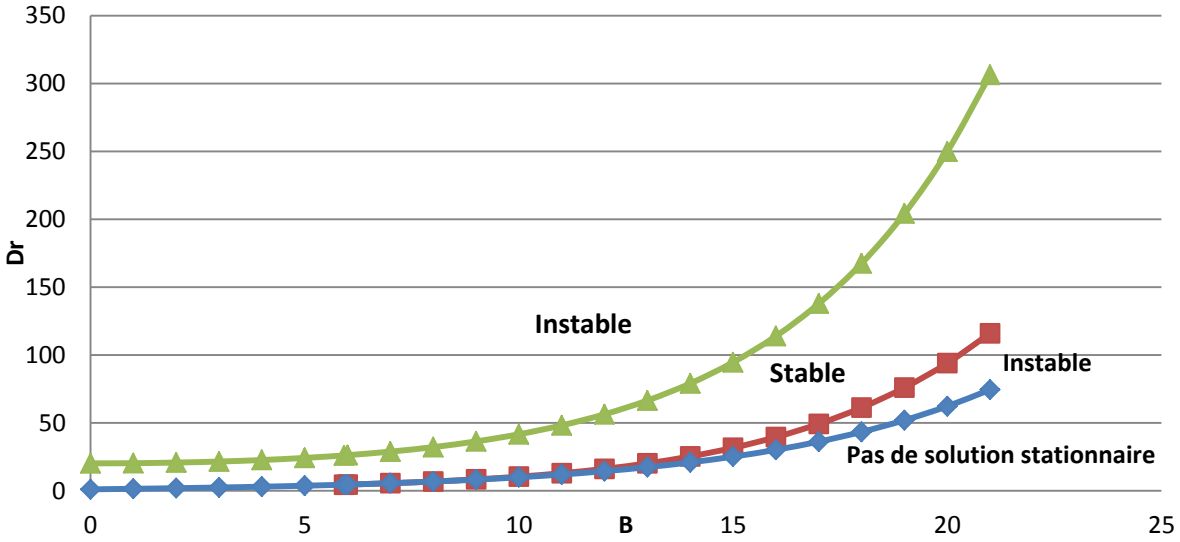


Figure IV.13 - Courbe de stabilité relative à l'hypothèse CL-2 $(U(0) = \frac{\overline{U_0}}{\cos\theta})$

Tout d"abord, on remarque que pour toute valeur du nombre adimensionnel B, il existe un taux d"étirage critique Dr_C à partir duquel le procédé devient instable. Pour $B = 0$ (c"est à dire $\Delta p = 0$), on retrouve $Dr_C = 20.2$ qui est bien la valeur du taux d"étirage critique relatif au problème de *Cast film* à largeur constante [Yeow, 1974]. On remarque également que la courbe critique relative à la transition stable/instable (courbe verte) est croissante en fonction de B. Donc, l"augmentation du nombre adimensionnel B permet de stabiliser le procédé et d"atteindre des taux d"étirage beaucoup plus importants.

On observe une zone instable qui se situe juste au-dessus de la zone d"absence de solution stationnaire pour des valeurs de $B > 7.4$. Comme cette zone est située à la frontière de la zone d"absence de solution stationnaire, il est possible qu"elle soit due au fait que la moindre perturbation de la solution stationnaire provoque l"entrée dans la zone d"absence de solution stationnaire.

La figure IV.14 montre les zones stables et les zones instables obtenues avec l"hypothèse CL-1 $(U(0) = \overline{U_0})$. Cette figure est très différente de celle obtenue avec l"hypothèse CL-2 $(U(0) = \frac{\overline{U_0}}{\cos\theta})$. On retrouve bien le même taux d"étirage critique $Dr_C = 20.2$ pour $B = 0$ car dans cette situation les deux hypothèses sont équivalentes. Par contre, contrairement à la figure IV.13 où on observe que le taux d"étirage critique augmente considérablement avec B, ici le taux d"étirage critique n"augmente que légèrement avec B et dépasse à peine 25 pour $B = 9$. A partir de $B = 9$, On remarque que le deuxième mode croise le premier mode et

devient ainsi le mode dominant, ce qui cause la décroissance du taux d"étirage critique. Il est à noter qu"à partir d"une valeur de $B = 12$, le procédé devient instable quel que soit le taux d"étirage.

Nous allons nous servir de la condition initiale CL-2 ($U(0) = \frac{\overline{U_0}}{\cos\theta}$) pour voir l"influence des paramètres du modèle sur le procédé.

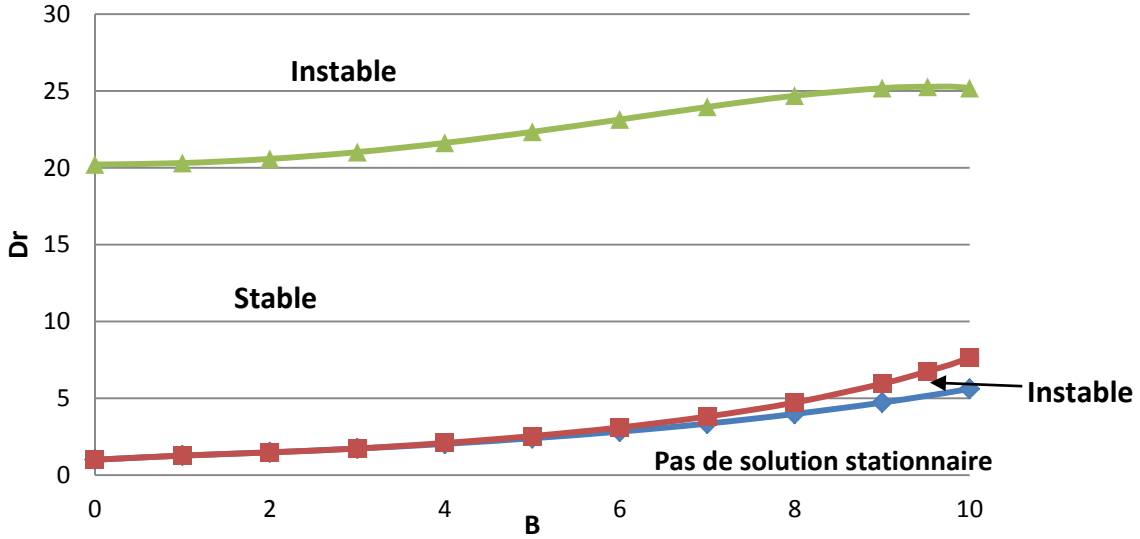


Figure IV.14 - Courbe de stabilité relative à l'hypothèse CL-1 ($U(0) = \overline{U_0}$)

On observe, comme dans la figure IV.13, une région dans laquelle il est impossible de calculer une solution stationnaire. Cette zone a été mise en évidence dans le paragraphe (IV.2.3.3.1) mais on remarque qu"elle devient moins large en utilisant l"hypothèse CL-1 ($U(0) = \overline{U_0}$).

IV.3.4.4.3 Influence du dénivelé *d* sur la stabilité du procédé :

On considère l"hypothèse CL-2 ($U(0) = \frac{\overline{U_0}}{\cos\theta}$) sur la condition initiale et trois dénivelés différents : $d = 0$, $d = 0.3$ et $d = -0.3$. La figure IV.15 montre l"évolution du taux d"étirage critique en fonction de B pour les trois dénivelés considérés. On constate que la stabilité du procédé est influencée par le dénivelé. En effet, en considérant un nombre adimensionnel donné, le taux d"étirage critique est plus élevé pour un dénivelé $d = \pm 0.3$ que pour un dénivelé $d = 0$. Donc, un dénivelé, qu"il soit positif ou négatif, permet de stabiliser le procédé mais on note que le procédé est plus stable pour $d = -0.3$. En revanche, à partir de $B > 10$, le taux d"étirage obtenu avec $d = 0$ devient supérieur à celui obtenu $d = 0.3$ c"est à dire qu"un dénivelé nul rend le procédé plus stable qu"un dénivelé positif. Il est à noter que quel que soit le dénivelé considéré, l"augmentation du nombre adimensionnel B améliore la stabilité du procédé.

La figure IV.16 montre l"évolution de la partie réelle de la valeur propre dominante en fonction du dénivelé de la position d"étirage par rapport à la filière pour $Dr = 35$ et $B = 8$. On constate que la partie réelle de la valeur propre dominante atteint son maximum pour $d = 0.1$ et qu"elle diminue en s"écartant par rapport à cette valeur dans les deux sens (positif

et négatif). Donc $d = 0.1$ est la position la moins stable du procédé dans ces conditions. Plus le dénivelé d s"écarte de la position $d = 0.1$, plus la stabilité du procédé s"améliore.

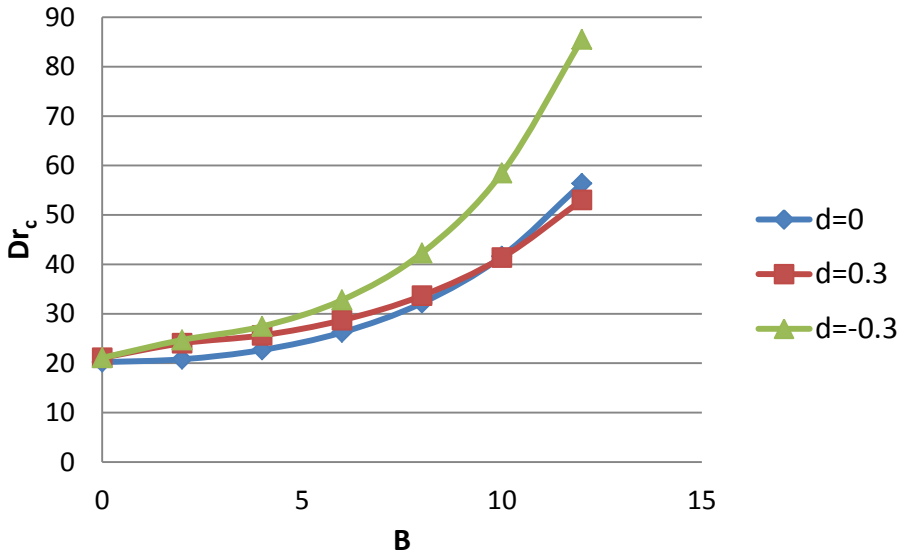


Figure IV.15 - Evolution du taux d'étirage critique en fonction de B et du dénivelé entre la filière et la position d'étirage

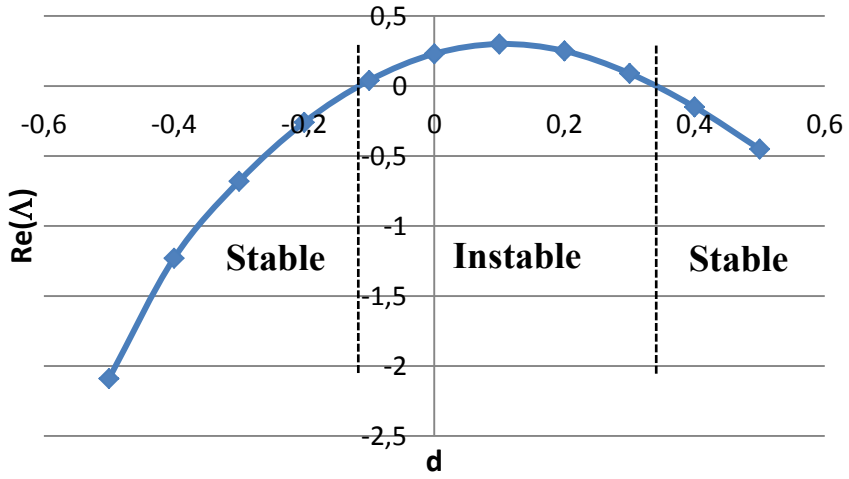


Figure IV.16 - Evolution de la partie réelle de la valeur propre dominante en fonction du dénivelé *d* pour Dr=35 et B=8

IV.3.4.4.4 Influence du taux d'étirage sur la stabilité du procédé :

On considère un dénivelé $d = 0.1$ et la condition initiale CL-2 ($U(0) = \frac{\overline{U_0}}{\cos\theta}$). Afin d"étudier l"influence du taux d"étirage sur la stabilité du procédé, nous avons suivi l"évolution de la valeur propre dominante en fonction du taux d"étirage pour une valeur de B fixe. Cette étude a été menée pour trois valeurs de ($B = 0,\ B = 4\ et\ B = 10$) afin de pouvoir balayer les différentes zones caractéristiques de la courbe de stabilité (figure IV.13).

- 1er cas : $B = 0$

Dans ce cas, nous avons obtenu la courbe de la figure IV.17.

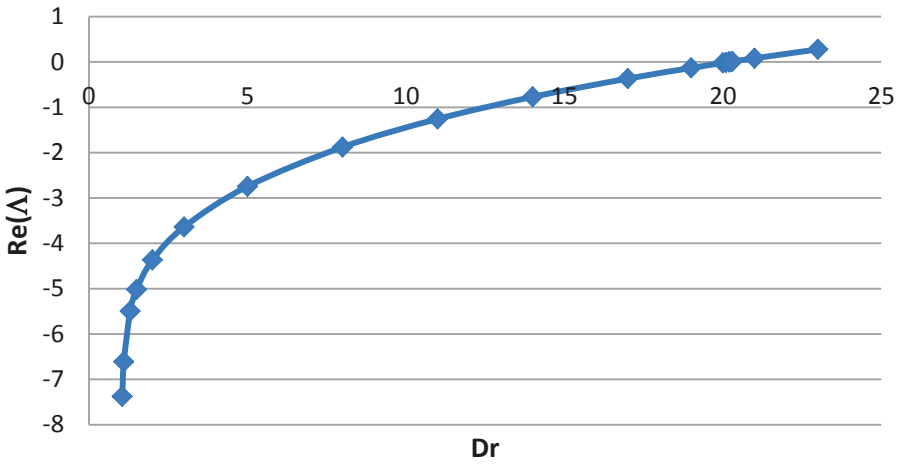


Figure IV.17 - Evolution de la valeur propre du premier mode en fonction de Dr pour B=0

On remarque que la partie réelle de la valeur propre principale est négative pour les faibles taux d"étirage et qu"elle augmente avec le taux d"étirage jusqu"à s"annuler pour un taux d"étirage critique $Dr_C = 20.2$. Donc on retrouve bien le même résultat du modèle de *Cast film* à largeur constante. Ce constat représente une première validation de notre modèle.

La figure IV.18 montre une représentation des parties réelle et imaginaire des fonctions propres $\widehat{U}(x)$ et $\hat{e}(x)$ à la transition stable / instable ($Dr_C = 20.215$). On observe une bonne régularité de ces fonctions propres ce qui témoigne de la bonne qualité de la solution numérique. On remarque que $\widehat{U}(1) = 0$ et $\hat{e}(1) \neq 0$ ce qui est à l"origine des perturbations en épaisseur.

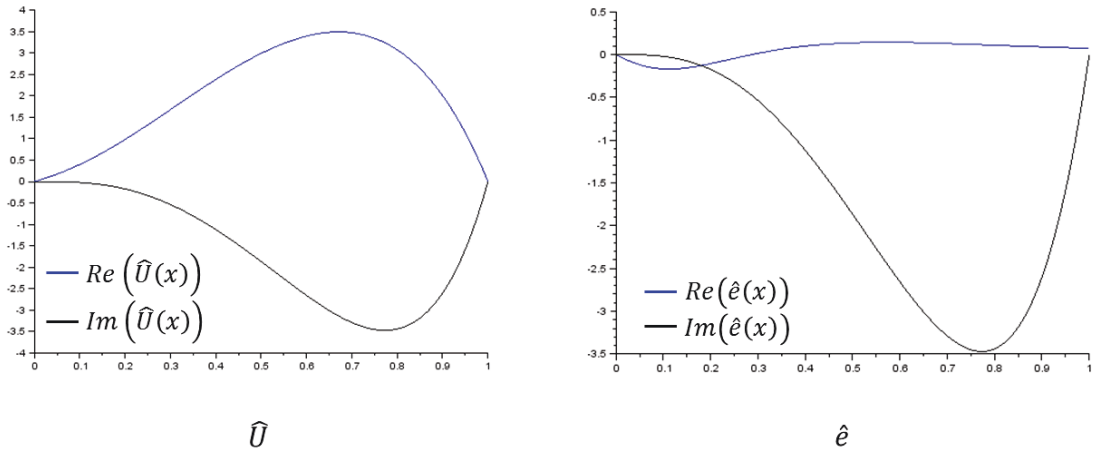


Figure IV.18 - Représentation des parties réelle et imaginaire des fonctions propres $\widehat{U}(x)$ et $\hat{e}(x)$ associées à la valeur propre dominante $\Lambda = \pm i\ 14,01$ (B=0 et Dr=20.2)

- 2ème cas : $B = 4$

Dans ce cas, nous avons obtenu la courbe de la figure IV.19.

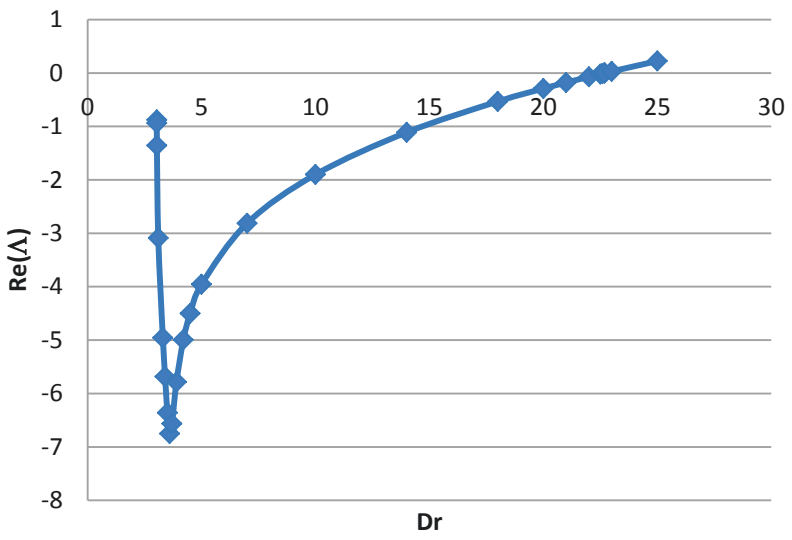


Figure IV.19 - Evolution de la valeur propre du premier mode en fonction de Dr pour B=4

On observe que la valeur propre a la même tendance que dans le cas $B = 0$ pour les plus grands taux d"étirage. En revanche, pour taux d"étirage inférieurs à environ 3.6, on remarque que la partie réelle de la valeur propre principale devient décroissante en fonction de Dr. Par contre, la partie réelle de cette valeur propre reste négative à la transition avec la zone d"absence de solution stationnaire et donc le procédé reste stable dans cette zone.

La figure IV.20 montre une représentation des parties réelle et imaginaire des fonctions propres $\widehat{U}(x)$ et $\hat{e}(x)$ à la transition stable / instable ($Dr_C = 22.68$). On observe que les fonctions propres gardent la même allure que dans le cas $B = 0$.

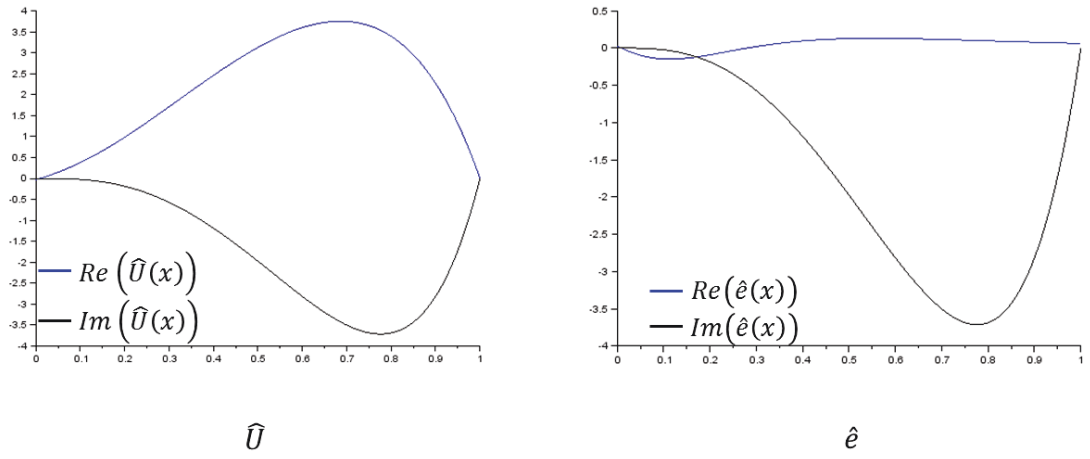


Figure IV.20 - Représentation des parties réelle et imaginaire des fonctions propres $\widehat{U}(x)$ et $\hat{e}(x)$ associées à la valeur propre dominante $\Lambda = \pm i\ 14,58$ (B=4 et Dr=22.68)

- $3^{\text{ème}}$ cas : $B = 10$

Dans ce cas, nous avons obtenu la courbe de la figure IV.21.

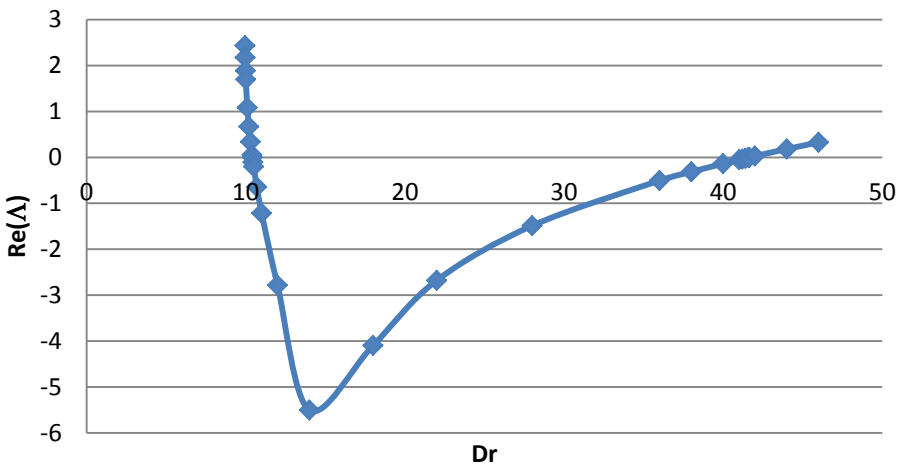


Figure IV.21 - Evolution de la valeur propre du premier mode en fonction de Dr pour B=10

On observe une courbe qui ressemble à celle obtenue dans le cas $B = 4$. On note le même comportement du côté des faibles taux d"étirage. En effet, pour des taux d"étirage inférieurs à environ 14, la partie réelle de la valeur propre principale devient décroissante en fonction de Dr. A la différence du cas $B = 4$, la partie réelle de la valeur propre principale est positive à la transition avec la zone d"absence de solution stationnaire puis elle s"annule et devient négative pour $Dr = 10.42$. Ce constat permet de justifier la présence d"une zone instable à très faible taux d"étirage entre la zone stable et la zone d"absence de solution stationnaire.

IV.4 Modèle membrane Viscoélastique (modèle de Maxwell surconvecté) :

Le modèle membrane est maintenant développé en considérant le polymère comme un liquide viscoélastique. Donc, toutes les équations établies dans le modèle membrane newtonien restent valables à l"exception de l"équation relative à la loi de comportement. Il est à noter qu"on se limitera à l"étude du cas $d = 0$ et à la condition initiale CL-2 ($U(0) = \frac{\overline{U_0}}{\cos\theta}$).

IV.4.1 Les équations du problème :

Les équations (IV.2), (IV.13), (IV.14) et (IV.15) restent valides. A ces équations, il faut rajouter les équations relatives à une loi de comportement viscoélastique. Donc similairement au modèle membrane newtonien, la courbe moyenne de la membrane $Y(t,x)$ est un arc de cercle.

Comme dans le modèle membrane newtonien, les termes de cisaillement sont négligés devant les termes d"élongation et donc les tenseurs de vitesse de déformation et de contraintes sont diagonaux :

La loi de comportement viscoélastique de Maxwell s"écrit :

$$\begin{cases} \sigma = \sigma' - p'I \\ \sigma' + \lambda \dfrac{\delta\sigma'}{\delta t} = 2\eta_p \dot{\epsilon} \end{cases} \qquad \text{(IV.33)}$$

avec $$\frac{\delta\sigma'}{\delta t} = \frac{d\sigma'}{dt} - \nabla\vec{U}\,\sigma' - \sigma'(\nabla\vec{U})^t$$

λ étant le temps de relaxation du polymère, p' la partie isotrope du tenseur des contraintes et σ' n"étant pas un déviateur.

D"après [André, 2001], nous écrivons la dérivation convective dans le repère $(\vec{t}(s), \vec{n}(s))$ comme suit :

$$\frac{\delta\sigma'}{\delta t} = \frac{\partial\sigma'}{\partial t} + U(s)\frac{\partial\sigma'}{\partial s} - \nabla\vec{U}\,\sigma' - \sigma'(\nabla\vec{U})^t$$

Le système d"équations (IV.33) donne :

$$\begin{cases} \sigma_t' + \lambda\left[\frac{\partial\sigma_t'}{\partial t} + U(s)\frac{\partial\sigma_t'}{\partial s} - 2\frac{\partial U}{\partial s}\sigma_t'\right] = 2\eta_p\frac{\partial U}{\partial s} & \text{(IV.34)} \\ \sigma_n' + \lambda\left[\frac{\partial\sigma_n'}{\partial t} + U(s)\frac{\partial\sigma_n'}{\partial s} + 2\frac{\partial U}{\partial s}\sigma_n'\right] = -2\eta_p\frac{\partial U}{\partial s} & \text{(IV.35)} \end{cases}$$

La combinaison des équations (IV.34) et (IV.35) avec la relation $dx = \cos(\theta)ds$ donne :

$$\begin{cases} \sigma_t' + \lambda\left[\frac{\partial\sigma_t'}{\partial t} + U\cos\theta\frac{\partial\sigma_t'}{\partial x} - 2\cos\theta\frac{\partial U}{\partial x}\sigma_t'\right] = 2\eta_p\cos\theta\frac{\partial U}{\partial x} & \text{(IV.36)} \\ \sigma_n' + \lambda\left[\frac{\partial\sigma_n'}{\partial t} + U\cos\theta\frac{\partial\sigma_n'}{\partial x} + 2\cos\theta\frac{\partial U}{\partial x}\sigma_n'\right] = -2\eta_p\cos\theta\frac{\partial U}{\partial x} & \text{(IV.37)} \end{cases}$$

L"hypothèse de film mince impose que la contrainte σ_n soit constante dans l"épaisseur du film. Comme $\sigma_n = 0$ aux parois du film, alors $\sigma_n = 0$ partout.

Donc la pression p' s"écrit

$$p' = \sigma_n' \qquad \text{(IV.38)}$$

D"où

$$\sigma_t = \sigma_t' - \sigma_n' \qquad \text{(IV.39)}$$

Ainsi en retranchant l"équation (IV.37) de l"équation (IV.36) on obtient :

$$\begin{cases} \sigma_t + \lambda\left[\frac{\partial\sigma_t}{\partial t} + U\cos\theta\frac{\partial\sigma_t}{\partial x} - 2\cos\theta\frac{\partial U}{\partial x}\sigma_t - 4\cos\theta\frac{\partial U}{\partial x}\sigma_n'\right] = 4\eta_p\cos\theta\frac{\partial U}{\partial x} & \text{(IV.40)} \\ \sigma_n' + \lambda\left[\frac{\partial\sigma_n'}{\partial t} + U\cos\theta\frac{\partial\sigma_n'}{\partial x} + 2\cos\theta\frac{\partial U}{\partial x}\sigma_n'\right] = -2\eta_p\cos\theta\frac{\partial U}{\partial x} & \text{(IV.41)} \end{cases}$$

On considère les mêmes conditions aux limites que le modèle membrane newtonien. Comme on a une inconnue supplémentaire σ'_n, il est nécessaire de rajouter une condition aux limites. En supposant que les contraintes normales se relaxent en sortie de filière grâce au gonflement, on obtient la condition suivante :

$$\sigma_n'(0) = 0 \qquad \text{(IV.42)}$$

Silagy et al. ont montré que le choix de cette condition initiale a peu d"influence sur le résultat [Silagy, 1998].

Ainsi, on obtient le système d"équations suivant :

$$\begin{cases} \tan\theta = \dfrac{\partial Y}{\partial x} & \text{(IV.43.a)} \\ \dfrac{\partial}{\partial t}\left(\dfrac{e}{\cos\theta}\right) + \dfrac{\partial}{\partial x}(eU) = 0 & \text{(IV.43.b)} \\ F = e\sigma_t & \text{(IV.43.c)} \\ \dfrac{\partial F}{\partial x} = 0 & \text{(IV.43.d)} \\ \sigma_t + \lambda\left[\dfrac{\partial \sigma_t}{\partial t} + U\ \cos\theta\dfrac{\partial \sigma_t}{\partial x} - 2\cos\theta\dfrac{\partial U}{\partial x}\sigma_t - 4\cos\theta\dfrac{\partial U}{\partial x}\sigma_n^{'}\right] = 4\eta_p\cos\theta\dfrac{\partial U}{\partial x} & \text{(IV.43.e)} \\ \sigma_n^{'} + \lambda\left[\dfrac{\partial \sigma_n^{'}}{\partial t} + U\cos\theta\dfrac{\partial \sigma_n^{'}}{\partial x} + 2\cos\theta\dfrac{\partial U}{\partial x}\sigma_n^{'}\right] = -2\eta_p\cos\theta\dfrac{\partial U}{\partial x} & \text{(IV.43.f)} \\ F(\cos\theta)^3\dfrac{\partial^2 Y}{\partial x^2} = B & \text{(IV.43.g)} \end{cases}$$

- En $x = 0$, les conditions aux limites sont données par :

$$U(0) = \frac{\overline{U_0}}{\cos\big(\theta(0)\big)}\ ;\ e(0) = 2h_0\cos\big(\theta(0)\big)\ ;\ Y(0) = 0;\ \sigma_n'(0) = 0 \qquad \text{(IV.43.h)}$$

- En $x = L$, les conditions aux limites sont données par :

$$U(L) = Dr\ ;\ Y(L) = 0 \qquad \text{(IV.43.i)}$$

Il s"agit donc d"un système de 7 équations à 7 inconnues : $U(t,x)$, $e(t,x)$, $Y(t,x)$, $\theta(t,x)$, $\sigma_t(t,x)$, $\sigma_n^{'}(t,x)$ et $F(t)$. Le problème est donc bien posé et il est gouverné par les conditions aux limites données par les équations (IV.43.h) et (IV.43.i).

IV.4.2 Les équations adimensionnelles :

Comme pour le modèle newtonien, on utilise les variables adimensionnelles suivantes :

$$x = L\bar{x}\ ;t = \frac{L}{V_0}\bar{t}\ ;U(t,x) = \overline{U_0}\bar{U}(\bar{t},\bar{x})\ ;Y(t,x) = L\bar{Y}(\bar{t},\bar{x});\ e(t,x) = 2h_0\bar{e}(\bar{t},\bar{x})\ ;$$

$$\sigma_t(t,x) = \frac{\eta_p\overline{U_0}}{L}\bar{\sigma}_t(\bar{t},\bar{x})\ ;\ F = \frac{2\eta_p\overline{U_0}Wh_0}{L}\bar{F};\ B = \frac{L^2\Delta p}{2\eta_p\overline{U_0}h_0}\ ;De = \frac{\lambda\overline{U_0}}{L}$$

On obtient le système d"équations suivant :

$$\begin{cases} \tan\theta = \dfrac{\partial \bar{Y}}{\partial \bar{x}} & \text{(IV.44.a)} \\ \dfrac{\partial}{\partial \bar{t}}\left(\dfrac{\bar{e}}{\cos\theta}\right) + \dfrac{\partial}{\partial \bar{x}}(\bar{e}\bar{U}) = 0 & \text{(IV.44.b)} \\ \bar{F} = \bar{e}\bar{\sigma}_t & \text{(IV.44.c)} \\ \dfrac{\partial \bar{F}}{\partial \bar{x}} = 0 & \text{(IV.44.d)} \\ \bar{\sigma}_t + De\left[\dfrac{\partial \bar{\sigma}_t}{\partial \bar{t}} + \bar{U}\ \cos\theta\dfrac{\partial \bar{\sigma}_t}{\partial \bar{x}} - 2\cos\theta\dfrac{\partial \bar{U}}{\partial \bar{x}}\bar{\sigma}_t - 4\cos\theta\dfrac{\partial \bar{U}}{\partial \bar{x}}\overline{\sigma_n^{'}}\right] = 4\cos\theta\dfrac{\partial \bar{U}}{\partial \bar{x}} & \text{(IV.44.e)} \\ \overline{\sigma_n^{'}} + De\left[\dfrac{\partial \overline{\sigma_n^{'}}}{\partial \bar{t}} + \bar{U}\cos\theta\dfrac{\partial \overline{\sigma_n^{'}}}{\partial \bar{x}} + 2\cos\theta\dfrac{\partial \bar{U}}{\partial \bar{x}}\overline{\sigma_n^{'}}\right] = -2\cos\theta\dfrac{\partial \bar{U}}{\partial \bar{x}} & \text{(IV.44.f)} \\ \bar{F}(\cos\theta)^3\dfrac{\partial^2 \bar{Y}}{\partial \bar{x}^2} = B & \text{(IV.44.g)} \end{cases}$$

Les conditions aux limites sont données par :

- En $\bar{x} = 0$:

$$\bar{U}(0) = \frac{1}{\cos\big(\theta(0)\big)} \; ; \; \bar{e}(0) = \cos\big(\theta(0)\big) \; ; \; \bar{Y}(0) = 0 \; ;$$
$$\bar{\sigma_t}(0) = \frac{F}{\cos\big(\theta(0)\big)} \; ; \; \overline{\sigma_n'}(0) = 0 \qquad \text{(IV.44.h)}$$

- En $\bar{x} = 1$:

$$\bar{U}(1) = Dr \; ; \; \bar{Y}(1) = 0 \qquad \text{(IV.44.i)}$$

On définit un nouveau nombre adimensionnel appelée le nombre de Deborah $De = \frac{\lambda \overline{U_0}}{L}$. Ce nombre est le rapport entre le temps de relaxation du polymère et un temps caractéristique du procédé. Dans les conditions du procédé, ce nombre adimensionnel est compris entre 10^{-3} et 3.10^{-2}.

Pour alléger l"écriture, les symboles $\bar{X}$ sont notés X dans la suite.

IV.4.3 Solution stationnaire :

La solution stationnaire est obtenue en résolvant le système d"équations suivant :

$$\begin{cases} \tan\theta = \dfrac{dY}{dx} & \text{(IV.45.a)} \\ \dfrac{d}{dx}(eU) = 0 & \text{(IV.45.b)} \\ F = e\sigma_t & \text{(IV.45.c)} \\ \dfrac{dF}{dx} = 0 & \text{(IV.45.d)} \\ \sigma_t + De\left[U\ \cos\theta\dfrac{d\sigma_t}{dx} - 2\cos\theta\dfrac{dU}{dx}\sigma_t - 4\cos\theta\dfrac{dU}{dx}\sigma_n'\right] = 4\cos\theta\dfrac{dU}{dx} & \text{(IV.45.e)} \\ \sigma_n' + De\left[U\cos\theta\dfrac{d\sigma_n'}{dx} + 2\cos\theta\dfrac{dU}{dx}\sigma_n'\right] = -2\cos\theta\dfrac{dU}{dx} & \text{(IV.45.f)} \\ F(\cos\theta)^3\dfrac{d^2Y}{dx^2} = B & \text{(IV.45.g)} \end{cases}$$

Les conditions aux limites sont celles données par les équations (IV.43.h) et (IV.43.i).

IV.4.3.1 Calcul de la géométrie :

En dérivant l"équation (IV.45.a) par rapport à la variable x on obtient :

$$\frac{d\theta}{dx} = \cos(\theta)^2\frac{d^2Y}{dx^2} \qquad \text{(IV.46)}$$

La combinaison de cette équation avec l"équation (IV.45.g) donne

$$F\cos(\theta)\frac{d\theta}{dx} = B \qquad \text{(IV.47)}$$

Ce qui conduit à :

$$\frac{d}{dx}(\sin\theta) = \frac{B}{F} \qquad \text{(IV.48)}$$

Grâce à des considérations de symétrie par rapport au plan moyen de la membrane, on obtient

$$\sin(\theta(x)) = \frac{B}{F}\left(x - \frac{1}{2}\right) \qquad \text{(IV.49)}$$

IV.4.3.2 Calcul de la vitesse :

L"équation (IV.45.b) et la condition initiale (IV.43.h) conduisent à $eU = 1$.

En dérivant l"équation (IV.45.c) par rapport à la variable x et en utilisant l"équation (IV.45.d) on obtient :

$$\frac{de}{dx}\sigma_t + \frac{d\sigma_t}{dx}e = 0 \qquad \text{(IV.50)}$$

Sachant que $eU = 1$, l"équation (50) devient :

$$-\frac{\sigma_t}{U^2}\frac{dU}{dx} + \frac{1}{U}\frac{d\sigma_t}{dx} = 0 \qquad \text{(IV.51)}$$

Les équations (IV.45.e), (IV.45.f) et (IV.51) donnent un système différentiel à trois équations et trois inconnues $U(x),\ \sigma_t(x)\ et\ \sigma_n^{'}(x)$.

$$\begin{cases} De\ U\ \cos\theta\frac{d\sigma_t}{dx} - \left[4\cos\theta\ De\ \sigma_n^{'} + 2\cos\theta\ De\ \sigma_t + 4\cos\theta\right]\frac{dU}{dx} = -\sigma_t \\ De\ U\cos\theta\frac{d\sigma_n^{'}}{dx} + \left[2\cos\theta\ De\ \sigma_n^{'} + 2\cos\theta\right]\frac{dU}{dx} = -\sigma_n^{'} \\ -\frac{\sigma_t}{U^2}\frac{dU}{dx} + \frac{1}{U}\frac{d\sigma_t}{dx} = 0 \end{cases} \qquad \text{(IV.52)}$$

Ce système peut être écrit sous forme matricielle comme suit :

$$A\frac{d}{dx}\begin{bmatrix} U \\ \sigma_t \\ \sigma_n' \end{bmatrix} = f(U, \sigma_t, \sigma_n') = \begin{bmatrix} -\sigma_t \\ -\sigma_n' \\ 0 \end{bmatrix} \qquad \text{(IV.53)}$$

avec A la matrice 3x3 suivante :

$$A = \begin{bmatrix} -4\cos\theta\ De\ \sigma_n^{'} - 2\cos\theta\ De\ \sigma_t - 4\cos\theta & De\ U\ \cos\theta & 0 \\ 2\cos\theta\ De\ \sigma_n^{'} + 2\cos\theta & 0 & De\ U\ \cos\theta \\ -\frac{\sigma_t}{U^2} & \frac{1}{U} & 0 \end{bmatrix}$$

Les conditions aux limites utilisées dans la résolution de ce problème sont données par :

- En $x = 0$:

$$U(0) = \frac{1}{\cos(\theta(0))}\ ;\ \sigma_t(0) = \frac{F}{\cos(\theta(0))} = \frac{F}{\sqrt{1 - \left(\frac{B}{2F}\right)^2}}\ ;\ \sigma_n'(0) = 0 \qquad \text{(IV.54)}$$

- En $x = 1$:

$$U(1) = Dr \qquad \text{(IV.55)}$$

Ayant trois conditions initiales, le système différentiel (IV.53) peut être résolu connaissant F, B, Dr et De. Cependant, la force d"étirage F est une inconnue du problème qui est déterminée par la condition aux limites (IV.55). La solution stationnaire du problème est ainsi calculée en utilisant une méthode de Runge-Kutta d"ordre 4 couplée à une méthode de tir sur la force d"étirage F. Les autres inconnues du problème peuvent être calculées facilement en post-processing. Ainsi, pour chaque triplet (Dr, B,De) donné, il est possible de calculer une solution stationnaire du problème si elle existe.

IV.4.3.3 Résultats :

Plusieurs simulations sont réalisées afin d"étudier l"influence des trois nombres adimensionnels Dr, De et B sur la solution stationnaire du problème.

Similairement au cas newtonien, on constate que l"augmentation du taux d"étirage augmente le rayon de courbure de la courbe moyenne de la membrane et que l"augmentation du nombre adimensionnel B réduit le rayon de courbure de la courbe moyenne de la membrane. De plus, une zone d"absence de solution stationnaire a été également obtenue pour les faibles taux d"étirage.

IV.4.3.3.1 Mise en évidence d'une zone inatteignable :

On constate que pour chaque valeur du nombre de Deborah, il est impossible de calculer une solution stationnaire du problème au-dessus d"un taux d"étirage critique. On met donc en évidence, mathématiquement, une zone inatteignable qui correspond physiquement à des conditions pour lesquelles il n"est pas possible d"étirer le film de polymère (figure IV.22). La zone d"absence de solution stationnaire n"a pas été représentée sur la figure IV.22 parce qu"elle dépend fortement de B.

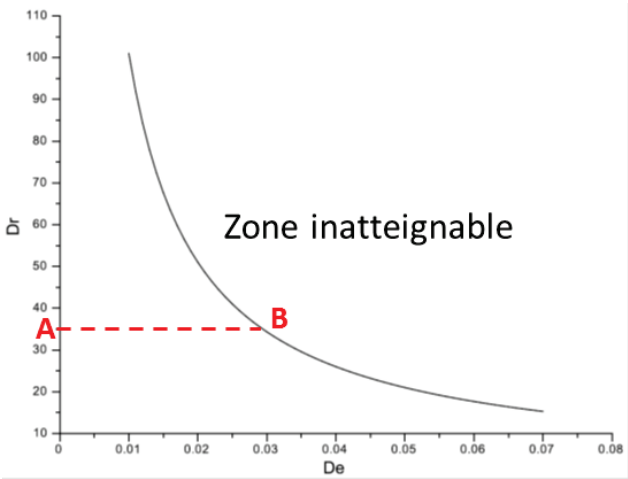


Figure IV.22 - Représentation de la zone inatteignable

La figure IV.23 montre l"évolution du taux d"étirage en fonction de la force d"étirage pour $De = 0.05$ et $B = 5$. On constate que même en considérant des forces d"étirage très élevées, on ne dépasse pas un taux d"étirage critique $Dr_c = 21$. On observe également que la force d"étirage devient infinie au voisinage de la zone inatteignable. On retrouve donc la même

zone inatteignable que Silagy et *al.* [Silagy, 1998]. Ce résultat est contingent du modèle de Maxwell utilisé mais d"autres modèles rhéologiques (Phan-Thien-Tanner par exemple) donnent eux aussi des forces d"étirages très élevées même s"il n"y a pas à proprement parler disparition de la solution (voir paragraphe IV.1). Notons que cette zone inatteignable est considérée dans la littérature comme une zone de casse [Bourrigaud, 2006].

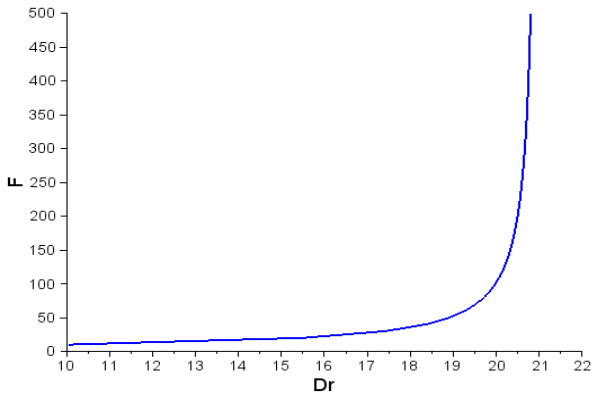


Figure IV.23 - Evolution du taux d'étirage en fonction de la force d'étirage pour B=5 et De=0.05

Il est à noter que la zone inatteignable est indépendante du nombre adimensionnel B. Cela est expliqué par le fait que le taux d"étirage critique correspond à des forces d"étirage très élevées par rapport au nombre adimensionnel B et donc la variation de ce dernier n"a pas d"influence sur le taux d"étirage critique.

IV.4.3.3.2 Influence du nombre de Deborah sur la forme de la solution stationnaire :

On considère un taux d"étirage $Dr = 25$ et un nombre adimensionnel $B = 5$ et on varie uniquement le nombre de Deborah en se déplaçant à taux d"étirage constant du point A vers le point B sur la figure IV.22 ($De = 0$ correspond au cas d"un liquide newtonien). La figure IV.24 montre l"évolution du rayon de courbure de la courbe moyenne de la membrane en fonction du nombre de Deborah.

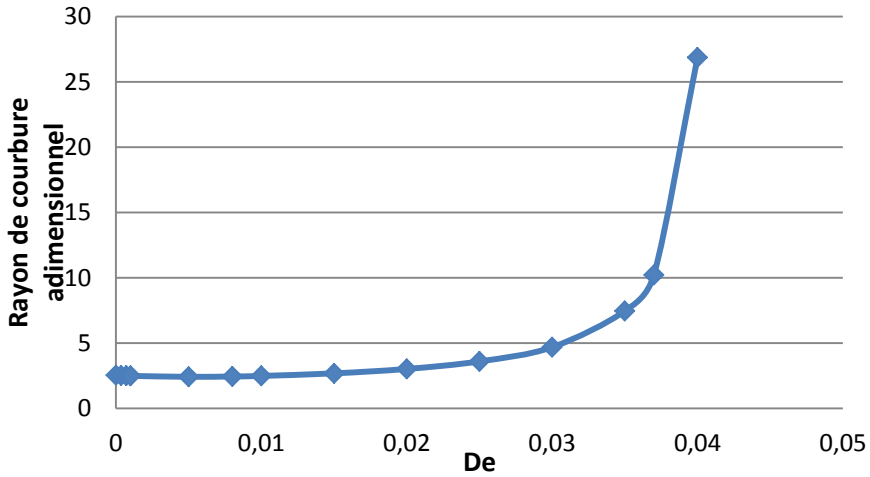


Figure IV.24 - Evolution du rayon de courbure de la courbe moyenne de la membrane en fonction de De pour Dr=25 et B=5

On constate que la courbure de la membrane ne dépend du nombre de Deborah qu"au voisinage du taux d"étirage critique où son rayon augmente considérablement. En effet, d"après le paragraphe précédent, la force d"étirage augmente considérablement quand on s"approche de la zone inatteignable, ce qui aboutit à tendre la membrane et faire disparaître ainsi sa courbure. La figure IV.25 montre la forme des membranes obtenues en considérant respectivement un liquide newtonien et un liquide viscoélastique correspondant à $De = 0.03$. L"augmentation du nombre de Deborah engendre non seulement l"augmentation du rayon de courbure mais modifie également le profil de vitesse : quand l"élasticité augmente, la vitesse tend vers un profil linéaire (figure IV.26).

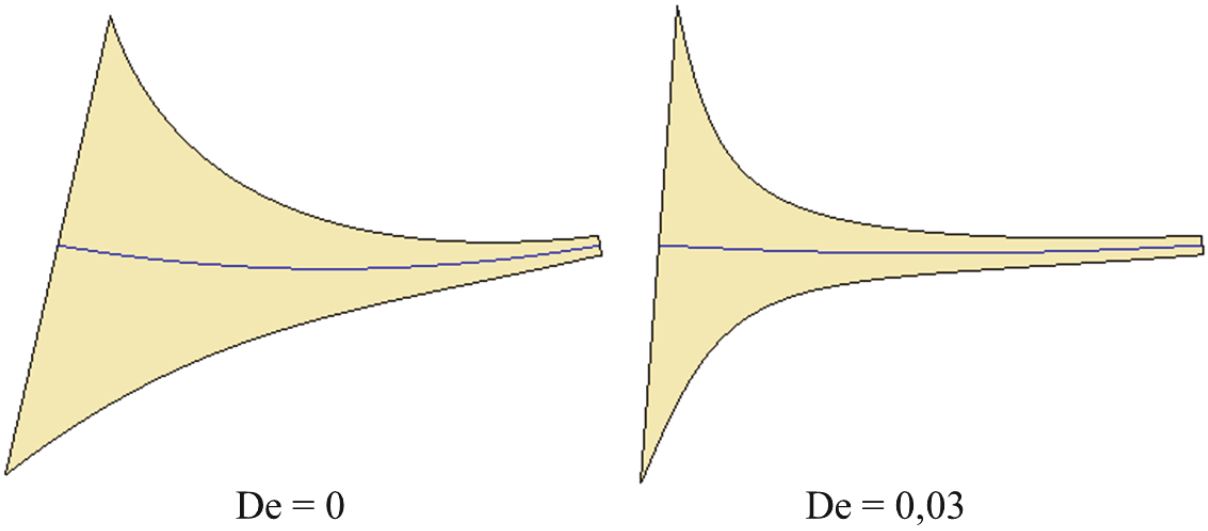


Figure IV.25 - Evolution de la forme de la membrane en fonction de De pour Dr=25 et B=5

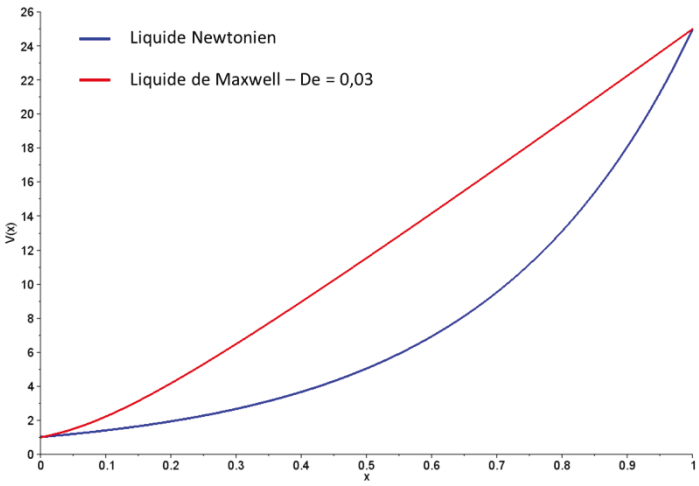


Figure IV.26 - Comparaison du cas viscoélastique De=0.03 au cas Newtonien en termes de profil de vitesse pour Dr=25 et B=5

IV.4.4 Stabilité de la solution stationnaire : méthode de stabilité linéaire

Ayant une solution stationnaire du problème, il est important de vérifier s"il s"agit d"un équilibre stable ou instable. Pour ce faire, la méthode de stabilité linéaire sera utilisée. Le principe de la méthode de stabilité linéaire a été détaillé au paragraphe (IV.3.4.1) et ne sera pas repris ici.

IV.4.4.1 Les équations instationnaires :

En appliquant la procédure du paragraphe (IV.3.4.1) au système d"équations (IV.44.a – IV.44.g) et aux conditions aux limites, on obtient les équations linéarisées suivantes :

$$\hat{\theta} = (\cos\bar{\theta})^2 \frac{d\hat{Y}}{dx} \tag{IV.56.a}$$

$$\Lambda \frac{\hat{e}}{\cos\bar{\theta}} + \Lambda\, \bar{e}\, \sin\bar{\theta}\, \frac{d\hat{Y}}{dx} + \bar{U}\frac{d\hat{e}}{dx} + \bar{e}\frac{d\hat{U}}{dx} + \hat{U}\frac{d\bar{e}}{dx} + \hat{e}\frac{d\bar{U}}{dx} = 0 \tag{IV.56.b}$$

$$\hat{F} = \hat{e}\bar{\sigma_t} + \bar{e}\hat{\sigma_t} \tag{IV.56.c}$$

$$\frac{d\hat{F}}{dx} = 0 \tag{IV.56.d}$$

$$\begin{aligned}\hat{\sigma}_t + De\Big[\mu\,\hat{\sigma}_t &+ \hat{U}\,\cos\bar{\theta}\frac{d\bar{\sigma_t}}{dx} - \bar{U}\sin\bar{\theta}\,(\cos\bar{\theta})^2\,\frac{d\hat{Y}}{dx}\frac{d\bar{\sigma_t}}{dx} \\ &+ \bar{U}\cos\bar{\theta}\frac{d\hat{\sigma_t}}{dx} + 2\sin\bar{\theta}\,(\cos\bar{\theta})^2\,\frac{d\hat{Y}}{dx}\frac{d\bar{U}}{dx}\bar{\sigma_t} \\ &- 2\cos\bar{\theta}\frac{d\hat{U}}{dx}\bar{\sigma_t} - 2\cos\bar{\theta}\frac{d\bar{U}}{dx}\hat{\sigma_t} \\ &+ 4\sin\bar{\theta}\,(\cos\bar{\theta})^2\,\frac{d\hat{Y}}{dx}\frac{d\bar{U}}{dx}\overline{\sigma_n'} - 4\cos\bar{\theta}\frac{d\hat{U}}{dx}\overline{\sigma_n'} \\ &- 4\cos\bar{\theta}\frac{d\bar{U}}{dx}\widehat{\sigma_n'}\Big] \\ &= -4\sin\bar{\theta}\,(\cos\bar{\theta})^2\,\frac{d\hat{Y}}{dx}\frac{d\bar{U}}{dx} + 4\cos\bar{\theta}\frac{d\hat{U}}{dx}\end{aligned} \tag{IV.56.e}$$

$$\begin{aligned}\widehat{\sigma_n'} + De\Big[\mu\,\widehat{\sigma_n'} &+ \hat{U}\cos\bar{\theta}\frac{d\overline{\sigma_n'}}{dx} - \bar{U}\sin\bar{\theta}\,(\cos\bar{\theta})^2\,\frac{d\hat{Y}}{dx}\frac{d\overline{\sigma_n'}}{dx} \\ &+ \bar{U}\cos\bar{\theta}\frac{d\widehat{\sigma_n'}}{dx} - 2\sin\bar{\theta}\,(\cos\bar{\theta})^2\,\frac{d\hat{Y}}{dx}\frac{d\bar{U}}{dx}\overline{\sigma_n'} \\ &+ 2\cos\bar{\theta}\frac{d\hat{U}}{dx}\overline{\sigma_n'} + 2\cos\bar{\theta}\frac{d\bar{U}}{dx}\widehat{\sigma_n'}\Big] \\ &= 2\sin\bar{\theta}\,(\cos\bar{\theta})^2\,\frac{d\hat{Y}}{dx}\frac{d\bar{U}}{dx} - 2\cos\bar{\theta}\frac{d\hat{U}}{dx}\end{aligned} \tag{IV.56.f}$$

$$\hat{F}(\cos\bar{\theta})^3\,\frac{d^2\bar{Y}}{dx^2} - 3\,\bar{F}\,\sin\bar{\theta}\,(\cos\bar{\theta})^4\,\frac{d^2\bar{Y}}{dx^2}\,\frac{d\hat{Y}}{dx} + \bar{F}(\cos\bar{\theta})^3\,\frac{d^2\hat{Y}}{dx^2} = 0 \quad \text{(IV.56.g)}$$

Les conditions aux limites associées à ce système d"équations différentielles s"écrivent :

- En $x = 0$:

$$\hat{U}(0) = \sin\big(\bar{\theta}(0)\big)\frac{d\hat{Y}}{dx}(0)$$

$$\hat{e}(0) = -\sin\bar{\theta}(0)\;\left(\cos\bar{\theta}(0)\right)^2\,\frac{d\hat{Y}}{dx}(0) \qquad \text{(IV.56.h)}$$

$$\widehat{\sigma_t}(0) = \bar{U}\left(F + \sin\bar{\theta}(0)\;\left(\cos\bar{\theta}(0)\right)^2\,\frac{d\hat{Y}}{dx}(0)\,\bar{\sigma_t}(0)\right)$$

$$\widehat{\sigma_n'}(0) = 0$$

- En $x = 1$:

$$\hat{U}(1) = 0\,;\;\hat{Y}(1) = 0 \qquad \text{(IV.56.g)}$$

IV.4.4.2 La résolution numérique du problème aux valeurs propres :

Les équations linéarisées obtenues sont similaires à celles du problème newtonien à l"exception des équations (IV.56.e) et (IV.56.f). Donc, l"expression de $\hat{Y}(x)$ établie dans le paragraphe (IV.3.4.3) reste valable.

Après avoir déterminé les expression de $\hat{Y}(x)$ et $\hat{\theta}(x)$, il ne nous reste qu"à trouver les cinq inconnues restantes qui sont $\Lambda, \hat{U}(x), \hat{e}(x), \widehat{\sigma_t}(x)$ et $\widehat{\sigma_n'}(x)$.

La combinaison des équations (IV.56.c) et (IV.56.d) donne

$$\bar{\sigma_t}\frac{d\hat{e}}{dx} + \bar{e}\frac{d\widehat{\sigma_t}}{dx} + \widehat{\sigma_t}\frac{d\bar{e}}{dx} + \hat{e}\frac{d\bar{\sigma_t}}{dx} = 0 \qquad \text{(IV.57)}$$

Les équations (IV.56.b), (IV.56.e), (IV.56.f) et (IV.57) peuvent s"écrire sous la forme matricielle suivante :

$$A^s\,\frac{d}{dx}\begin{bmatrix}\hat{U}\\ \hat{e}\\ \widehat{\sigma_t}\\ \widehat{\sigma_n'}\end{bmatrix} = f\big(\hat{U}, \hat{e}, \widehat{\sigma_t}, \widehat{\sigma_n'}\big) = B^s$$

avec

$$A^s = \begin{bmatrix} -\cos\bar{\theta}\,(De(2\bar{\sigma_t} + 4\overline{\sigma_n'}) + 4) & 0 & De\,\bar{U}\cos\bar{\theta} & 0\\ 2\cos\bar{\theta}\,(De\,\overline{\sigma_n'} + 1) & 0 & 0 & De\,\bar{U}\cos\bar{\theta}\\ 0 & \bar{\sigma_t} & \bar{e} & 0\\ \bar{e} & \bar{U} & 0 & 0 \end{bmatrix}$$

$$B^s = \begin{bmatrix} B_1^s \\ B_2^s \\ -\hat{\sigma}_t \dfrac{d\bar{e}}{dx} - \hat{e}\dfrac{d\bar{\sigma}_t}{dx} \\ -\hat{e}\left(\dfrac{\Lambda}{\cos\bar{\theta}} + \dfrac{d\bar{U}}{dx}\right) - \hat{U}\dfrac{d\bar{e}}{dx} - \Lambda\,\bar{e}\,\sin\bar{\theta}\,\dfrac{d\hat{Y}}{dx} \end{bmatrix}$$

$$B_1^s = -\widehat{\sigma_t}\left(1 + De\,\mu - 2\,\mathrm{De}\cos\bar{\theta}\frac{d\bar{U}}{dx}\right) + 4De\cos\bar{\theta}\frac{d\bar{U}}{dx}\widehat{\sigma_n'} - De\hat{U}\,\cos\bar{\theta}\frac{d\bar{\sigma}_t}{dx}$$
$$-\frac{d\hat{Y}}{dx}\left(\sin\bar{\theta}\,(\cos\bar{\theta})^2\left(De\left(2\frac{d\bar{U}}{dx}\bar{\sigma}_t - \bar{U}\frac{d\bar{\sigma}_t}{dx} + 4\frac{d\bar{U}}{dx}\overline{\sigma_n'}\right)\right)\right)$$

$$B_2^s = -\widehat{\sigma_n'}\left(1 + De\,\mu + 2\,\mathrm{De}\cos\bar{\theta}\frac{d\bar{U}}{dx}\right) - De\hat{U}\,\cos\bar{\theta}\frac{d\overline{\sigma_n'}}{dx}$$
$$+\frac{d\hat{Y}}{dx}\left(\sin\bar{\theta}\,(\cos\bar{\theta})^2\left(De\left(\bar{U}\frac{d\overline{\sigma_n'}}{dx} + 2\frac{d\bar{U}}{dx}\overline{\sigma_n'}\right) + 2\frac{d\bar{U}}{dx}\right)\right)$$

Ce système différentiel est combiné avec les conditions initiales suivantes :

$$\begin{cases} \hat{U}(0) = \dfrac{1}{2}\sin\big(\bar{\theta}(0)\big)\dfrac{d^2\bar{Y}}{dx^2}(0) \\ \hat{e}(0) = -\dfrac{1}{2}\sin\bar{\theta}(0)\;\left(\cos\bar{\theta}(0)\right)^2\dfrac{d^2\bar{Y}}{dx^2}(0) \\ \widehat{\sigma_t}(0) = \bar{U}\left(F + \dfrac{1}{2}\sin\bar{\theta}(0)\;\left(\cos\bar{\theta}(0)\right)^2\dfrac{d^2\bar{Y}}{dx^2}(0)\;\bar{\sigma}_t(0)\right) \\ \widehat{\sigma_n'}(0) = 0 \end{cases}$$

Pour un triplet (Dr, De, B) donné, la résolution de ce système différentiel est identique à celle du problème newtonien. En effet, une méthode de Runge-Kutta d"ordre 4 combinée à une méthode de tir sur la valeur propre Λ permet d"obtenir une solution du problème aux valeurs propre, c"est à dire la valeur propre dominante ainsi que ses vecteurs propres associés. La détermination de la valeur propre Λ est assurée par une méthode de tir associée à une boucle de Newton-Raphson.

IV.4.4.3 Résultats :

On étudie la stabilité de la solution stationnaire à l"aide de la méthode de stabilité linéaire en fonction de trois nombres adimensionnels : le taux d"étirage Dr, le nombre de Deborah De et le nombre B.

D"après les résultats du problème viscoélastique stationnaire (IV.4.3.3), on a montré que la position de la zone inatteignable ne dépend pas de la valeur de B. La figure IV.27 montre les domaines stables, instables et inatteignables du plan (Dr, De) pour différents valeurs de B. Il est à noter que pour des fins de simplicité, la zone d"absence de solution stationnaire n"a pas été représentée.

En considérant un très faible nombre de Deborah, pour chaque valeur de B, on retrouve bien les mêmes taux d'étirage critiques obtenus avec le modèle membrane newtonien (voir le paragraphe IV.3.4.4) ce qui représente une validation de ces deux modèles.

En considérant une valeur du nombre adimensionnel B fixée, on remarque que, pour un nombre de Deborah inférieur à une certaine valeur critique (qui dépend de B), on obtient quasiment le même taux d'étirage critique que le modèle newtonien, ce qui signifie que la viscoélasticité n'a pas d'influence sur la stabilité dans ce cas. Cependant, au-delà de cette valeur critique, la zone d'instabilités disparaît et le procédé atteint des taux d'étirage beaucoup plus élevés tout en étant stable.

Pour un nombre de Deborah compris entre 0 et cette valeur critique, on met en évidence une deuxième zone stable obtenue pour des nombres de Deborah faibles et des taux d'étirage élevés. Cette zone permet au procédé d'atteindre des taux d'étirage élevés, pour des nombres de Deborah inférieurs à la valeur critique définie précédemment et même avec un différentiel de pression nul, tout en étant stable. Cette zone n'est pas un artéfact mathématique puisqu'un brevet a été déposé pour le procédé *Cast film* afin de travailler dans ces conditions d'étirage très stables [Chambon, 1998]

En outre, on remarque que plus on augmente le nombre adimensionnel B, plus le domaine instable devient réduit, ce qui signifie que, similairement au cas newtonien, l'augmentation de B permet de stabiliser le procédé dans le cas viscoélastique. Notons que cette augmentation de B produit un effet similaire à celui obtenu par Silagy et *al.* avec un modèle membrane 1D viscoélastique en augmentant le facteur de forme longitudinal $I = \frac{L}{W_0}$ (figure IV.2) [Silagy, 1998].

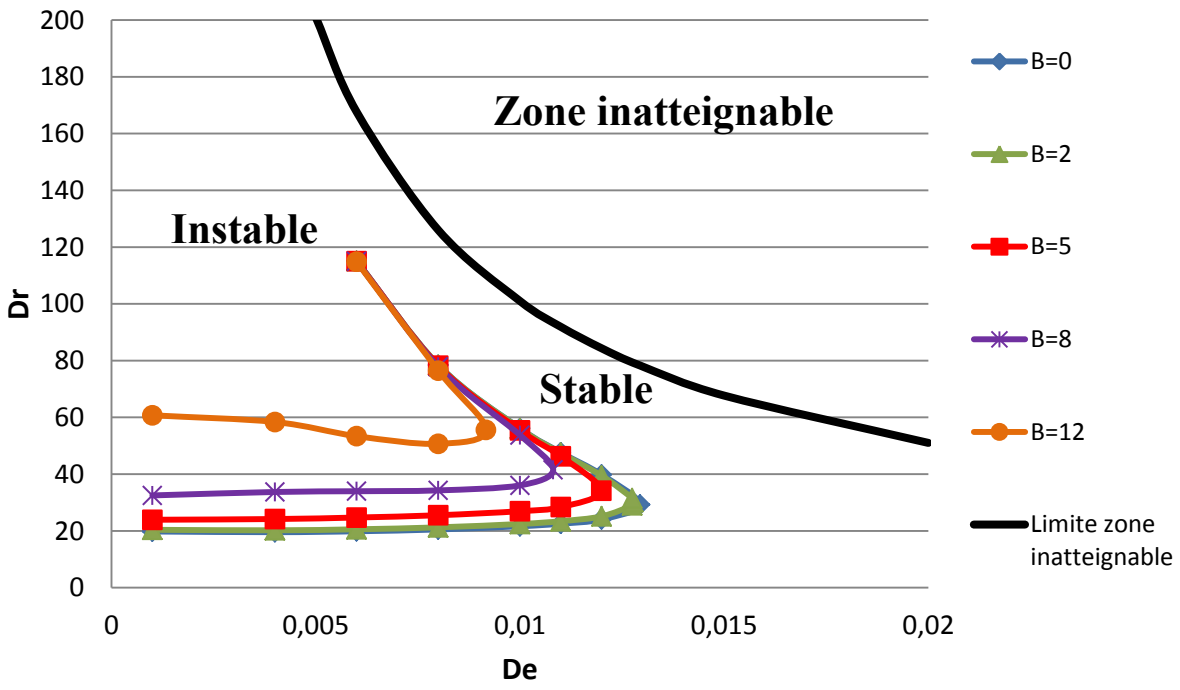


Figure IV.27 - Evolution du domaine instable en fonction de Dr, De et B

Enfin, quand on augmente le nombre de Deborah, ce qui correspond à augmenter la vitesse moyenne d"extrusion, à réduire la distance d"étirage ou bien à augmenter l"élasticité du polymère, on diminue le taux d"étirage que l"on peut atteindre sans rencontrer la zone inatteignable, ce qui peut correspondre à la rupture du film [Bourrigaud, 2006].

IV.5 Conclusion

Nous avons présenté dans ce chapitre une approche pour modéliser le procédé « Revoluflex » en utilisant un modèle de type membrane. Deux lois de comportement ont été considérées : une loi newtonienne et une loi viscoélastique de Maxwell. Les modèles développés ont été étudiés à la fois dans des conditions stationnaires et instationnaires.

Nous avons montré que la solution stationnaire dépend peu de la condition initiale mais significativement de la loi de comportement. En effet, la forme de la solution stationnaire reste comparable à celle de la solution Newtonienne mais change brusquement lorsqu"on s"approche de la zone inatteignable.

De plus, on a montré que l"application d"un différentiel de pression entre les deux faces du film extrudé permet la stabilisation du procédé. Cette stabilisation est très influencée par la condition initiale.

Par ailleurs, le choix d"une loi de Maxwell n"est qu"une première approximation du comportement des formulations *hot melt*.

Enfin, c"est le modèle 2D qui va nous permettre d"établir un choix raisonnable de la condition initiale.

BIBLIOGRAPHIE

[Agassant, 2014] J.-F. Agassant, P. Avenas, J.-P. Sergent, B. Vergnes, and M. Vincent, *Mise en forme des polymères*. Cachan: Lavoisier, 4 ed., 2014.

[André, 2001] J.M. André, Modélisation thermomécanique et structurale du soufflage de gaine de polyéthylènes, Thèse de Doctorat, Ecole des Mines de Paris, 1999.

[Anturkar, 1988] N.R. Anturkar, A. Co, "Draw resonance in film casting of viscoelastic fluids: a linear stability analysis *J. Non-Newt. Fluid Mech.*, vol. 28, 287–307, 1988.

[Beaulne, 1999] M. Beaulne, M. Mitsoulis, "Numerical simulation of the film casting process," *Intern. Polym. Proc.*, vol. 14, pp. 261–275, 1999.

[Bourrigaud, 2006] S. Bourrigaud, G. Marin, V. Dabas, C. Dupuy, D. Silagy, "The Draw ratio-Deborah number diagram: A useful tool for coating applications," *Polym. Eng. Sci.*, vol. 46, 372–380, 2006.

[Chambon, 1998] F. Chambon, D. Silagy, Y. Demay, J.F. Agassant, S. Ohlsson, "A method to reduce draw resonance," Patent 94P 6B 004/006, 1998.

[Debbaut, 1995] B. Debbaut, J.M. Marchal, "Viscoelastic effects in film casting," *Z. Augew. Math. Phys.*, vol. 46, pp. 679–698, 1995.

[Demay, 2014] Y. Demay and J.-F. Agassant, "An overview of molten polymer drawing instabilities," *Int. Polym. Proc.*, vol. 29, pp. 128–139, 2014.

[Denn, 1975] M.M. Denn, C.J.S. Petrie, P. Avenas, "Mechanics of steady spinning of a viscoelastic liquid," *AIChE J.*, vol. 21, pp. 791–799, 1975.

[D"Halewyn, 1990] S. D"Halewyn, Y. Demay, J.F. Agassant, "Numerical simulation of the cast film process," *Polym. Eng. Sci.*, vol. 30, pp. 335–340, 1990.

[Dobroth, 1986] T. Dobroth, L. Erwin, Causes of edge beads in cast films *Polym. Eng. Sci.*, vol. 26, pp. 462-467, 1986.

[Kim, 2005] J.M. Kim, J.S. Lee, D.M. Shin, H.W. Jung, J.C. Hyun, "Transient solutions of the dynamics of film casting process using a 2-D viscoelastic model," *J. Non Newt. Fluid Mech.*, vol. 132, pp. 53–60, 2005.

[Pearson, 1966] J.R.A. Pearson, *Mechanical principles of polymer melt processing.* London: Pergamon Press, 1966.

[Sakaki, 1996] K. Sakaki, R. Katsumoto, T. Kajiwara, K. Funatsu, "Three-dimensional flow simulation of a film-casting process," *Polym. Eng. Sci.*, vol. 36, pp. 1821–1831, 1996.

[Shin, 2007] D.M. Shin, J.S. Lee, J.M. Kim, H.W. Jung, J.C. Hyun, "Transient and steady-state solutions of 2D viscoelastic non-isothermal simulation model of film casting process via finite element method *J. Rheol.*, vol. 5, pp. 393–407, 2007.

[Silagy, 1996] D. Silagy, Y. Demay, J.F. Agassant, "Study of the Stability of the Film Casting Process," *Polym. Eng. Sci.*, vol. 36, pp. 2614–3625, 1996.

[Silagy, 1998] D. Silagy, Y. Demay, J.F. Agassant, "Stationnary and stability analysis of the film casting process," *J. Non-Newtonian Fluid Mech.*, vol. 79, pp. 563–583, 1998.

[Sollogoub, 2006] C. Sollogoub, Y. Demay, J.F. Agassant, "Non-Isothermal viscoelastic numerical model of the cast-film process," *J. Non Newt. Fluid Mech.*, vol. 138, pp. 76–86, 2006.

[Yeow, 1974] Y. Yeow, "On the stability of extending films: a model for the film casting process," *J. Fluid. Mech.*, vol. 66, pp. 613–622, 1974.

[Yoon, 1999] K.-S. Yoon, C.-W. Park, "Stability of a blown film extrusion process," *Int. Polym. Process.*, vol. 14, pp. 342–349, 1999.

Chapitre V : Modèles 2D

Dans le but de tenir compte de la courte distance d'étirage et aussi de s'affranchir du problème de définition des conditions initiales rencontrées avec le modèle membrane, on se propose de développer un modèle 2D dans le plan (x,y). En effet, sachant que l'épaisseur du film extrudé et la distance d'étirage sont négligeables par rapport à la largeur de la filière plate (considérée comme constante), il est possible de supposer que l'écoulement ne dépend pas de la variable spatiale z. Nous faisons toujours l'hypothèse de conditions isothermes et nous négligeons les forces d'inertie et de gravité par rapport aux forces d'étirage visqueuses (nombre de Reynolds $Re \ll 1$; nombre de Jeffreys $Je \ll 1$). Dans un premier temps, nous commençons par présenter un modèle 2D simplifié qui ne tient pas compte d'un différentiel de pression entre les deux faces du film extrudé. Ensuite, nous traitons le cas général qui tient compte de la courte distance d'étirage et du différentiel de pression.

V.1 Modèle 2D Newtonien sans différentiel de pression

En considérant un liquide newtonien, on est confronté à un problème de Stokes 2D sur un domaine du plan (x,y) comportant une surface libre. Comme ce domaine présente une symétrie par rapport à l'axe x, notre étude est réalisée uniquement sur la moitié du domaine (figure V.1). Afin de résoudre ce problème de Stokes 2D, on propose deux approches différentes :

- Une méthode de suivi d'interface (*tracking strategy*) où la position de l'interface est déterminée grâce à l'équation cinématique de l'interface ;
- Une méthode de simulation directe par capture d'interface (*capturing strategy*) où l'écoulement du polymère et de l'air sont considérés ensemble et la position de l'interface est déterminée par le niveau 0 d'une fonction *Level-Set*.

Ces deux stratégies sont présentées puis comparées.

V.1.1 Méthode de suivi d'interface (tracking strategy) :

Nous avons développé une approche de type « *front-tracking* » basée sur une description explicite de l'interface par un ensemble de points connectés entre eux. Le domaine de calcul étant limité au domaine occupé par le polymère (qui est délimité en partie par l'interface), on obtient un maillage qui épouse parfaitement la forme de l'interface. Donc, en modifiant la position de l'interface, un nouveau maillage est reconstruit. Le problème de Stokes est résolu de manière itérative et la position stationnaire de l'interface est obtenue quand l'équation cinématique de l'interface devient satisfaite. Une méthode de décomposition de maillage, qui permet d'adapter le maillage à la solution du problème à moindre coût numérique, a été adoptée.

V.1.1.1 Mise en équations du problème :

Dans le but de modéliser les conditions initiales de manière plus réaliste, ce modèle tient compte de l'écoulement du polymère dans la filière sur une distance égale à la moitié de

l"épaisseur de la filière (figure V.1). Il permet donc de rendre compte de la transition entre un écoulement de cisaillement dans la filière et un écoulement fortement élongationnel dans la zone d"étirage. Ce changement brutal dans les conditions aux limites en sortie de filière induit une singularité géométrique très connue qui engendre des problèmes numériques et doit être traitée d"une manière spécifique.

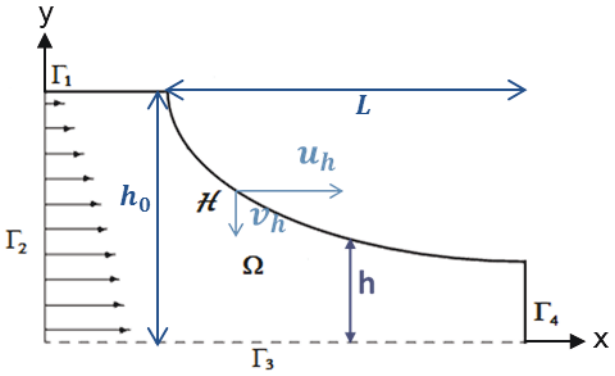


Figure V.1 - Géométrie du domaine d'écoulement

On considère un champ de vitesse 2D sur Ω dans le plan (x,y) :

$$\vec{U} = \begin{bmatrix} u(x,y) \\ v(x,y) \end{bmatrix}$$

Ce champ permet de définir le tenseur de vitesse de déformation suivant :

$$\dot{\epsilon} = \frac{1}{2}\left(\nabla\vec{U} + \nabla\vec{U}^t\right) \tag{V.1}$$

Dans le cas d"un fluide newtonien, le tenseur de contrainte s"écrit :

$$\sigma = 2\eta_p\dot{\epsilon} - p\,Id \tag{V.2}$$

η_p et p étant respectivement la viscosité du polymère et la pression.

En négligeant les forces d"inertie et de gravité, on obtient l"équation d"équilibre suivante :

$$\nabla \cdot \sigma = 0 \tag{V.3}$$

Le polymère étant considéré comme un fluide incompressible, l"équation de conservation de la masse s"écrit :

$$\nabla \cdot \vec{U} = Tr(\dot{\epsilon}) = 0 \tag{V.4}$$

Les équations (V.1) – (V.4) constituent un problème de Stokes classique qui est soumis aux conditions aux bords suivantes (figure V.1) :

- Sur Γ_1 : $\vec{U} = \begin{bmatrix} 0 \\ 0 \end{bmatrix}$
- Sur Γ_2 : Un écoulement de Poiseuille dont la vitesse moyenne $\overline{U_0}$ est imposée
- Sur Γ_3 : Les conditions de symétrie sont imposées ($v = 0$ et $\sigma_{xy} = 0$)
- Sur Γ_4 : La composante u du vecteur vitesse est imposée par $u(L,y) = U_L$ et la composante de cisaillement du tenseur de contraintes σ_{xy} s"annule
- Sur l"interface avec l"air $\mathcal{H}$: la condition d"équilibre s"écrit $\sigma.\vec{n} = \vec{0}$, $\vec{n}$ étant un vecteur normal à l"interface.

Dans le but de transformer ce problème en un problème adimensionnel, on considère $2h_0$ comme échelle des longueurs dans les directions x et y, $\overline{U_0}$ comme échelle des vitesses et $\frac{\eta_p\,\overline{U_0}}{2h_0}$ comme échelle des contraintes. Notons que l'hypothèse membrane $\frac{L}{2h_0} \gg 1$ n'est plus vérifiée et donc il est important de faire apparaître un rapport d'aspect. C'est pourquoi, contrairement aux modèles membrane, nous avons adimensionné la longueur par rapport à $2h_0$ dans les deux directions x et y.

On pose $\bar{x} = \frac{x}{2h_0}$, $\bar{y} = \frac{y}{2h_0}$, $\bar{u}(\bar{x},\bar{y}) = \frac{u(x,y)}{\overline{U_0}}$, $\bar{v}(\bar{x},\bar{y}) = \frac{v(x,y)}{\overline{U_0}}$, $\bar{\sigma} = \frac{2h_0}{\eta_p\,\overline{U_0}}\sigma$, $A = \frac{L}{2h_0}$ et $Dr = \frac{U_L}{\overline{U_0}}$.

On obtient le problème adimensionnel suivant :

$$\begin{cases} \bar{\sigma} = 2\dot{\bar{\epsilon}} - \bar{p}\,Id \\ \nabla \cdot \bar{\sigma} = 0 \\ \nabla \cdot \vec{\bar{U}} = 0 \end{cases} \tag{V.5}$$

Les conditions aux limites sont données par :

- Sur Γ_1 : $\vec{\bar{U}} = \begin{bmatrix} 0 \\ 0 \end{bmatrix}$
- Sur Γ_2 : $\overline{U_0} = 1$
- Sur Γ_3 : $\bar{v} = 0$ et $\overline{\sigma_{xy}} = 0$
- Sur Γ_4 : $\bar{u}(A,\bar{y}) = Dr$ et $\overline{\sigma_{xy}} = 0$
- Sur l'interface avec l'air $\mathcal{H}$: $\bar{\sigma}.\vec{n} = \vec{0}$

Cet adimensionnement nous permet de définir deux nombres adimensionnels importants :

- Le taux d'étirage $Dr = \frac{U_L}{\overline{U_0}}$ qui a la même expression que dans le modèle membrane.
- Le facteur de forme $A = \frac{L}{2h_0}$

Dans la suite, les symboles $\bar{X}$ sont notés simplement X pour alléger l'écriture.

La combinaison du système (V.5) avec ces conditions aux bords forme un problème de Stokes classique sur le domaine Ω. Connaissant la position de l'interface avec l'air $\mathcal{H}$, il est possible de résoudre ce problème et de déterminer les champs de vitesse et de pression à l'état stationnaire. Cependant, la position de l'interface à l'état stationnaire $h(x)$ étant une inconnue du problème, une condition supplémentaire de non miscibilité est nécessaire pour la déterminer. Le régime stationnaire étant établi, cette condition de non miscibilité est donnée par :

$$\vec{\mathrm{U}}.\vec{n} = 0 \tag{V.6}$$

C'est à dire :

$$F(h) = -\mathrm{u}_h \frac{\partial h}{\partial x} + v_h = 0 \tag{V.7}$$

avec $\mathrm{u}_h = u(x,h(x))$ et $v_h = v(x,h(x))$

V.1.1.2 Problème stationnaire : la résolution numérique :

Afin de déterminer la position de l"interface $\mathcal{H}$ à l"état stationnaire, l"équation (V.7) est résolue itérativement. L"interface est initialisée par la solution analytique du modèle membrane 1D à largeur constante. Le domaine Ω étant bien défini, une méthode d"éléments finis permet de résoudre le problème de Stokes sur Ω et de déterminer les champs u, v et p. Puis, quelques itérations d"une méthode du point fixe permettent de s"approcher de la solution stationnaire en calculant une nouvelle position de l"interface à partir des champs u et v. Finalement, la position de l"interface à l"état stationnaire est calculée de manière plus précise grâce à des itérations de Newton-Raphson. Dans la suite de ce paragraphe, la méthode d"éléments finis utilisée pour résoudre le problème de Stokes est présentée, puis le maillage et notamment la méthode de décomposition de domaine sont détaillés et finalement les algorithmes du point fixe et de Newton-Raphson sont exposés.

V.1.1.2.1 Le calcul des champs de vitesse et de pression par éléments finis:

La stratégie décrite dans ce paragraphe vise à résoudre le problème de Stokes défini dans (V.1.1.1) pour une interface donnée. Etant donnée une position de l"interface avec l"air $\mathcal{H}$, le problème de Stokes s"écrit classiquement sous la forme d"un problème mixte comme suit : trouver $(U,p) \in \mathcal{V} \times \mathcal{Q}$ tels que

$$a(U,V) + v(V,p) = 0 \qquad \forall\, V \in \mathcal{V} \qquad \text{(V.8.a)}$$
$$b(U,q) = 0 \qquad \forall\, q \in \mathcal{Q} \qquad \text{(V.8.b)}$$

avec $a(U,V) = 2\int_\Omega \eta_p\, \dot{\epsilon}(U) : \dot{\epsilon}(V)$ et $b(U,q) = -\int_\Omega p\, div(U)$

Les espaces des fonctions test $\mathcal{V}_h$ et $\mathcal{Q}_h$ sont respectivement des sous-espaces des espaces de Sobolev $\mathcal{V} \subset \left(H_1(\Omega)\right)^2$ et $\mathcal{Q} \subset L^2(\Omega)$ définis par :

$$\mathcal{V} = \left\{V = (V_1, V_2) \in \left(H_1(\Omega)\right)^2;\ V_1 = V_2 = 0\ sur\ \Gamma_1 et\ \Gamma_2;\ V_2 = 0\ sur\ \Gamma_3;\ V_1 = 0\ sur\ \Gamma_3\right\}$$

$$\mathcal{Q} = \left\{q \in L^2(\Omega);\ \int_\Omega q = 0\right\}$$

En considérant une base de $\mathcal{V}_h$ et une base de $\mathcal{Q}_h$, l"approximation variationelle du problème (V.8) s"écrit sous la forme du système linéaire suivant :

$$\begin{bmatrix} A_h & {B_h}^t \\ B_h & 0 \end{bmatrix} \begin{bmatrix} U \\ P \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} F_U \\ 0 \end{bmatrix} \qquad \text{(V.9)}$$

U et P étant les vecteurs des valeurs nodales des champs de vitesse et de pression inconnus et F_U le vecteur second membre selon une condition de Dirichlet pour le champs de vitesse [Ern, 2000]. En utilisant les inégalités de Korn, on montre que la forme bilinéaire $a(.,.)$ est coercive et que par conséquent la matrice A est définie positive. On considère l"élément $\mathcal{P}_1^+ - \mathcal{P}_1$ (Mini élément [Arnold, 1984]) qui satisfait la condition de Babushka-Brezzi-Ladysenskaia (BBL ; voir [Arnold, 1984] pour plus de détails). Cet élément correspond à un élément triangulaire classique de type $\mathcal{P}_1 - \mathcal{P}_1$ enrichi d'une fonction bulle associée à un nœud de calcul situé au centre de gravité de l'élément. Cette bulle est éliminée par la suite grâce à la stratégie de condensation statique, ce qui conduit à un système linéaire ayant la même structure que celui d"un élément $\mathcal{P}_1 - \mathcal{P}_1$ classique :

$$\begin{bmatrix} \widehat{\mathrm{A}}_h & \hat{B}_h{}^t \\ \hat{B}_h & \hat{C}_h \end{bmatrix} \begin{bmatrix} U \\ P \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} \hat{F}_U \\ \hat{F}_p \end{bmatrix} \qquad \text{(V.10)}$$

Dans la suite, et pour des raisons de simplicité, les matrices $\widehat{\mathrm{A}}_h$, $\widehat{\mathrm{B}}_h$, $\widehat{\mathrm{C}}_h$, $\hat{F}_U$ et $\hat{F}_p$ seront notées respectivement A_h, B_h, C_h, F_U et F_p.

V.1.1.2.2 Maillage utilisé et méthode de décomposition de domaine :

Le domaine Ω est défini en renseignant la position de l'interface $\mathcal{H}$. Cette dernière est décrite par l'interpolation linéaire par morceaux suivante :

$$h_i = h(x_i)\ ;\ 0 \leq i \leq N\ ;\ x_0 = 0\ ;\ x_N = A$$

$h_0 = 0.5$ étant la moitié de l'épaisseur de la filière (d'après l'adimensionnement) et h_1 ... h_N les paramètres inconnus de l'interface.

Un maillage structuré est utilisé afin de faciliter le contrôle des numéros des différents nœuds du maillage. Ce maillage structuré est obtenu en deux étapes : Un domaine de référence $\Omega_{ref} = [-h_0; A] \times [0; h_0]$ est défini et un maillage structuré associé est créé. Ensuite, un maillage structuré du domaine Ω est obtenu en déformant le maillage du domaine de référence sur l'intervalle $[0; A]$ par la transformation suivante :

$$(x, y) \longmapsto \left(x, y\frac{h(x)}{h_0}\right)$$

Afin d'éviter les problèmes numériques induits par la singularité de contraintes en sortie de filière, le maillage obtenu doit être raffiné au voisinage de cette singularité. Comme l'effet de cette singularité est connu et, dans le but d'éviter une adaptation de maillage, le maillage du domaine de référence est raffiné radialement autour du centre de la singularité $(0; h_0)$ dans l'intervalle $[-h_0; h_0]$ (figure V.2). Ce raffinement de maillage au voisinage de la singularité de contraintes est validé en testant le code de calcul avec une condition de Dirichlet sur Γ_4 (une vitesse nulle). En effet, le gonflement en sortie de filière de 19% connu dans la littérature a été retrouvé [Mitsoulis, 1984].

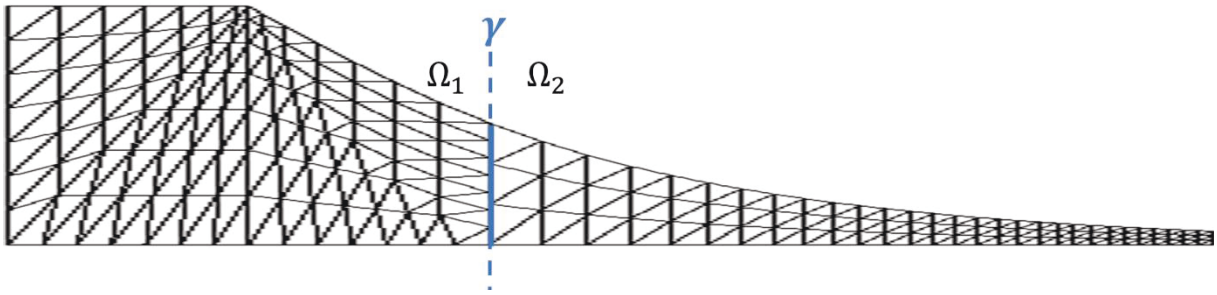


Figure V.2 - Maillage du domaine d'écoulement

Il est clair qu'on est confronté à un écoulement de cisaillement simple dans la filière qui évolue vers un écoulement purement élongationnel après la sortie de filière. En effet, lors de cette transition, les termes de cisaillement s'évanouissent progressivement en sortie de filière pour laisser la place aux termes d'élongation qui deviennent de plus en plus dominants le long du trajet de l'étirage. De plus, dans la partie terminale du trajet de l'étirage, la composante v

du vecteur vitesse ainsi que son gradient selon l'axe y deviennent négligeables devant la composante u du vecteur vitesse ainsi que son gradient selon l'axe x. Dans cette partie du domaine, il est donc nécessaire de raffiner le maillage principalement dans la direction x. Ayant considéré un maillage structuré, et étant donné que le maillage a été raffiné selon les deux directions x et y au voisinage de la singularité, on se retrouve avec un raffinement de maillage inutile (selon y) au niveau de la zone terminale de l'écoulement. C'est pourquoi, une méthode de décomposition de domaine qui permet d'avoir un maillage adapté à la solution du problème à moindre coût numérique, a été adoptée [Cockburn, 1998]. Cette méthode assure un bon compromis entre garder un maillage structuré et choisir la direction selon laquelle le maillage est raffiné dans chaque région du domaine Ω. On trouve dans la littérature plusieurs approches relatives à la décomposition de domaine : les approches classiques sont la méthode Mortar (Mortar element method) ([Bernardi, 1992], [Ben Belgacem, 2000]) et la méthode de Galerkin discontinue.

Dans notre problème, on décompose le domaine Ω en deux sous-domaines Ω_1 et Ω_2 qui ne se chevauchent pas :

$$\overline{\Omega} = \overline{\Omega}_1 \cup \overline{\Omega}_2 \quad ; \quad \Omega_1 \cap \Omega_2 = \emptyset \quad ; \quad \overline{\Omega}_1 \cap \overline{\Omega}_2 = \gamma \qquad \text{(V.11)}$$

Ω_1 représente le sous-domaine contenant la singularité de contrainte, Ω_2 représente le sous-domaine contenant la zone terminale de l'étirage et γ représente la ligne de raccordement située à $x_\gamma = h_0$. Sur chaque sous-domaine, on définit un maillage adapté à la forme de la solution de façon à ce que les nœuds des deux maillages qui se trouvent sur la ligne de raccordement γ ne coïncident pas. Une technique de couplage qui sera détaillée dans la suite du paragraphe permet de raccorder les champs de vitesse et de pression définis sur les deux maillages à travers les nœuds qui se trouvent sur la ligne γ. On note par U^k et P^k les vecteurs nodaux relatifs aux champs de vitesse et de pression dans le sous-domaine Ω_k , $k = 1\ ou\ 2$. On note également par A^k, B^k, C^k, F_U^k et F_p^k les matrices du système linéaire du problème de Stokes obtenues après l'assemblage et la condensation statique sur le sous-domaine Ω_k.

La continuité de l'écoulement sur la ligne de raccordement γ s'écrit :

$$\mathrm{U}^1(y) = \mathrm{U}^2(y) \quad ; \quad \mathrm{p}^1(y) = \mathrm{p}^2(y) \qquad \forall\, y \in \gamma \qquad \text{(V.12)}$$

Comme les champs de vitesse et de pression sont déterminés uniquement aux nœuds, cette condition est imposée par interpolation linéaire sur γ.

Les nœuds sont numérotés dans chaque sous domaine de façon à avoir :

$$U^1 = \left[U_I^1, U_\gamma^1\right]^t \ ; \ \ U^2 = \left[U_\gamma^2, U_I^2\right]^t \ ; \ \ P^1 = \left[P_I^1, P_\gamma^1\right]^t \ ; \ \ P^2 = \left[P_\gamma^2, P_I^2\right]^t$$

où U_γ^k (respectivement P_γ^k) est le vecteur nodal associé au champ de vitesse (respectivement pression) aux nœuds du domaine Ω_k qui appartiennent à la ligne de raccordement γ et U_I^k (respectivement P_I^k) est le vecteur nodal associé au champ de vitesse (respectivement pression) aux nœuds du domaine Ω_k qui n'appartiennent pas à la ligne de raccordement γ. On pose donc $U = [U^1, U^2]^t$ et $P = [P^1, P^2]^t$.

Concernant l'interpolation linéaire de la condition de continuité, nous avons choisi de considérer le sous-domaine Ω_1 comme « maître » (master) et le sous-domaine Ω_2 comme

« esclave» (slave), ce qui veut dire que les valeurs des vecteurs nodaux U_γ^2 et P_γ^2 sont déterminés par interpolation sur γ à partir des vecteurs U_γ^1 et P_γ^1. Ce choix est justifié par le fait que le maillage du sous-domaine Ω_1 est plus fin dans la direction y.

Ainsi, dans le cas du champ de pression, on obtient la relation matricielle suivante :

$$\begin{bmatrix} P_I^1 \\ P_\gamma^1 \\ P_\gamma^2 \\ P_I^2 \end{bmatrix} = \tilde{Q}_p \begin{bmatrix} P_I^1 \\ P_\gamma^1 \\ P_I^2 \end{bmatrix} \quad avec \quad \tilde{Q}_p = \begin{bmatrix} Id & 0 & 0 \\ 0 & Id & 0 \\ 0 & Q_p & 0 \\ 0 & 0 & Id \end{bmatrix}$$

Q_p étant une matrice qui contient les coefficients obtenus par interpolation du champ de pression sur γ et vérifiant $P_\gamma^2 = Q_p P_\gamma^1$.

D"après la numérotation des nœuds du maillage considérée, on a :

$$\tilde{C}P = F_p \quad avec \quad \tilde{C} = \begin{bmatrix} C^1 & 0 \\ 0 & C^2 \end{bmatrix} \quad et \quad F_p = \begin{bmatrix} F_p^1 \\ F_p^2 \end{bmatrix} \tag{V.13}$$

En posant $P_r = \begin{bmatrix} P_I^1 & P_\gamma^1 & P_I^2 \end{bmatrix}^t$ le vecteur nodal réduit relatif au champ de pression, on obtient :

$$C_r P_r = F_{p,r} \quad avec \quad C_r = \tilde{Q}_p{}^t \tilde{C} \tilde{Q}_p \quad et \quad F_{p,r} = \tilde{Q}_p{}^t F_p \tag{V.14}$$

Donc cette équation (V.14) assure l"assemblage des éléments de Ω_1 et Ω_2 ayant des nœuds sur la ligne de raccordement γ.

La même stratégie est appliquée pour l"assemblage des vecteurs nodaux relatifs au champ de vitesse, ce qui conduit à :

$$\begin{bmatrix} U_I^1 \\ U_\gamma^1 \\ U_\gamma^2 \\ U_I^2 \end{bmatrix} = \tilde{Q}_U \begin{bmatrix} U_I^1 \\ U_\gamma^1 \\ U_I^2 \end{bmatrix} \quad avec \quad \tilde{Q}_U = \begin{bmatrix} Id & 0 & 0 \\ 0 & Id & 0 \\ 0 & Q_U & 0 \\ 0 & 0 & Id \end{bmatrix}$$

Q_U étant une matrice qui contient les coefficients obtenus par interpolation du champ de vitesse sur γ et vérifiant $U_\gamma^2 = Q_U U_\gamma^1$.

Similairement au champ de pression, on pose les matrices réduites suivantes :

$$A_r = \tilde{Q}_U{}^t \tilde{A} \tilde{Q}_U \ ; \ B_r = \tilde{Q}_U{}^t \tilde{B} \tilde{Q}_U \ ; \ F_{U,r} = \tilde{Q}_U{}^t F_U \ \ avec \ \tilde{A} = \begin{bmatrix} A^1 & 0 \\ 0 & A^2 \end{bmatrix} \ et \ \tilde{B} = \begin{bmatrix} B^1 & 0 \\ 0 & B^2 \end{bmatrix}$$

Finalement, on obtient le système linéaire réduit du problème de Stokes :

$$\begin{bmatrix} A_r & B_r{}^t \\ B_r & C_r \end{bmatrix} \begin{bmatrix} U_r \\ P_r \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} F_{U,r} \\ F_{p,r} \end{bmatrix} \tag{V.15}$$

où $U_r = \begin{bmatrix} U_I^1 & U_\gamma^1 & U_I^2 \end{bmatrix}^t$

Cette méthode de décomposition de domaine permet de réduire le nombre d"éléments dans la partie finale de l"épaisseur du film tout en conservant un maillage structuré. Il est donc possible, grâce à cette technique, de raffiner le maillage localement, là où on a besoin. De

plus, nous avons remarqué que l"utilisation de cette technique améliore le conditionnement de la matrice par rapport à la méthode classique.

V.1.1.2.3 Le calcul numérique de la position de l'interface à l'état stationnaire :

Les paramètres adimensionnels qui caractérisent le procédé sont le taux d"étirage Dr et le rapport d"aspect $A = \frac{L}{2h_0}$. Pour un jeu de paramètres donné, l"objectif est de calculer la position de l"interface $\mathcal{H}$ et les champs de vitesse et de pression à l"état stationnaire. Comme la position de l"interface à l"état stationnaire est inconnue, il n"est pas possible de résoudre le problème de Stokes directement. C"est pour cela qu"une méthode itérative de suivi d"interface est adoptée. La stratégie de suivi d"interface est souvent utilisée dans les problèmes d"écoulement ayant des interfaces dont la position est inconnue. Elle consiste à initialiser l"interface et à ajuster sa position à chaque itération jusqu"à ce qu"elle satisfasse la condition de non miscibilité (V.7). Deux types d"itérations sont utilisés : des itérations de lissage relatives à une méthode de point fixe et permettant de s"approcher de la solution stationnaire et des itérations de Newton-Raphson assurant la convergence à la solution du problème.

V.1.1.2.3.1 Lissage de la position de l'interface par une méthode de point fixe :

L"interface est représentée par une série de points $[h_0, \dots, h_N]$ le long de la direction d"étirage. On commence par initialiser cette série de points grâce à la solution analytique du modèle membrane 1D à largeur constante $h(x) = h_0 Dr^{-\frac{x}{L}}$. Pour cette position de l"interface, le domaine Ω est bien défini et il est donc possible de le mailler à l"aide de la méthode de décomposition de domaine mentionnée précédemment. Le problème de Stokes défini dans le paragraphe (V.1.1) est résolu sur le domaine Ω et les champs de vitesse et de pression sont calculés en tout point du maillage par une méthode d"éléments finis mixtes. En considérant le champ de vitesse obtenu, il est possible de calculer une nouvelle position de l"interface grâce à la condition de non miscibilité qui est donnée par l"équation (V.7). Il s"agit donc de résoudre le problème suivant :

$$\begin{cases} \dfrac{dh}{dx} = \dfrac{v}{u} \\ h(0) = h_0 \end{cases}$$

Ce problème peut être résolu par un schéma aux différences finies mais le résultat ne donne pas entière satisfaction en termes de convergence de la méthode de lissage. En effet, l"interface calculée ne respecte pas forcément la condition de conservation de matière $h(A) = \frac{h_0}{Dr}$. Afin de pouvoir imposer cette condition en $x = A$, on dérive l"équation du problème et on considère la formulation faible suivante :

$$\begin{cases} \displaystyle\int_0^L \frac{\partial h}{\partial x}\frac{\partial w}{\partial x} = -\int_0^L \frac{v}{u}\frac{\partial w}{\partial x} \qquad \forall w \in W \\ h(0) = h_0 \\ h(A) = \dfrac{h_0}{Dr} \end{cases} \tag{V.16}$$

avec $W = \{w \in H_1([0, A]);\ w(0) = w(A) = 0\}$

Une méthode d"éléments finis 1D permet de résoudre ce problème et de calculer une nouvelle position de l"interface. Cette dernière est utilisée comme initialisation pour l"itération suivante. Les différents tests réalisés sur cette méthode itérative de lissage montrent qu"elle est efficace puisqu"elle permet de converger rapidement à un voisinage immédiat de la solution stationnaire (figure V.3).

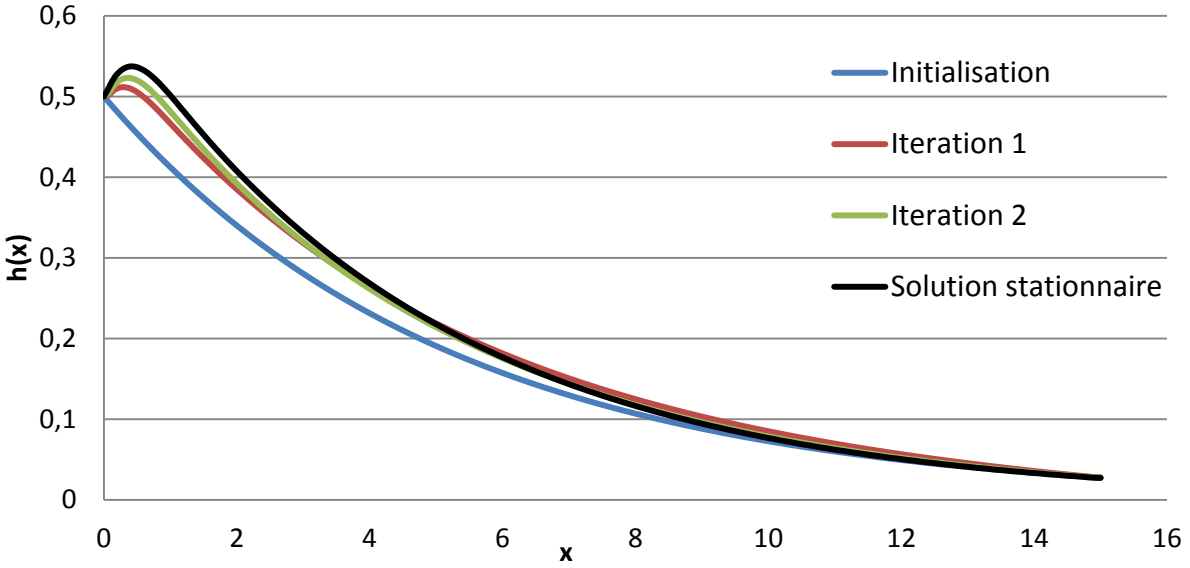


Figure V.3 - Evolution de la forme de l'interface au cours des deux premières itérations de lissage ($A = 15$ et $Dr = 18$)

V.1.1.2.3.2 Calcul de la position stationnaire de l'interface par une méthode de Newton-Raphson :

Les itérations de Newton-Raphson commencent quand on s"est suffisamment rapproché de la solution stationnaire. En effet, l"intérêt des itérations de lissage réside dans le fait que la méthode de Newton-Raphson ne peut pas converger si jamais son initialisation n"est pas proche de la solution stationnaire.

Similairement aux itérations de lissage, l"initialisation de l"interface permet de définir le domaine d"écoulement et donc de calculer les champs de vitesse et de pression en tout point du maillage. Cela permet de calculer la fonction F qui est définie par :

$$F(h_1, \dots, h_N) = \begin{bmatrix} f_1(h_1, \dots, h_N) \\ \vdots \\ f_N(h_1, \dots, h_N) \end{bmatrix} \quad avec \quad f_i(h_1, \dots, h_N) = -u_h(x_i, h_i)\frac{\partial h}{\partial x}(x_i) + v_h(x_i, h_i)$$

La solution stationnaire de l"interface, représentée par l"ensemble des inconnues $[h_1, \dots, h_N]$ est donc solution de l"équation suivante :

$$F(h_1, \dots, h_N) = 0 \qquad \text{(V.17)}$$

Cette équation est résolue numériquement par une méthode itérative de Newton-Raphson : Dans chaque itération, le champ de vitesse est calculé en considérant la positon de l"interface obtenue dans l"itération précédente, puis, la fonction F et son gradient sont calculés

numériquement (à partir de ce champ de vitesse et de cette position de l"interface) en utilisant l"approximation suivante (pour une valeur de δh suffisemment faible) :

$$\frac{\partial f_i}{\partial h_j} = \frac{1}{\delta h}\Big(f_i\big(h_1, \dots, h_j + \delta h, \dots, h_N\big) - f_i\big(h_1, \dots, h_j, \dots, h_N\big)\Big)$$

La nouvelle position de l"interface est donc donnée par :

$$\begin{bmatrix} h_1{}' \\ \vdots \\ h_N{}' \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} h_1 \\ \vdots \\ h_N \end{bmatrix} - (\nabla F)^{-1}.\begin{bmatrix} f_1(h_1, \dots, h_N) \\ \vdots \\ f_N(h_1, \dots, h_N) \end{bmatrix}$$

Cette méthode est rapide et relativement précise mais, contrairement à la méthode de capture d"interface qui sera évoquée au paragraphe V.1.2, elle ne permet pas de décrire l"évolution transitoire de l"interface.

V.1.1.3 Résultats numériques :

V.1.1.3.1 Forme de l'interface en fonction du facteur de forme A :

On considère un taux d"étirage $Dr = 18$ et trois facteurs de forme différents. La figure V.4 montre la forme de la surface libre à l"état stationnaire obtenue par la méthode de suivi d"interface dans les trois cas. Pour $A = 15$, on observe un gonflement en sortie de filière de 4%. De même pour $A = 8$, on observe un léger gonflement en sortie de filière de moins de 1%. D"après la littérature, si aucun taux d"étirage n"est imposé en sortie de filière, on obtient par calcul numérique un gonflement de 19% [Mitsoulis, 1984]. On remarque donc qu"en augmentant le taux d"étirage, le gonflement en sortie de filière diminue.

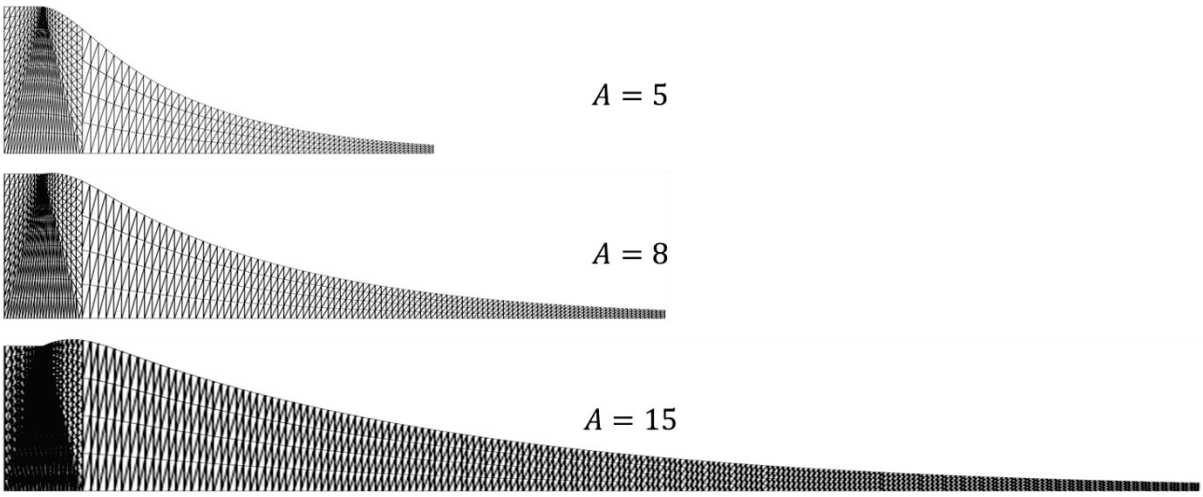


Figure V.4 - Forme de l'interface pour un taux d'étirage Dr=18 et différents facteurs de forme

Dans le cas de $A = 5$, c"est à dire pour une distance d"étirage trois fois plus courte que le cas $A = 15$, aucun gonflement n"est observé en sortie de filière. Par conséquent, on peut conclure que le gonflement en sortie de filière est très influencé par le facteur de forme A et qu"il s"évanouit pour les faibles distances d"étirage.

V.1.1.3.2 Forme de l'interface, champs de vitesse et de pression pour une courte distance d'étirage :

On considère un taux d"étirage $Dr = 18$ et un facteur de forme $A = 2$. La figure V.5 montre une représentation à l"échelle du maillage et de la forme de l"interface à l"état stationnaire.

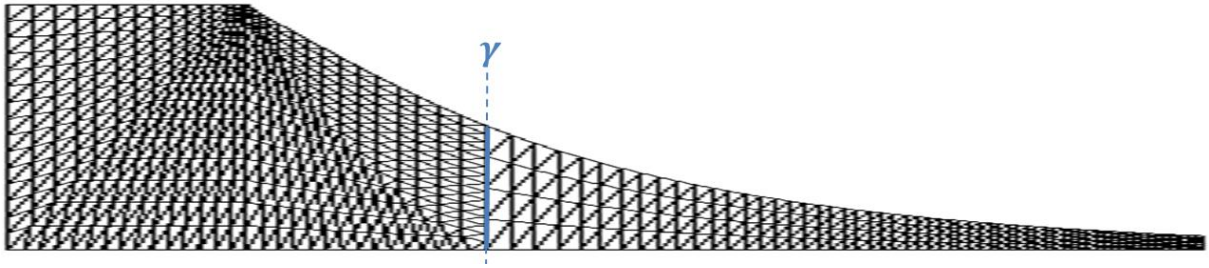


Figure V.5 - Forme de l'interface à l'état stationnaire pour $A = 2$ et $Dr = 18$

Aucun gonflement n"est observé en sortie de filière et on observe même un décrochement brutal de l"interface ce qui confirme les résultats qui ont été présentés au paragraphe précédent.

Les figures V.6, V.7 et V.8 montrent respectivement les iso-valeurs des composantes u et v du champ de vitesse et le champ de pression dans le domaine d"écoulement.

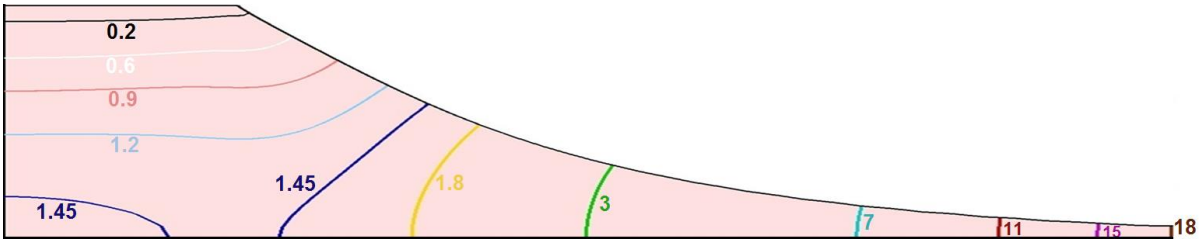


Figure V.6 - Iso-valeurs de la composante u du champ de vitesse pour $A = 2$ et $Dr = 18$

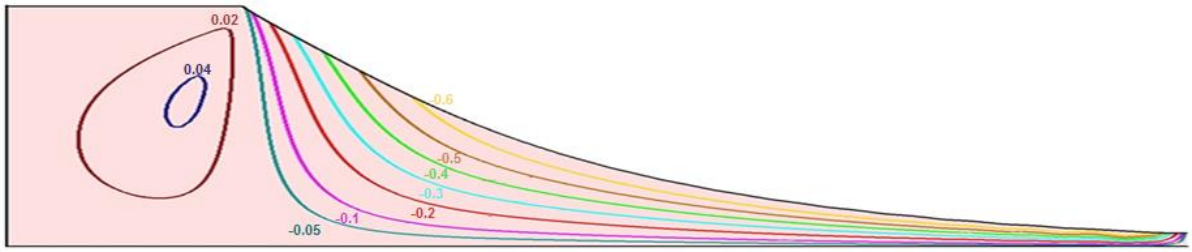


Figure V.7 - Iso-valeurs de la composante v du champ de vitesse pour $A = 2$ et $Dr = 18$

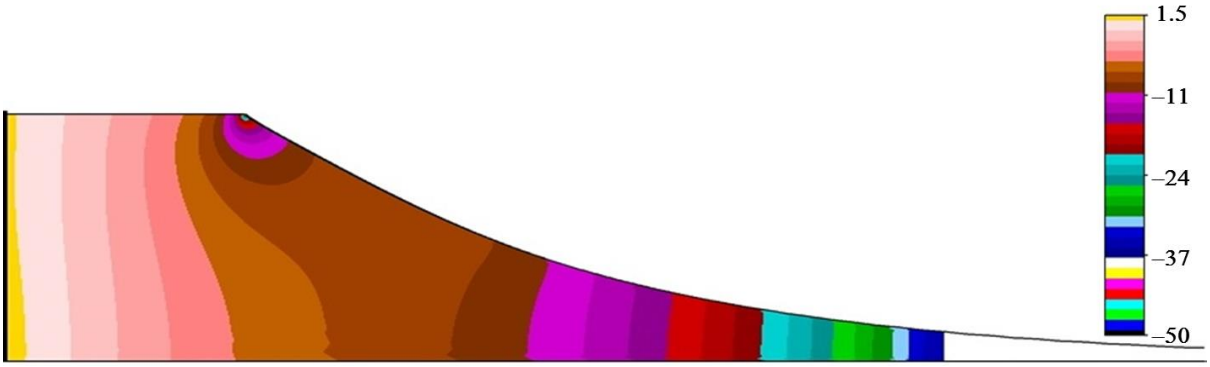


Figure V.8 - Champ de pression à l'intérieur du domaine d'écoulement pour $A = 2$ et $Dr = 18$

Ces figures montrent que l'hypothèse membrane devient valide dans la dernière partie de l'étirage. Ce résultat justifie donc l'intérêt de l'utilisation de la méthode de décomposition de domaine qui nous a permis d'utiliser moins d'éléments dans l'épaisseur du film au niveau de la dernière partie de l'étirage. De plus, la singularité de contrainte en sortie de filière est révélée dans la figure V.8. On observe que le champ de pression évolue radialement au voisinage de la singularité ce qui est en accord avec la littérature sur les problèmes de type *« Stick-Slip »*. En effet, la forme de cette singularité est connue comme étant un cas particulier de l'écoulement stationnaire au voisinage d'un coin d'angle ω formé par une frontière rigide et une surface libre plane (figure V.9) [Georgiou, 1989].

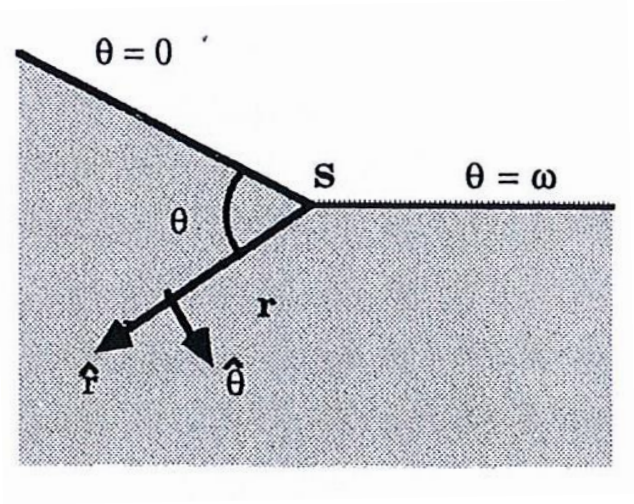


Figure V.9 - Schéma d'un cas d'écoulement au voisinage d'un coin d'angle ω [Maders, 1990]

Michael et al. puis Moffatt et al. ont calculé une solution analytique pour ce problème dans un référentiel polaire (r, θ) et ont montré que les contraintes et la pression sont proportionnelles à $r^{\alpha-1}$ au voisinage de la singularité ([Michael, 1958], [Moffat, 1964]), avec α solution de l'équation caractéristique suivante [Grisvard, 1986] :

$$\sin^2(\alpha\omega) + \alpha^2 \sin^2(\omega) = 1$$

Donc, pour $\alpha < 1$, les contraintes tendent vers l'infini lorsque r tend vers zéro d'où l'appellation de singularité de contrainte en sortie de filière. La figure V.10 montre l'évolution de l'exposant α en fonction de l'angle ω que réalise la surface libre avec la lèvre supérieure de la filière au voisinage de la singularité. Pour $\omega = \pi$, on a $\alpha = 0.5$: cette singularité est connue dans ce cas sous le nom *Stick-Slip singularity*. Elle a servi de cas de test pour de nombreuses études sur les écoulements viscoélastiques [Fortin, 1992]. On remarque que pour un angle $\omega < \pi$, il existe une solution unique qui est très proche de la valeur $\alpha = 0.5$. Par contre, pour un angle $\omega > \pi$, il existe deux branches solution : l'une reste proche de la valeur $\alpha = 0.5$ et l'autre atteint des valeurs de α plus faibles. On peut donc conclure que la valeur de l'exposant α diminue en augmentant l'angle ω et que pour $\omega > \pi$, cette diminution de l'exposant α devient très rapide ce qui veut dire que la singularité de contrainte est très influencée par la valeur de l'angle ω et qu'elle augmente considérablement en augmentant l'angle ω.

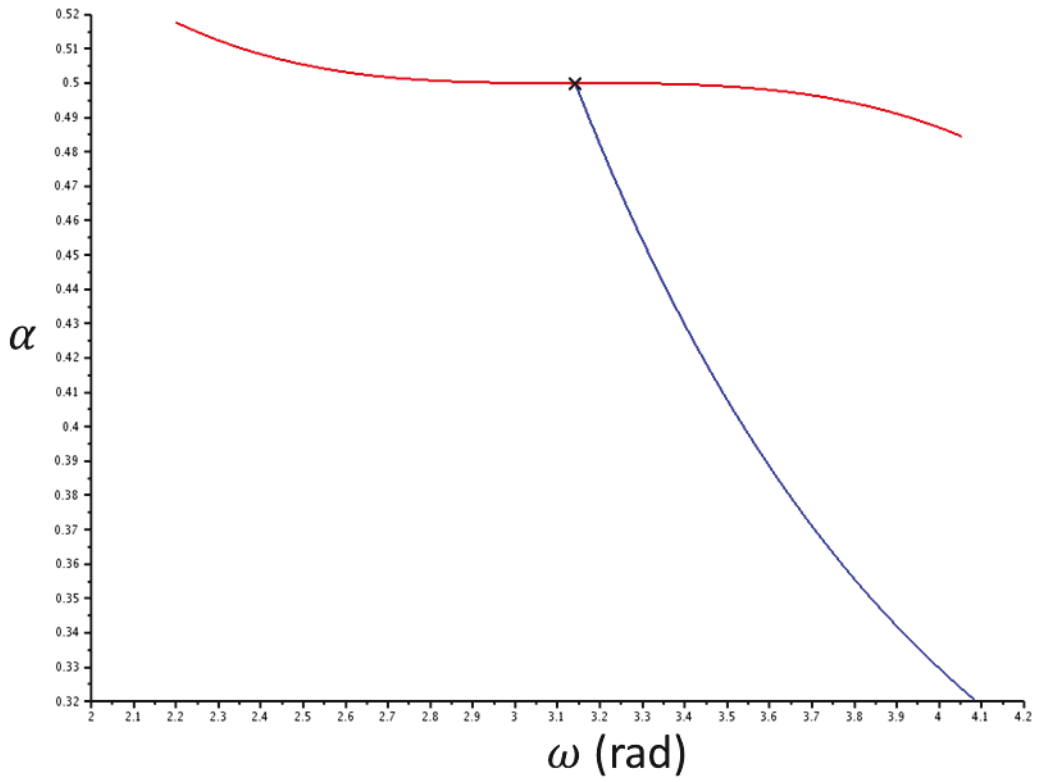


Figure V.10 - Evolution de l'exposant α en fonction de l'angle ω

On considère le cas $A = 2$; $Dr = 18$. La figure V.11 montre le comportement de la pression au voisinage de la singularité sur un rayon vertical en fonction du nombre de nœuds du maillage. On remarque que le calcul de cette dernière est très dépendant du maillage et que plus le maillage est fin, plus la valeur de la singularité augmente. Cela signifie que, plus on raffine le maillage, mieux on rend compte de la singularité. Il est nécessaire de raffiner le maillage au voisinage de la singularité afin d"améliorer la précision du calcul ce qui justifie l"utilisation d"un raffinement de maillage radial localement au niveau de la singularité.

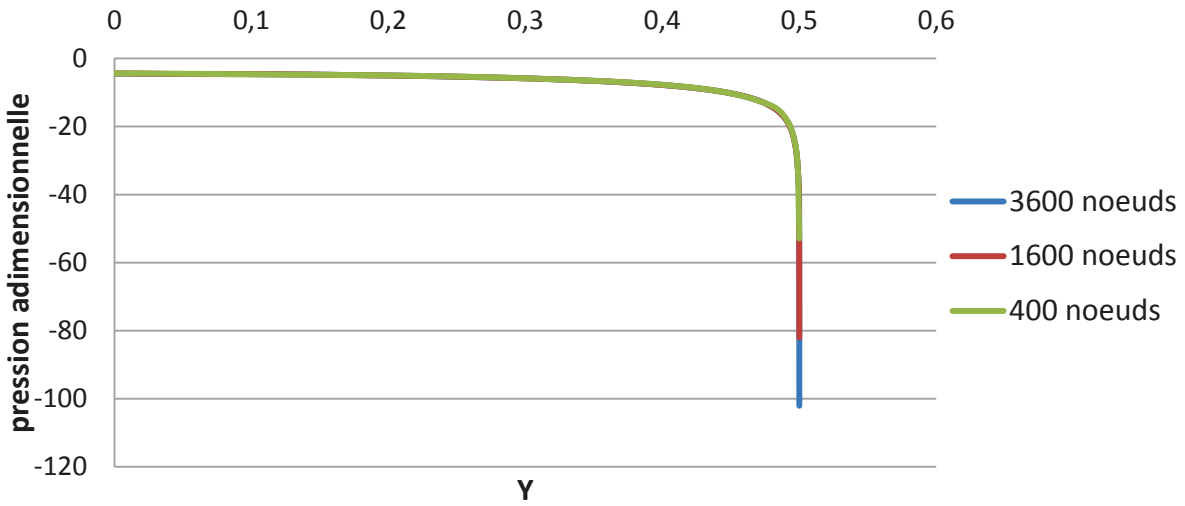


Figure V.11 – Représentation de la pression adimensionnelle sur l'axe y pour différents maillages ($A = 2$ et $Dr = 18$)

V.1.2 Méthode de simulation directe par capture d'interface (capturing strategy)

V.1.2.1 Domaine d'écoulement étendu et nouvelles conditions aux bords :

Dans le cas de la stratégie de capture d"interface, on étend le domaine de calcul pour qu"il contienne à la fois le polymère et l"air environnant (figure V.12). Le domaine entier $\Omega_e \setminus \Omega$ est occupé par un fluide Newtonien fictif ayant une très faible viscosité η_a. La valeur de cette viscosité peut être choisie égale à la viscosité de l"air mais le plus important est qu"elle soit négligeable devant la viscosité du polymère $\frac{\eta_a}{\eta_p} \ll 1$. Les équations (V.1) – (V.4) restent valables sur tout le domaine Ω_e à la seule différence que la viscosité dépend de la position du point du domaine considéré. On peut montrer que la condition d"équilibre de surface libre sur l"interface $\mathcal{H}$ est intégrée dans l"équation d"équilibre (V.3). En effet, cette dernière entraîne que le saut de contrainte normale au niveau de l"interface est nul. Vu le rapport de viscosité, ce saut de contrainte est égal à la contrainte normale du polymère au niveau de l"interface $\mathcal{H}$, ce qui vérifie bien la condition de surface libre $\sigma \cdot \vec{n} = \vec{0}$. On est donc confronté à un problème de Stokes multiphasique, défini sur un domaine plus étendu et soumis à ces nouvelles conditions aux bords :

- Sur Γ_4 : La composante u du vecteur vitesse est imposée par $u = Dr$ et la composante de cisaillement du tenseur de contraintes σ_{xy} s"annule, c"est à dire que la condition au bord de la méthode de suivi d"interface a été étendue à l"air ;
- Sur Γ_5 : Une condition de surface libre est considérée : $\sigma.\vec{n} = \vec{0}$, $\vec{n}$ étant un vecteur normal à l"interface ;
- Sur Γ_6 : Une condition de vitesse nulle est considérée : $u = 0$ et $v = 0$

Sur Γ_1, Γ_2 et Γ_3, on garde les mêmes conditions aux bords que celles utilisées dans la méthode de suivi d"interface.

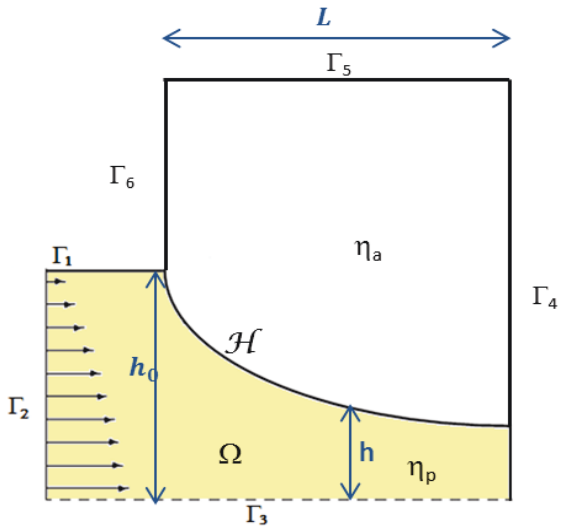


Figure V.12 - Géométrie du domaine de calcul étendu

La résolution de ce problème de Stokes multifluide implique l"utilisation d"un maillage qui couvre le domaine d"écoulement global Ω_e et non pas seulement le domaine d"écoulement du polymère. Contrairement à la méthode de « *tracking* » pour laquelle l"interface est suivie explicitement par les bords du maillage, ici l"interface passe à travers les éléments du maillage. C"est pourquoi il est nécessaire de définir une fonction permettant de différencier

les deux sous-domaines et capturer l'interface à chaque instant t. Cela peut se faire à l'aide de différentes techniques comme la méthode Volume of Fluid (VoF) [Hirt, 1981] mais, dans notre cas, nous avons choisi la méthode *Level-Set*. De plus, afin de simuler l'évolution de l'interface au cours du temps, il est nécessaire de résoudre une équation de transport supplémentaire. Les détails de cette méthode sont présentés dans le paragraphe suivant.

V.1.2.2 Méthode *Level-Set* locale à réinitialisation convective :

L'approche développée dans ce paragraphe résulte de plusieurs travaux de thèses qui ont été menées au CEMEF depuis environ une dizaine d'années et dont nous avons pu bénéficier. Ces travaux ont donné lieu à des publications qui sont listées dans la présentation qui suit. Les détails et les justifications de ces méthodes ne sont pas explicités.

Classiquement, la fonction *Level-Set* correspond à une fonction distance signée à l'interface ([Osher, 2001], [Sethian, 1999]). Cependant, on définit une fonction *Level-Set* tronquée α comme suit :

$$\alpha = \begin{cases} \dfrac{2E}{\pi} & pour\ \phi > E \\ \dfrac{2E}{\pi} sin\left(\dfrac{\pi}{2E}\phi\right) & pour\ |\phi| < E \\ -\dfrac{2E}{\pi} & pour\ \phi < -E \end{cases} \tag{V.18}$$

où $\phi(x,t)$ et E sont respectivement une fonction distance signée à l'interface $\mathcal{H}$ et une épaisseur de troncature ([Hachem, 2011], [François, 2011]). Cette fonction est équivalente à une fonction distance au voisinage de l'inte+rface, ce qui permet de définir correctement le niveau zéro représentant l'interface.

Similairement à la méthode de « *tracking* », l'interface est initialisée par la solution analytique du modèle membrane 1D à largeur constante. Comme l'objectif de la méthode de simulation directe est de pouvoir décrire l'évolution de l'interface au cours du temps, cette méthode consiste à calculer, à chaque instant t, un champ de vitesse à partir des équations de Stokes pour ensuite l'utiliser pour transporter l'interface à l'aide de l'équation de transport suivante :

$$\frac{\partial \alpha(x,t)}{\partial t} + u.\nabla\alpha(x,t) = 0 \tag{V.19}$$

Comme le champ de vitesse solution des équations de Stokes peut provoquer un cisaillement très fort de l'interface, le transport de cette dernière provoque la détérioration rapide de la *Level-Set* $\alpha(x,t)$. Il est donc nécessaire de considérer une technique de réinitialisation permettant de redéfinir la fonction *Level-Set* comme une fonction distance, à chaque fois qu'elle est altérée, tout en conservant la position de l'interface. Ayant une fonction *Level-Set* tronquée sur une épaisseur E, il est possible d'intégrer l'équation de réinitialisation (équation de Hamilton-Jacobi modifiée) dans l'équation de transport par pénalisation [Sussman, 1994]. On obtient donc l'équation de transport suivante :

$$\begin{cases} \dfrac{\partial \alpha}{\partial t} + u.\nabla\alpha + \lambda\, s(\alpha)\left(|\nabla\alpha| - \sqrt{1-\left(\dfrac{\pi}{2E}\alpha\right)^2}\right) = 0 \\ \alpha(x,t=0) = \alpha_0(x) \end{cases} \tag{V.20}$$

$s(\alpha)$ étant une fonction signe, $\alpha_0(x)$ la fonction *Level-Set* initiale et $\lambda \simeq \frac{h_K}{\Delta t}$ est une constante de couplage qui dépend de la taille de maille h_K et du pas de temps Δt.

En résolvant cette équation de transport, on peut s"affranchir de l"étape de réinitialisation qui se fait désormais automatiquement puisqu"elle y est intégrée.

D"après [Ville, 2010], en posant $a = s(\alpha)\frac{\nabla\alpha}{|\nabla\alpha|}$ et $g(\alpha) = \sqrt{1 - \left(\frac{\pi}{2E}\alpha\right)^2}$, on obtient une forme simplifiée de l"équation de transport (V.20) :

$$\begin{cases} \dfrac{\partial\alpha}{\partial t} + (u + \lambda a).\nabla\alpha = \lambda\, s(\alpha) g(\alpha) \\ \alpha(x, t = 0) = \alpha_0(x) \end{cases} \tag{V.21}$$

Il est clair que le problème de Stokes est couplé à l"équation de transport (V.21) à travers la viscosité dont la valeur dépend du sous-domaine considéré. Comme l"interface traverse en général les éléments, il est nécessaire de définir une loi de mélange de la viscosité dynamique pour les éléments qui se trouvent à l"interface afin de limiter la discontinuité de la viscosité à l"interface. Sachant que l"interface est parallèle à l"écoulement, la loi de mélange suivante a été adoptée [François, 2011] :

$$\frac{1}{\eta} = \frac{H(\alpha)}{\eta_p} + \frac{1 - H(\alpha)}{\eta_a} \tag{V.22}$$

où $H(\alpha)$ est une fonction de Heaviside lissée :

$$H(\alpha) = \begin{cases} 1 & si \;\; \alpha > \varepsilon \\ \dfrac{1}{2}\left(1 + \dfrac{\alpha}{\varepsilon} + \dfrac{1}{\pi} sin\left(\dfrac{\pi\alpha}{\varepsilon}\right)\right) & si\; |\alpha| < \varepsilon \\ 0 & si \;\; \alpha < -\varepsilon \end{cases} \tag{V.23}$$

ε étant un petit paramètre (épaisseur de l"interface) de l"ordre de la taille de maille dans la direction normale à l"interface.

V.1.2.3 Résolution numérique du problème :

A $t = 0$, la fonction *Level-Set* est initialisée par la solution analytique du modèle membrane 1D à largeur constante. L"espace temporel étant discrétisé selon un pas de temps Δt au début de chaque itération, la loi de mélange (V.22) est appliquée pour générer un champ de viscosité assez régulier. En se basant sur ce champ de viscosité défini sur tout le domaine Ω_e, le problème de Stokes (V.1) - (V.4) est résolu par une méthode d"éléments finis mixtes $\mathcal{P}_1^+ - \mathcal{P}_1$ similaire à celle utilisée avec la méthode de suivi d"interface. Ensuite, en considérant le champ de vitesse solution des équations de Stokes, l"équation de transport (V.21) est résolue à l"aide d"une approche éléments finis basée sur la méthode de stabilisation de type « Streamline Upwind Petrov Galerkin » (SUPG) introduite par [Brooks, 1982]. La formulation faible de ce problème est donnée par :

Trouver $\alpha_h \in V_h$ tel que $\forall \omega_h \in W_h$

$$\begin{gathered} \int_\Omega \left(\frac{\partial\alpha_h}{\partial t} + (u_h + \lambda a_h) \cdot \nabla\alpha_h - \lambda\, s(\alpha_h)\, g(\alpha_h)\right)\omega_h \\ \sum_{e=1}^{n_{el}} \int_{\Omega^e} \tau_{SUPG}\left(\frac{\partial\alpha_h}{\partial t} + (u_h + \lambda a_h)\cdot\nabla\alpha_h - \lambda\, s(\alpha_h)\, g(\alpha_h)\right)(u_h + \lambda a_h)\cdot\nabla\omega_h = 0 \end{gathered} \tag{V.24}$$

V_h étant l‟espace des fonctions test standard pour des éléments finis du type $\mathcal{P}_1$ et W_h un espace vectoriel différent de V_h utilisé pour les fonctions test qui sont de la forme :

$$\omega_h = \alpha_h + \tau_{SUPG} u_h \cdot \nabla \alpha_h \qquad \text{(V.25)}$$

La première intégrale représente la partie Galerkin standard, tandis que le terme de somme contenant le paramètre τ_{SUPG} représente le terme de stabilisation [Coupez, 2013].

Vu l‟importance des discontinuités au niveau de l‟interface et dans le but de capturer cette dernière avec précision, il est impératif de raffiner le maillage au voisinage de l‟interface. L‟utilisation d‟un maillage anisotrope adaptatif permet de capturer avec une très bonne précision les hétérogénéités d‟échelle et les gradients élevés, compte tenu de l‟évolution dynamique de l‟interface au cours du temps, pour un nombre d‟éléments qui reste raisonnable.

La construction d‟un tel maillage anisotrope adaptatif est assurée par la construction d‟une carte discrète de métriques anisotrope par estimation de l‟erreur d‟interpolation [Coupez, 2013]. Cette approche consiste à appliquer un estimateur d'erreur géométrique a posteriori basé sur une majoration de l‟erreur d‟interpolation. Comme cette majoration dépend de la longueur des arêtes du maillage, un champ de métrique discret anisotrope est construit à partir de cet estimateur d‟erreur de manière à équi-répartir l‟erreur évaluée sur le maillage dans toutes les directions ([Frey, 2005], [Coupez, 2000]). Ainsi, en générant un maillage « unité » (les arêtes sont de longueur un) dans cette métrique, on obtient un maillage adapté pour lequel l‟erreur d‟interpolation est majorée par le seuil prescrit. Au voisinage de l‟interface, ce maillage adapté est donc caractérisé par des éléments extrêmement étirés orientés parallèlement à l‟interface sous la contrainte d‟un nombre de nœuds fixé ([Alauzet, 2003], [El Kosseifi, 2012]). Cela engendre une réduction nette du nombre d‟éléments et par conséquent des coûts de calcul. Ce maillage anisotrope adaptatif prend en compte la fonction *Level-Set* uniquement. Un remaillage de l‟ensemble du domaine de calcul est réalisé environ après chaque 10 itérations et la solution du problème est ensuite calculée sur le nouveau maillage par interpolation linéaire.

La figure (V.13) montre une représentation de la fonction *Level-Set* tronquée (V.18) et de la distribution de viscosité obtenue selon la loi de mélange (V.22).

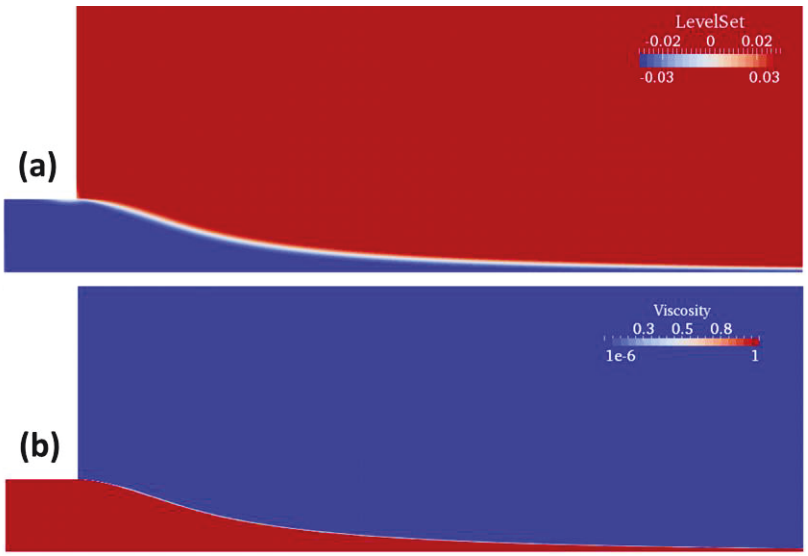


Figure V.13 - (a) La fonction *Level-Set* ; (b) Distribution de la viscosité

L"utilisation de la fonction *Level-Set* tronquée a permis de s"affranchir de l"étape de réinitialisation de la fonction distance sur tout le domaine et de réduire ainsi le temps de calcul.

La figure (V.14) montre des maillages anisotropes adaptés à différentes étapes du calcul. On observe que la méthode de génération du maillage permet de capturer l"interface en raffinant le maillage à son voisinage.

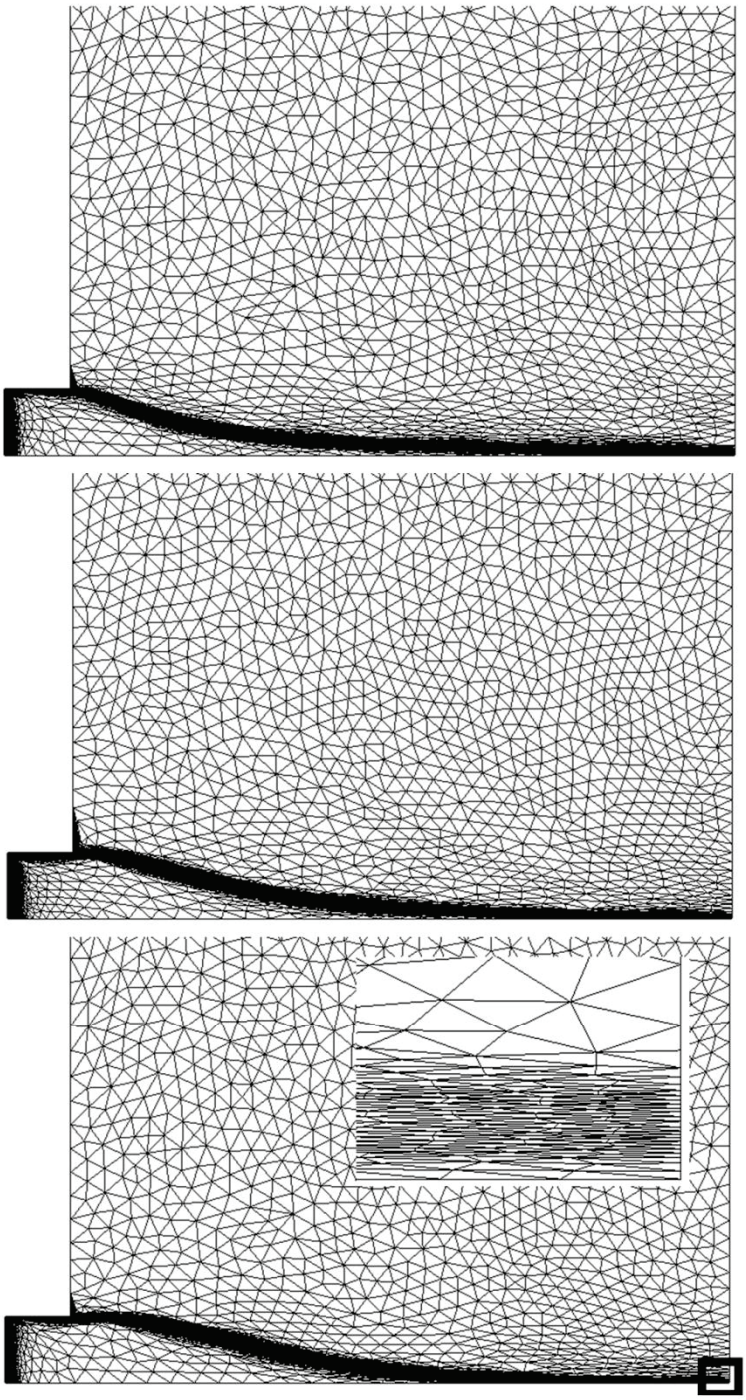


Figure V.14 - Maillages anisotropes adaptés à différentes étapes du calcul (étapes en temps au cours de l'établissement de la solution stationnaire)

Le zoom réalisé sur l'extrémité du maillage montre bien, au voisinage de l'interface, l'étirement et l'orientation des éléments du maillage parallèlement à l'interface, ce qui permet de réduire les coûts de calcul.

Les résultats stationnaires obtenus avec cette méthode de simulation directe par capture d'interface sont présentés dans le paragraphe (V.1.3) où ils sont comparés aux résultats obtenus avec la méthode de suivi d'interface.

V.1.3 Comparaison des deux méthodes numériques utilisées :

On considère un taux d'étirage $Dr = 10$ et un facteur de forme $A = 5$. La figure V.15-a compare la forme de l'interface à l'état stationnaire obtenue avec les deux approches numériques. On observe que les deux méthodes ont permis de trouver quasiment la même solution. Cela est confirmé par la comparaison du profil de vitesse sur l'axe x (figure V.15-b).

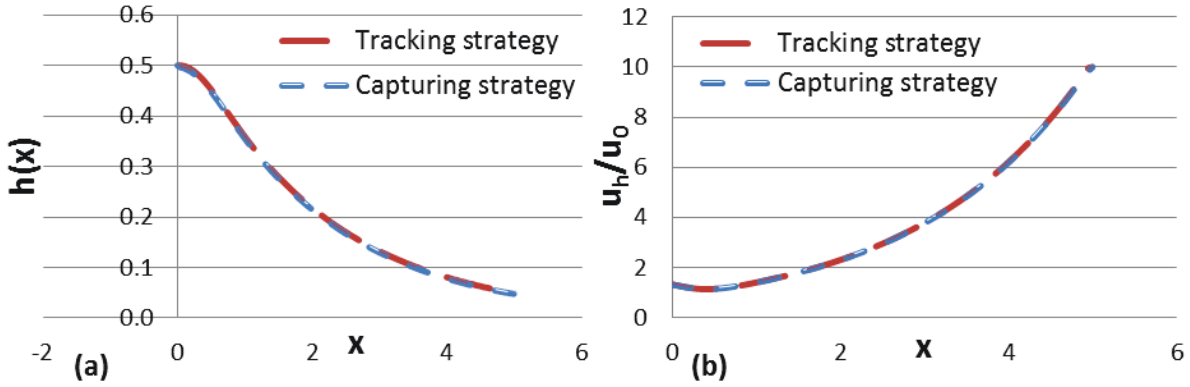


Figure V.15 - (a) La forme de l'interface stationnaire ; (b) Le profil de vitesse sur l'axe x

V.2 Etude de la stabilité des solutions stationnaires :

Nous étudions la stabilité de la solution stationnaire. Pour ce faire, deux méthodes numériques sont utilisées :

- Une méthode de stabilité linéaire est couplée avec la stratégie de suivi d'interface (*tracking*)
- Une méthode de simulation directe est utilisée dans le cas de la stratégie de capture d'interface (*capturing*).

V.2.1 Méthode de stabilité linéaire : équations linéarisées :

La méthode de stabilité linéaire a été introduite dans le quatrième chapitre sur les modèles membrane (IV.3.4.1).

S'agissant d'un écoulement instationnaire, la condition de non miscibilité donnée par l'équation (V.7) n'est plus valable et elle est remplacée par l'équation cinématique de l'interface qui est donnée par :

$$\frac{\partial h}{\partial t} = F(h) \qquad \text{(V.26)}$$

Les autres équations du problème stationnaire étant inchangées, cette dernière équation représente la seule équation du problème qui contient une dérivée par rapport au temps. De

plus, les champs de vitesse et de pression sont calculés sur la base d"une position de l"interface donnée. Donc, la stabilité de la solution stationnaire est réalisée en perturbant uniquement la position de l"interface à l"état stationnaire $\bar{h}$ comme suit :

$$h(t,x) = \bar{h}(x) + e^{\Lambda t}\hat{h}(x) \qquad \text{(V.27)}$$

En injectant cette expression de la position de l"interface dans l"équation (V.26) et en négligeant les termes d"ordre 2, on obtient l"équation linéarisée suivante :

$$\nabla_h F(\bar{h})\hat{h} = \Lambda\hat{h} \qquad \text{(V.28)}$$

Par conséquent le problème de stabilité se ramène à un problème aux valeurs propres classique comme dans le cas des modèles membrane, avec Λ une valeur propre et $\hat{h}$ un vecteur propre.

La résolution numérique de ce problème aux valeurs propres passe par le calcul du gradient $\nabla_h F(\bar{h})$ qui est réalisé par la méthode utilisée dans les itérations de Newton-Raphson (voir paragraphe V.1.1.2.3.2). Ayant obtenu $\nabla_h F(\bar{h})$, le spectre de valeurs propres est obtenu par une simple commande du logiciel *Scilab*. Le critère de stabilité porte sur la partie réelle des valeurs propres dominantes : si elle est négative, la solution stationnaire est stable et si elle est positive, la solution stationnaire est instable.

Cette méthode a été testée en comparant ses résultats à ceux du modèle membrane à largeur constante, dans le cas d"un très grand facteur de forme $A = 15$ et d"une condition de glissement sur la paroi Γ_1 (équivalent à considérer un écoulement bouchon en sortie de filière, voir figure V.16).

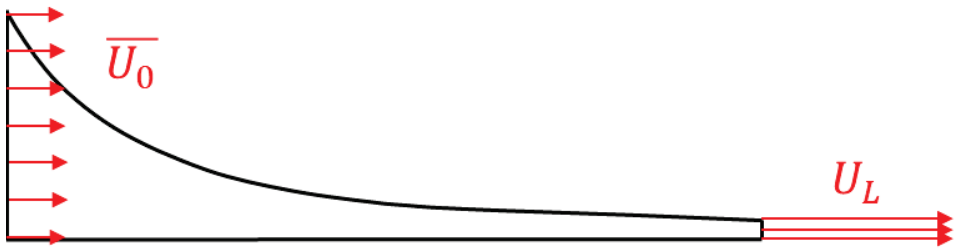


Figure V.16 - schéma simplifié d'une modèle ne tenant pas compte de l'écoulement dans la filière (écoulement bouchon)

La figure V.17 montre l'évolution de la partie réelle de la valeur propre dominante en fonction du taux d"étirage pour ces deux modèles. On remarque qu"on obtient quasiment les mêmes valeurs propres et on retrouve donc le taux d"étirage critique du modèle membrane à largeur constante $Dr_c = 20.2$. Cela confirme que, pour un très grand facteur de forme, le modèle 2D symétrique se réduit au modèle membrane à largeur constante si on considère un écoulement bouchon en sortie de filière.

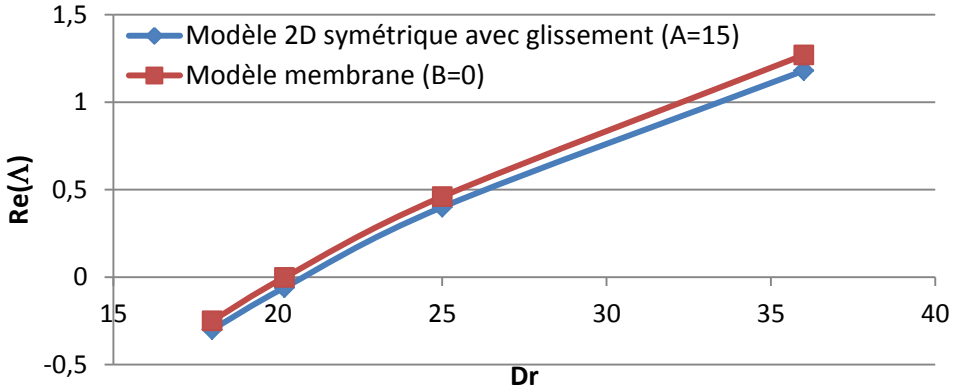


Figure V.17 - Comparaison de l'évolution de la partie réelle de la valeur propre dominante en fonction du taux d'étirage entre le modèle membrane et le modèle 2D avec glissement à la paroi de la filière ($A = 15$ et $Dr = 18$)

V.2.2 Méthode de simulation directe :

Dans le cas de la stratégie de simulation directe par capture d'interface, la stabilité de la solution stationnaire est étudiée en introduisant une petite perturbation par rapport à l'état stationnaire et en simulant le régime transitoire de l'écoulement après perturbation (figure V.18). Si la perturbation s'évanouit au cours du temps et la position de l'interface reconverge vers sa position stationnaire, cette dernière est stable. Par contre, si aucune solution stationnaire n'est obtenue, on converge vers une solution périodique stationnaire ; cela signifie qu'il n'existe aucun équilibre stable pour ce modèle dans les conditions considérées. Il est à remarquer que cette méthode de simulation directe, à l'inverse de la méthode de *Tracking*, ne permet pas de calculer la position d'équilibre dans le cas instable puisqu'elle converge vers une solution périodique stationnaire.

V.2.3 Comparaison des deux méthodes numériques en termes de stabilité :

Afin de comparer les résultats de stabilité obtenus avec les deux méthodes numériques présentées, on considère le même cas d'étude : $Dr = 10$ et $A = 2$. On est amené à comparer une méthode de stabilité linéaire donnant une valeur propre dominante à une méthode de simulation directe. A partir de la simulation du régime transitoire d'écoulement après perturbation, on trace l'évolution de l'épaisseur finale du film de polymère $h(t, A)$ en fonction du temps (figure V.18). On observe que l'évolution de cette épaisseur au cours du temps est décrite par des oscillations amorties autour d'une position stationnaire, ce qui signifie que la solution stationnaire est stable. La courbe bleue de la figure V.18 qui montre la convergence à la solution stationnaire permet de calculer la valeur propre dominante (car toutes les autres composantes sont amorties). Dans ce cas, la conservation du débit de matière est réalisée avec une précision de l'ordre de 1% : la méthode numérique est donc „assez" conservative. Néanmoins, dans d'autres cas, nous avons rencontré des problèmes de conservation de matière, ce qui n'est pas étonnant car il s'agit d'un point délicat [Smolianski, 2005].

La valeur propre dominante relative à cette simulation est déterminée comme suit : l'atténuation de l'enveloppe de la solution est exponentielle ce qui permet de calculer la valeur réelle de cette valeur propre, tandis que la pseudo-période des oscillations permet de

calculer sa partie imaginaire. On obtient donc une estimation de la valeur propre dominante $\Lambda = -1.18 \pm i\ 9.88$.

En utilisant la méthode de suivi d'interface couplée à une méthode de stabilité linéaire dans les mêmes conditions, on obtient la valeur propre dominante $\Lambda = -1.15 \pm i\ 10.39$.

Les deux valeurs propres étant très proches l'une de l'autre (notamment les parties réelles), on peut conclure que la méthode de *Tracking* et la méthode de *Capturing* donnent les mêmes résultats de stabilité.

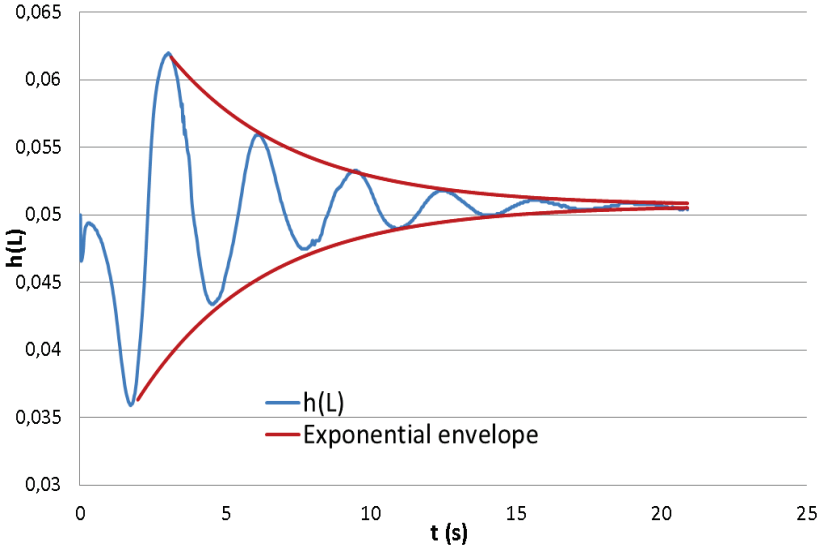


Figure V.18 - Analyse de stabilité transitoire

V.2.4 Résultats de stabilité :

Comme on vient de vérifier que les deux méthodes donnent des résultats équivalents et que la méthode de suivi d'interface est rapide et facile à implémenter, cette dernière est utilisée pour étudier la stabilité du procédé « Revoluflex » dans différentes conditions.

V.2.4.1 Influence du facteur de forme sur la stabilité :

On considère un taux d'étirage $Dr = 18$ et on étudie la stabilité de l'interface pour différents facteurs de forme A. Le tableau V.I montre les valeurs propres dominantes Λ obtenues dans chaque situation.

$Dr = 18$	$A = 15$	$A = 5$	$A = 2$
Λ	$0.06 \pm i\ 11.94$	$-0.27 \pm i\ 12.03$	$-1.89 \pm i\ 11.1$

Tableau V.I - Valeurs propres dominantes pour différents facteurs de forme

Dans le cas d'une courte distance d'étirage $A = 2$, on remarque que la solution stationnaire est très stable puisque la partie réelle des valeurs propres dominantes obtenues est négative et elle est relativement éloignée de zéro. De manière similaire, le cas $A = 5$ est stable mais il est plutôt à la limite de stabilité. Donc, pour un taux d'étirage donné, la réduction de la distance d'étirage (du facteur de forme A) améliore significativement la stabilité du procédé. Ce résultat permet d'expliquer en partie les résultats expérimentaux présentés dans le chapitre (V.3). En effet, s'agissant d'essais réalisés dans des conditions où le facteur de forme est en

général inférieur à 3, cette courte distance d'étirage contribue à la stabilité du procédé dans des conditions d'étirage pour lesquelles un procédé *Cast film* classique est instable (taux d'étirage élevés).

Dans le cas d'un facteur de forme $A = 15$, la partie réelle des valeurs propres dominantes obtenues est très proche de zéro, ce qui veut dire que le taux d'étirage critique est proche de 18. Comme il s'agit d'une distance d'étirage relativement importante, ce résultat peut être comparé au taux d'étirage critique $Dr_c = 20.2$ obtenu à l'aide d'un modèle membrane à largeur constante ou d'un modèle qui ne tient pas compte de l'écoulement dans la filière. L'écart entre ces deux taux d'étirage critiques est expliqué par l'utilisation de deux conditions aux limites différentes dans les deux modèles. En effet, dans le modèle membrane, on considère un écoulement bouchon en sortie de filière, ce qui ne permet pas de rendre compte de l'écoulement à l'intérieur de la filière et surtout du gonflement en sortie de filière. Cependant, les deux taux d'étirage critiques obtenus restent du même ordre de grandeur.

V.2.4.2 Influence du taux d'étirage sur la stabilité :

On considère trois taux d'étirage différents et on étudie, pour chacun d'entre eux, la stabilité de l'interface en fonction du facteur de forme A. La figure V.19 montre l'évolution de la partie réelle des valeurs propres dominantes en fonction du facteur de forme A pour chacun des trois taux d'étirage considérés. On observe que, pour tous les taux d'étirage, la partie réelle des valeurs propres dominantes augmente en augmentant le facteur de forme A. Par exemple, dans le cas $Dr = 18$, la partie réelle des valeurs propres dominantes reste négative pour des facteurs de forme inférieurs à environ 9. Pour des taux d'étirage plus élevés ($Dr = 36$ et $Dr = 100$), la partie réelle des valeurs propres dominantes est négative uniquement pour des facteurs de forme inférieurs à $A = 3$. En considérant un facteur de forme $A = 2$, la partie réelle des valeurs propres dominantes devient significativement négative et du même ordre de grandeur pour tous les taux d'étirage testés, ce qui signifie que le procédé est très stable indépendamment du taux d'étirage.

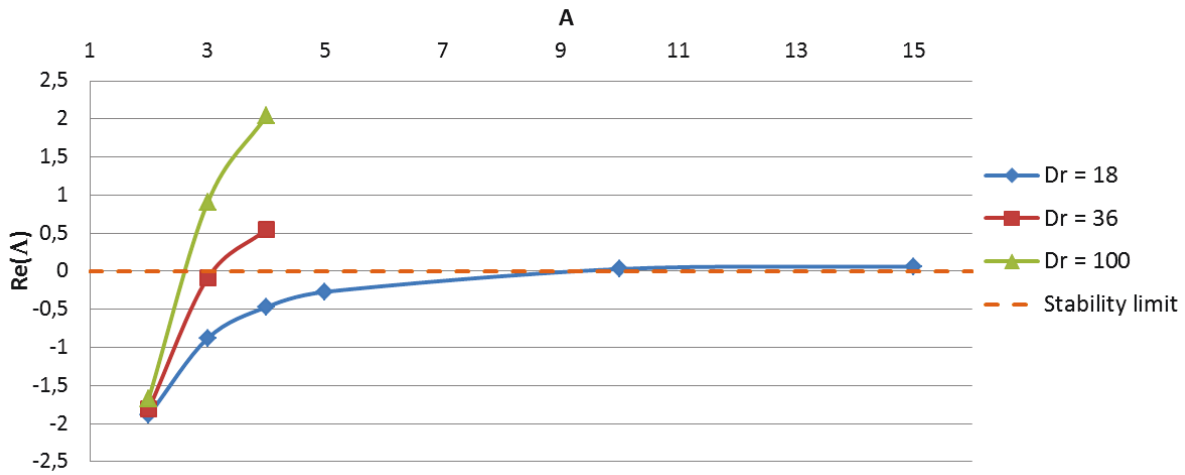


Figure V.19 - Stabilité de l'interface pour différents taux d'étirage et différents facteurs de forme

Ces résultats sont cohérents avec les travaux de Souli et *al*. qui ont utilisé une méthode de suivi d'interface similaire pour résoudre un problème de *Cast film*. Ils ont montré que la prise

en compte de l"écoulement du polymère dans la filière ainsi que l"augmentation du facteur de forme réduisent le taux d"étirage critique (figure V.20) [Souli, 1993].

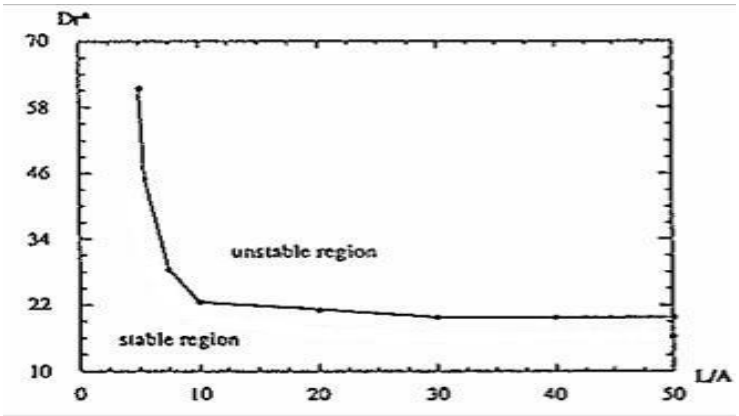


Figure V.20 - Taux d'étirage critique en fonction du facteur de forme $\frac{L}{2h_0W_0}$ [Souli, 1993]

V.3 Modèle 2D Newtonien tenant compte d'un différentiel de pression entre les deux faces du film de polymère

Pour rendre compte de l"effet de la boîte à vide, on considère désormais un différentiel de pression appliqué entre les deux faces du film de polymère pendant l"étirage. Pour ce faire, on impose une pression Δp sur la face supérieure du film et une pression nulle sur sa face inférieure. De plus, pour pouvoir rendre compte du dénivelé d qui peut exister entre la position de la filière d"extrusion et la position d"étirage, on modifie la condition aux limites sur la vitesse d"étirage en $x = A$. En effet, on observe expérimentalement que la direction de la vitesse d"étirage est très influencée par le dénivelé d. C"est pour cela qu"on relaxe l"hypothèse restrictive du modèle précédent qui suppose que la vitesse d"étirage est parallèle à l"axe x. L"étirage en $x = A$ est toujours assuré par un champ de vitesse constant et indépendant de y mais il fait désormais un angle θ avec l"horizontale. Cet angle représente une inconnue supplémentaire du problème et il doit être déterminé par le calcul.

V.3.1 Mise en équations du problème :

Il est clair que le modèle qu"on vient de décrire ne présente plus de symétrie par rapport à l"axe x. Donc, le domaine de calcul correspond à tout le domaine d"écoulement du polymère Ω. En considérant un fluide Newtonien incompressible et en négligeant comme précédemment les forces d"inertie et de gravité, le système d"équations (V.5) reste valable. On obtient donc un problème de Stokes adimensionnel (même adimensionnement que le modèle 2D précédent) qui est soumis à des conditions aux limites adimensionnelles différentes de celles du modèle 2D précédent (figure V.21) :

- Sur Γ_1 et Γ_3: $\vec{U} = \begin{bmatrix} 0 \\ 0 \end{bmatrix}$
- Sur Γ_2 : Un écoulement de Poiseuille dont la vitesse moyenne $U_0 = 1$ est imposé
- Sur Γ_4 : La vitesse d"étirage est imposée par $\vec{U}(A, y) = \begin{bmatrix} Dr\ \cos\theta \\ Dr\ \sin\theta \end{bmatrix}$, avec θ un angle inconnu à déterminer par le calcul et $A = \frac{L}{2h_0}$ le facteur de forme

- Sur l'interface avec l'air $\mathcal{H}_1$: la condition d'équilibre s'écrit $\sigma.\vec{n} = -\Delta p\,\vec{n}$, Δp étant le différentiel de pression adimensionnel imposé et $\vec{n}$ un vecteur normal à l'interface
- Sur l'interface avec l'air $\mathcal{H}_2$: la condition d'équilibre s'écrit $\sigma.\vec{n} = \vec{0}$, $\vec{n}$ étant un vecteur normal à l'interface

Notons que, similairement au modèle membrane, un dénivelé d entre la filière et la position d'étirage est considéré (voir figure IV.1).

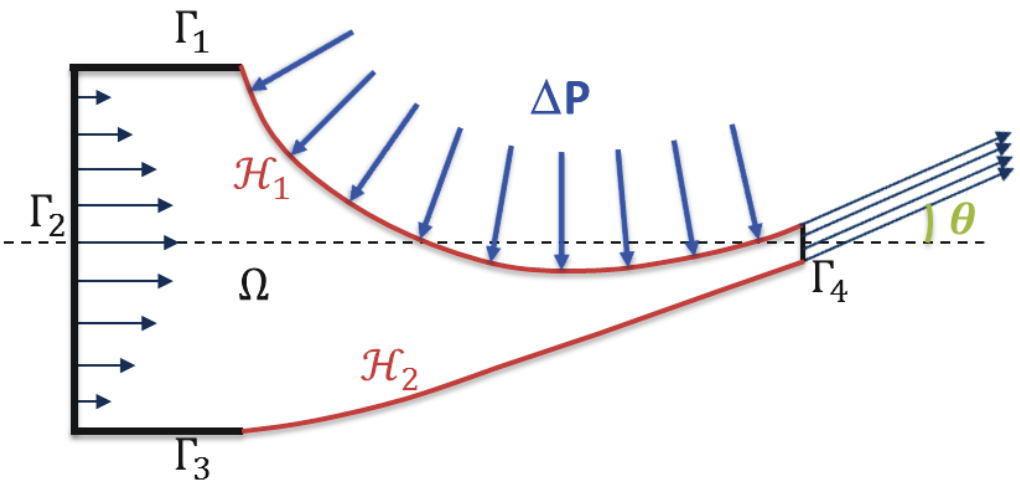


Figure V.21 - Géométrie du domaine d'écoulement ($d = 0$)

Le différentiel de pression adimensionnel Δp s'écrit :

$$\Delta p = \frac{2h_0}{\eta_p U_0}\widehat{\Delta p}$$

$\widehat{\Delta p}$ étant le différentiel de pression dimensionnel.

On est donc confronté à un problème de Stokes à résoudre sur un domaine Ω délimité par deux interfaces $\mathcal{H}_1$ et $\mathcal{H}_2$ dont la position, à l'état stationnaire, est inconnue et doit être déterminée par le calcul. Ces deux interfaces respectent, à l'état stationnaire, la condition de non miscibilité (V.7) qui doit permettre de calculer leur position.

V.3.2 Problème stationnaire : la résolution numérique des équations:

Le problème de Stokes est uniquement résolu par une stratégie de suivi d'interface itérative similaire à celle présentée au paragraphe (V.1.1.1). Contrairement au modèle 2D précédent, l'initialisation des deux interfaces n'est pas réalisée à l'aide de la solution analytique du problème membrane 1D à largeur constante, mais plutôt à l'aide d'une solution numérique du modèle membrane 1D newtonien, développée au paragraphe (IV.2), obtenue avec les mêmes paramètres. Cette solution est construite comme suit :

$$\begin{cases} h_1(x) = Y(x) + \dfrac{e(x)}{2} \\ h_2(x) = Y(x) - \dfrac{e(x)}{2} \end{cases}$$

$Y(x)$ et $e(x)$ étant la courbe moyenne et l'épaisseur calculées par le modèle membrane.

Après avoir initialisé les deux interfaces, la stratégie de calcul comporte quelques itérations de lissage permettant de s'approcher de la solution du problème, suivies par quelques itérations de Newton-Raphson permettant de calculer avec précision la position des deux interfaces $\mathcal{H}_1$ et $\mathcal{H}_2$ à l'état stationnaire.

V.3.2.1 Résolution du problème de Stokes : le calcul des champs de vitesse et de pression :

Comme dans le cas du modèle 2D précédent, certaines conditions aux bords représentent des inconnues du problème. Ces inconnues, à savoir les deux interfaces $\mathcal{H}_1$ et $\mathcal{H}_2$ et l'angle θ, doivent être initialisées avant toute résolution du problème de Stokes. Etant donnée une position des deux interfaces $\mathcal{H}_1$ et $\mathcal{H}_2$ et de l'angle θ, le problème de Stokes est légèrement modifié par rapport au cas précédent et il s'écrit sous la forme d'un problème mixte comme suit : trouver $(U,p) \in \mathcal{V} \times \mathcal{Q}$ tels que

$$a(U,V) + v(V,p) = l(v) \qquad \forall\, V \in \mathcal{V} \qquad \text{(V.29.a)}$$

$$b(U,q) = 0 \qquad \forall\, q \in \mathcal{Q} \qquad \text{(V.29.b)}$$

avec $a(U,V) = 2\int_\Omega \eta_p\, \epsilon(U) : \epsilon(V)$; $b(U,q) = -\int_\Omega p\, div(U)$ et $l(v) = -\int_{\mathcal{H}_1} \Delta p\, \vec{n} \cdot v$

Les espaces des fonctions test $\mathcal{V}_h$ et $\mathcal{Q}_h$ sont respectivement des sous-espaces des espaces de Sobolev $\mathcal{V} \subset \left(H_1(\Omega)\right)^2$ et $\mathcal{Q} \subset L^2(\Omega)$ définis par :

$$\mathcal{V} = \left\{V = (V_1, V_2) \in \left(H_1(\Omega)\right)^2;\ V_1 = V_2 = 0\ sur\ \Gamma_1, \Gamma_2, \Gamma_3 et\ \Gamma_4\right\}$$

$$\mathcal{Q} = \left\{q \in L^2(\Omega);\ \int_\Omega q = 0\right\}$$

Donc, on obtient un terme second membre supplémentaire par rapport aux équations (V.8).

En considérant une base de $\mathcal{V}_h$ et une base de $\mathcal{Q}_h$, l'approximation variationnelle du problème (V.29) s'écrit sous la forme du système linéaire suivant :

$$\begin{bmatrix} \mathrm{A} & B^t \\ B & 0 \end{bmatrix} \begin{bmatrix} U \\ P \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} F_U \\ 0 \end{bmatrix} \qquad \text{(V.30)}$$

U et P étant les vecteurs des valeurs nodales des champs de vitesse et de pression inconnus et F_U le vecteur second membre calculé selon la condition au bord imposée sur $\mathcal{H}_1$ en utilisant la définition d'un vecteur normal $\vec{n} = \begin{pmatrix} -\frac{\partial h_1}{\partial x} \\ 1 \end{pmatrix}$. En considérant l'élément $\mathcal{P}_1^+ - \mathcal{P}_1$, ce problème de Stokes est résolu par une méthode d'éléments finis similaire à celle utilisée dans le paragraphe (V.1.1.1). On obtient donc la vitesse et la pression en tout point du maillage.

V.3.2.2 Maillage utilisé :

Pour des contraintes de temps, la méthode de raccordement de maillage n'a pas été considérée ici et on s'est contenté d'utiliser un maillage structuré raffiné au niveau des deux singularités en sortie de filière.

Les deux interfaces $\mathcal{H}_1$ et $\mathcal{H}_2$ sont décrites par les interpolations linéaires par morceaux suivantes :

$$\begin{cases} h_i^1 = h_1(x_i) \\ h_i^2 = h_2(x_i) \end{cases} ; \; 0 \leq i \leq N \; ; \; x_0 = 0 \; ; \; x_N = L$$

avec $h_0^1 = h_0$ et $h_0^2 = -h_0$ (sachant que $2h_0 = 1$) et les h_i^1, h_i^2 $(1 \leq i \leq N)$ représentent les paramètres inconnus de l"interface.

Similairement au modèle 2D précédent, pour générer notre maillage, on définit un maillage structuré sur un domaine de référence $\Omega_{ref} = [-h_0; L] \times [-h_0; h_0]$ et on le déforme sur l"intervalle $[0; L]$ par la transformation suivante :

$$(x, y) \longmapsto \left(x, h_2(x) + \frac{y + h_0}{2h_0} \left(h_1(x) - h_2(x) \right) \right)$$

Afin d"éviter les problèmes numériques induits par les singularités de contraintes en sortie de filière, le maillage obtenu est raffiné radialement au voisinage des deux singularités comme dans le cas précédent.

V.3.2.3 Calcul numérique de la position des deux interfaces à l'état stationnaire:

Après avoir initialisé la position des deux interfaces $\mathcal{H}_1$ et $\mathcal{H}_2$ et l"angle θ, quelques itérations de lissage sont utilisées pour permettre de se rapprocher de la solution du problème. Au début de chaque itération de lissage, le problème de Stokes est résolu sur le domaine Ω, compte tenu de la position des deux interfaces $\mathcal{H}_1$ et $\mathcal{H}_2$ et de l"angle θ de l"itération précédente. En utilisant le champ de vitesse obtenu, une méthode d"éléments finis 1D identique à celle du (V.1.1.2.3.1) permet de calculer deux nouvelles interfaces $\mathcal{H}_1$ et $\mathcal{H}_2$. L"angle θ est calculé à partir de ces deux interfaces selon la formule suivante (figure V.22) :

$$\theta = arctg\left(\frac{(h_N^1 + h_N^2) - (h_{N-1}^1 + h_{N-1}^2)}{2\,(x_N - x_{N-1})} \right) \qquad \text{(V.31)}$$

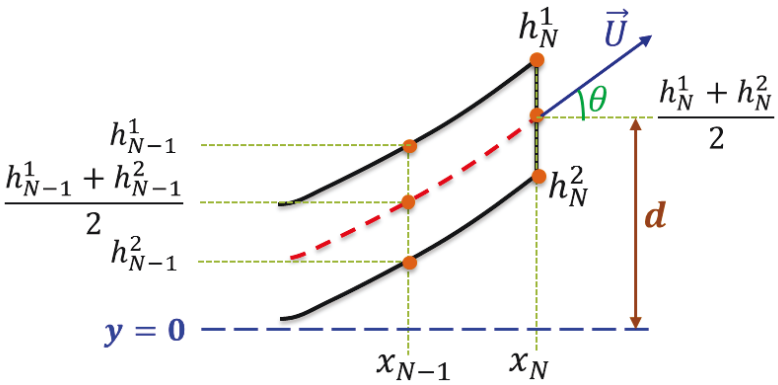


Figure V.22 - Calcul de l'angle θ à partir des deux interfaces

On remarque que cette technique de lissage est très robuste et efficace pour les faibles distances d"étirage. En augmentant la distance d"étirage, on observe qu"on s"expose de plus en plus à des risques de divergence.

A l"état stationnaire, les deux interfaces $\mathcal{H}_1$ et $\mathcal{H}_2$ doivent vérifier la condition de non miscibilité exprimée par l"équation (V.7). Chacune de ces deux interfaces étant discrétisée en N points, on obtient les $2N$ équations suivantes :

$$\begin{bmatrix} f_1^1(h_1^1,\dots,h_N^1,h_1^2,\dots,h_N^2,\theta) \\ \vdots \\ f_N^1(h_1^1,\dots,h_N^1,h_1^2,\dots,h_N^2,\theta) \\ f_1^2(h_1^1,\dots,h_N^1,h_1^2,\dots,h_N^2,\theta) \\ \vdots \\ f_N^2(h_1^1,\dots,h_N^1,h_1^2,\dots,h_N^2,\theta) \end{bmatrix} = 0 \qquad \text{(V.32)}$$

avec $f_i^j(h_1^1,\dots,h_N^1,h_1^2,\dots,h_N^2,\theta) = -u(x_i,h_i)\frac{\partial h_j}{\partial x}(x_i) + v(x_i,h_i)\,;1 \le i \le n \; et \; j \in \{1,2\}$

Comme on dispose de $2N+1$ inconnues, il manque une seule équation pour que le problème soit bien posé. Le dénivelé adimensionnel d entre la filière et la position d"étirage étant un paramètre imposé du modèle, on établit l"équation suivante (figure V.22) :

$$\frac{h_N^1 + h_N^2}{2} = d \qquad \text{(V.33)}$$

On définit la fonction discrète G, de $\mathbb{R}^{2N+1}$ vers $\mathbb{R}^{2N+1}$, par :

$$G(h_1^1,\dots,h_N^1,h_1^2,\dots,h_N^2,\theta) = \begin{bmatrix} f_1^1(h_1^1,\dots,h_N^1,h_1^2,\dots,h_N^2,\theta) \\ \vdots \\ f_N^1(h_1^1,\dots,h_N^1,h_1^2,\dots,h_N^2,\theta) \\ f_1^2(h_1^1,\dots,h_N^1,h_1^2,\dots,h_N^2,\theta) \\ \vdots \\ f_N^2(h_1^1,\dots,h_N^1,h_1^2,\dots,h_N^2,\theta) \\ h_N^1 + h_N^2 - 2d \end{bmatrix}$$

D"où la solution stationnaire du problème, obtenue en résolvant l"équation :

$$G(h_1^1,\dots,h_N^1,h_1^2,\dots,h_N^2,\theta) = 0 \qquad \text{(V.34)}$$

Cette équation est résolue numériquement par une méthode itérative de Newton-Raphson. La solution obtenue à partir des itérations de lissage sert d"initialisation pour les interfaces $\mathcal{H}_1$ et $\mathcal{H}_2$ et l"angle θ. A chaque itération, le problème de Stokes est résolu en fonction des interfaces et de l"angle θ déterminés à l"itération précédente. Compte tenu du champ de vitesse obtenu, la fonction G et son gradient ∇G sont calculés numériquement en utilisant l"approximation du paragraphe (V.1.1.2.3.2.) pour des δh et $\delta\theta$ suffisamment faibles. Le nouvel angle θ et la nouvelle position de l"interface $(h_1^{1\prime},\dots,h_N^{1\prime},h_1^{2\prime},\dots,h_N^{2\prime},\theta')$ sont donc donnés par :

$$\begin{bmatrix} h_1^{1\prime} \\ \vdots \\ h_N^{1\prime} \\ h_1^{2\prime} \\ \vdots \\ h_N^{2\prime} \\ \theta' \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} h_1^1 \\ \vdots \\ h_N^1 \\ h_1^2 \\ \vdots \\ h_N^2 \\ \theta \end{bmatrix} - (\nabla G)^{-1}.\begin{bmatrix} f_1^1(h_1^1,\dots,h_N^1,h_1^2,\dots,h_N^2,\theta) \\ \vdots \\ f_N^1(h_1^1,\dots,h_N^1,h_1^2,\dots,h_N^2,\theta) \\ f_1^2(h_1^1,\dots,h_N^1,h_1^2,\dots,h_N^2,\theta) \\ \vdots \\ f_N^2(h_1^1,\dots,h_N^1,h_1^2,\dots,h_N^2,\theta) \\ h_N^1 + h_N^2 - 2d \end{bmatrix}$$

Après quelques itérations de Newton-Raphson, on détermine avec précision la position des deux interfaces $\mathcal{H}_1$ et $\mathcal{H}_2$ à l'état stationnaire ainsi que l'angle θ (figure V.23).

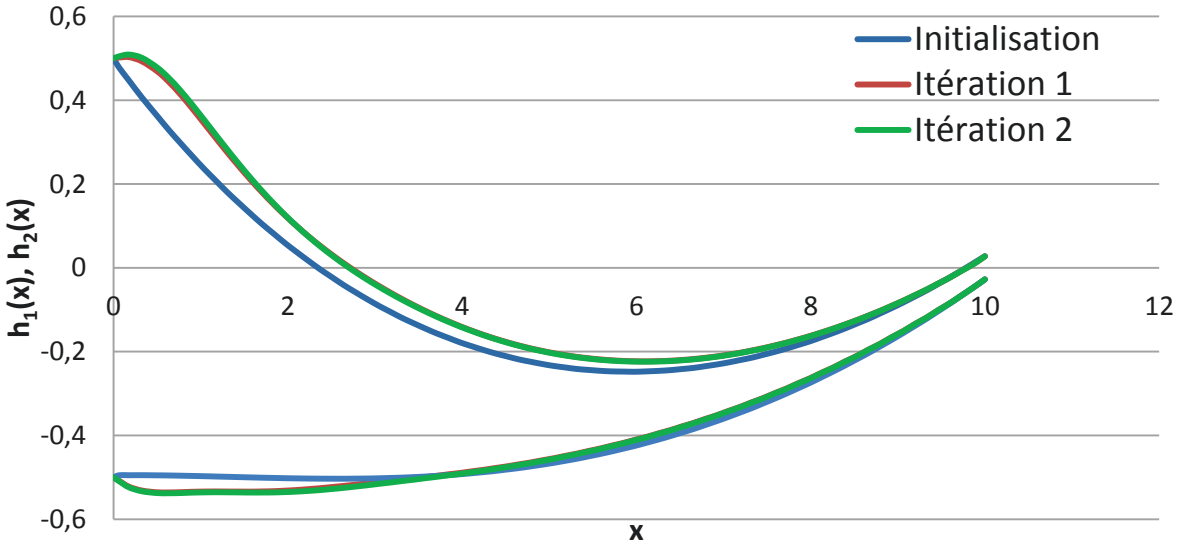


Figure V.23 - Evolution de la forme des deux interfaces au cours des deux premières itérations de lissage ($A = 10$ et $Dr = 18$)

V.3.2.4 Résultats numériques de l'approche stationnaire :

V.3.2.4.1 Comparaison avec le modèle 2D précédent pour $\Delta p = 0$:

On considère un taux d'étirage $Dr = 18$, un dénivelé adimensionnel $d = 0$, un différentiel de pression $\Delta p = 0$ et un facteur de forme $A = \frac{L}{2h_0} = 2$. Dans le but de valider ce modèle par rapport au modèle 2D précédent, on compare la solution stationnaire obtenue avec les deux modèles. On remarque que le modèle 2D qui tient compte de Δp et θ a retrouvé numériquement un angle $\bar{\theta} = 0$, ce qui conforte la modélisation utilisée. La figure (V.24) compare les deux méthodes en termes de forme d'interface et profil de la composante de vitesse u selon l'axe de symétrie. On observe que les deux méthodes ont permis d'obtenir quasiment la même solution stationnaire. Le léger décalage entre les deux solutions est dû principalement au maillage utilisé qui n'est pas le même dans les deux cas.

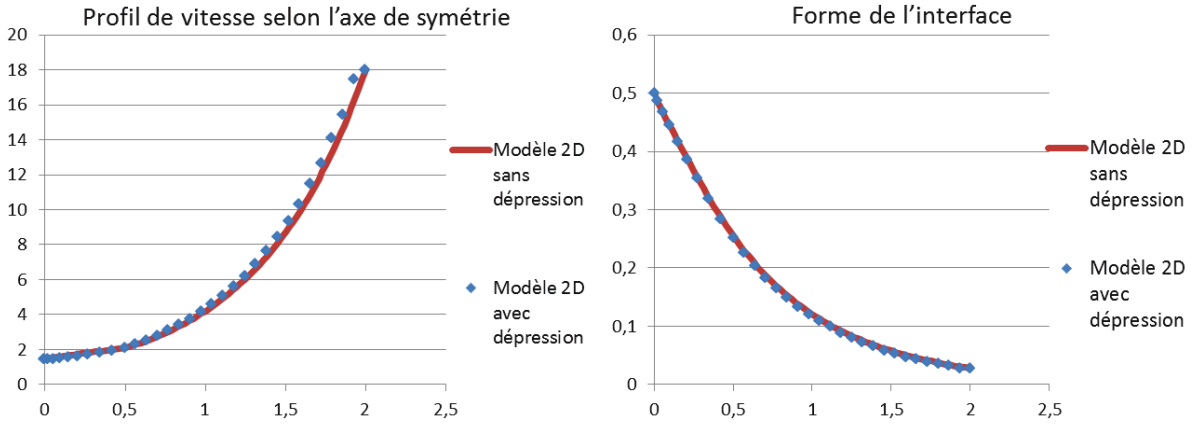


Figure V.24 - Comparatif des deux modèles 2D pour Δp=0

V.3.2.4.2 Forme de l'interface en fonction du facteur de forme A :

On considère un taux d'étirage $Dr = 18$, un dénivelé $d = 0$ et quatre facteurs de forme différents. Afin de pouvoir comparer des résultats correspondant à des niveaux de dépression équivalents avec le modèle membrane, on établit une relation entre le différentiel de pression adimensionnel et le nombre adimensionnel B défini dans le chapitre sur les modèles membrane (IV.2.2) :

$$B = A^2 \, \Delta p \qquad \text{(V.35)}$$

On considère $B = 5$ et on calcule le différentiel de pression adimensionnel correspondant, pour chacun des facteurs de forme considérés, selon l'équation (V.35). La figure (V.25) montre la forme de l'interface à l'état stationnaire obtenue par la méthode de suivi d'interface pour chacun des facteurs de forme. Pour $A = 15$, on observe un gonflement en sortie de filière. Par contre, il est difficile de mesurer ce gonflement surtout en bas de la filière parce que le problème n'est plus symétrique. Néanmoins, on observe que le gonflement est plus prononcé en bas de la filière, ce qui est une conséquence logique du différentiel de pression appliqué entre les deux faces du film. De même pour $A = 10$, on observe un léger gonflement en sortie de filière. Ce gonflement est également dissymétrique mais il est beaucoup moins prononcé que celui du cas $A = 15$.

Dans le cas d'un facteur de forme $A = 5$, c'est à dire pour une distance d'étirage trois fois plus courte que le cas $A = 15$, aucun gonflement n'est observé en sortie de filière. De la même manière, dans le cas $A = 2$, aucun gonflement n'est observé en sortie de filière et on observe même un décrochement brutal de l'interface au niveau de la lèvre supérieure de la filière. Par conséquent, on peut conclure que, comme pour le modèle 2D précédent, le gonflement en sortie de filière est très influencé par le facteur de forme A et qu'il disparaît pour les faibles distances d'étirage.

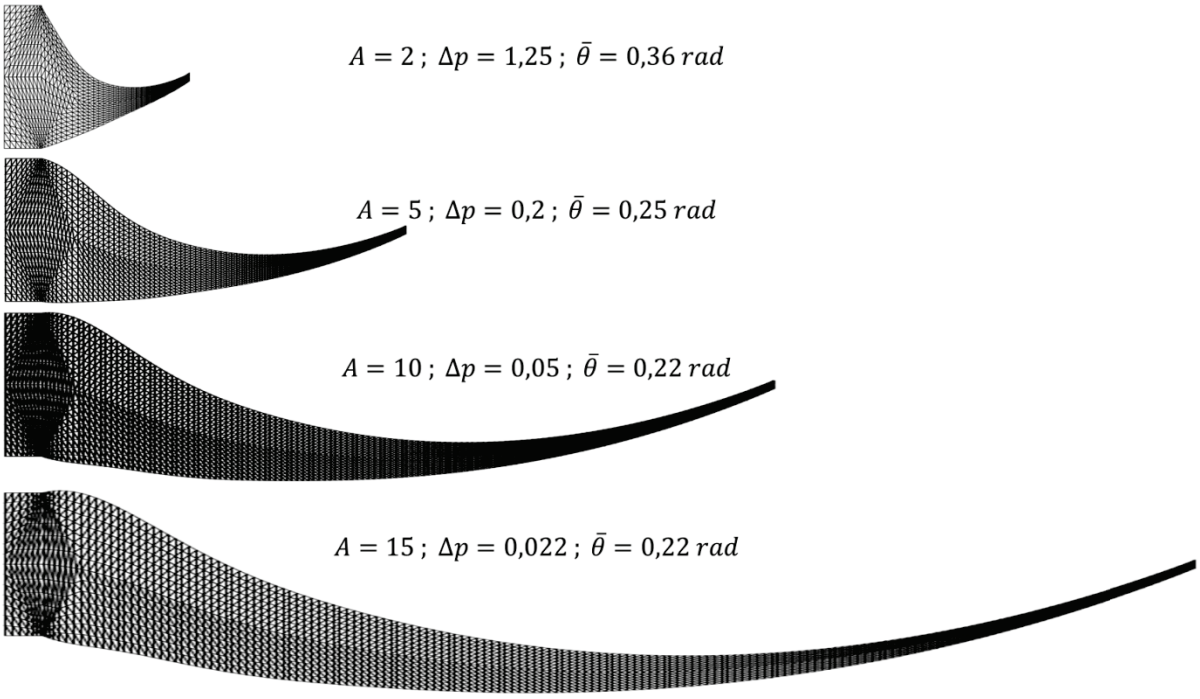


Figure V.25 - Forme de l'interface pour Dr=18 et différents facteurs de forme ($B = 5$)

Par ailleurs, on remarque que, pour les cas $A = 15$ et $A = 10$, l"angle entre la courbe moyenne et l"horizontal à la fin d"étirage à l"état stationnaire est le même ($\bar{\theta} = 0.22$). En réduisant le facteur de forme, on observe que la valeur de cet angle augmente. Notons que cet angle vaut $\bar{\theta} = 0.22$ dans le cas du modèle membrane pour $Dr = 18$ et dans les mêmes conditions de pression ($B = 5$). On retrouve donc la même valeurs de l"angle $\bar{\theta}$ pour $A = 10$ et $A = 15$, ce qui n"est pas le cas pour $A \leq 5$. Le modèle membrane perd donc sa validité pour des facteurs de forme inférieurs à $A = 5$.

V.3.2.4.3 Champs de pression et de contraintes

On considère le cas $A = 2$; $Dr = 18$; $\Delta p = 1.25$; $d = 0$. Les figures V.26, V.27 et V.28 montrent respectivement le champ de vitesse (norme $U = \sqrt{u^2 + v^2}$), le champ de pression et le champ de contrainte σ_{xx}. La contrainte σ_{xx} est calculée aux nœuds en *post-processing* en considérant une moyenne arithmétique sur les éléments voisins de chaque nœud. D"après le champ de vitesse, on remarque que, similairement au modèle 2D symétrique, le modèle membrane est valide dans la dernière partie de l"étirage.

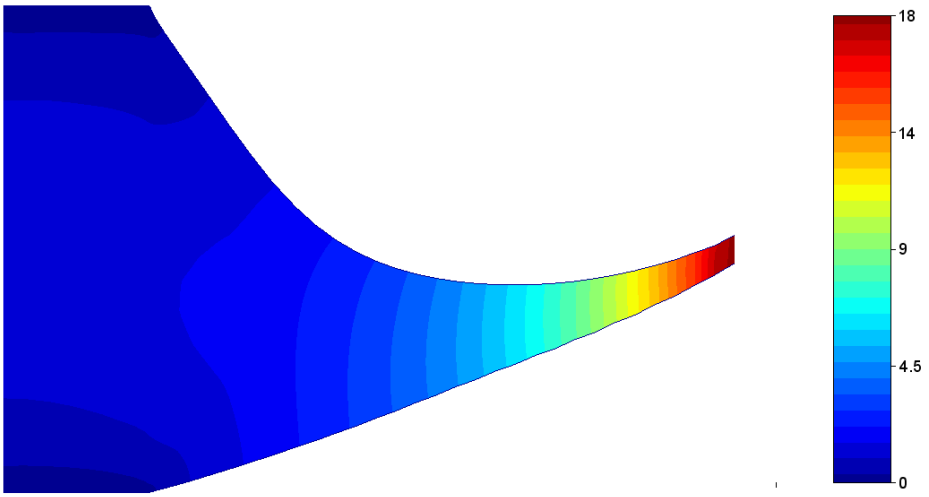


Figure V.26 - Champ de vitesse (norme) pour $A = 2$; $Dr = 18$; $\Delta p = 1.25$; $d = 0$

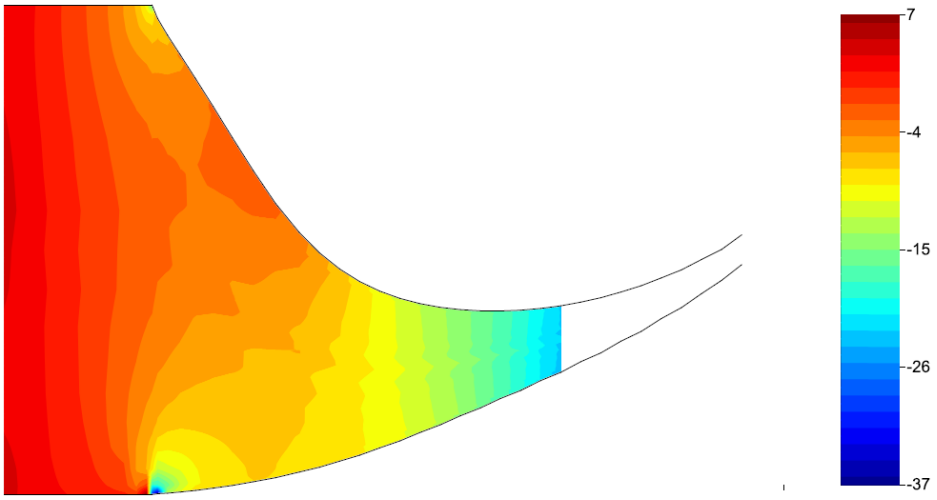


Figure V.27 - Champ de pression pour $A = 2$; $Dr = 18$; $\Delta p = 1.25$; $d = 0$

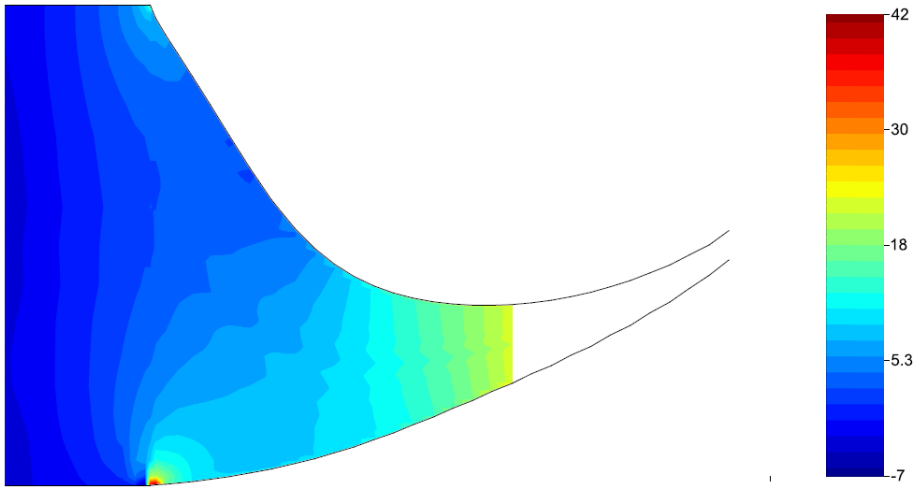


Figure V.28 - Champ de contrainte σ_{xx} pour $A = 2$; $Dr = 18$; $\Delta p = 1.25$; $d = 0$

On remarque que la singularité de contrainte est plus accentuée au niveau de la lèvre inférieure de la filière qu"au niveau de la lèvre supérieure. Cela est expliqué par la dissymétrie de l"angle ω (angle que fait la surface libre avec la lèvre de la filière) entre les deux lèvres de la filière. En effet, nous avons montré dans le paragraphe (V.1.1.3.2) que la singularité est accentuée lorsque l"angle ω augmente. Comme un dénivelé $d = 0$ est considéré dans ce cas, la dissymétrie de l"angle ω entre les deux lèvres est provoquée uniquement par le différentiel de pression.

V.3.2.4.4 Influence du différentiel de pression sur la singularité de contrainte en sortie de filière :

On considère le cas $A = 2$; $Dr = 18$; $d = 0$. On calcule la solution stationnaire sur un même maillage (maillage du cas $A = 2$ de la figure V.25) pour différents différentiels de pression. La figure V.29 montre le profil de pression sur le segment qui relie les deux points singuliers en sortie de filière pour différentes valeurs de différentiel de pression. Notons que les valeurs obtenus sont très dépendantes du maillage utilisé. Pour $\Delta p = 0$ le profil de pression est symétrique par rapport à l"axe x et donc la valeur numérique de pression est la même au niveau des deux lèvres de la filière $p(0{,}0.5) = p(0, -0.5) = -22$. Bien entendu, cela n"a pas de sens de donner une valeur adimensionnelle de la pression puisqu"elle dépend du maillage utilisé. Néanmoins, $p = 22$ correspond à $\hat{p} = \frac{\eta_p \overline{U_0}}{2h_0} p = 0.18\, MPa$ (pour $2h_0 = 0.7\, mm$, $U_L = 300\, m/min$, $T = 150\, °C$ et $\eta_p = 20\, Pa.s$), ce qui n"est pas une valeur ridicule. En effet, la contrainte critique d"apparition visuelle du défaut de « peau de requin » pour l"extrusion de PEBDL, qui est expliqué dans plusieurs études par une rupture de la peau de l"extrudat [Cogswell, 1977], est de l"ordre de $0.1\, MPa$ ([Venet, 1997], [Agassant, 2006], [Agassant, 2014]).

En augmentant le différentiel de pression, on observe que la pression au niveau de la lèvre supérieure augmente et que la pression au niveau de la lèvre inférieure diminue par rapport à la valeur obtenue dans le cas symétrique ($\Delta p = 0$). La singularité est donc exacerbée au niveau de la lèvre inférieure et atténuée au niveau de la lèvre inférieure en augmentant le différentiel de pression. En effet, l"augmentation du différentiel de pression rend la courbure

du film plus importante et par conséquent l"angle ω diminue au niveau de la lèvre supérieure et augmente au niveau de la lèvre inférieure (figure V.30). D"après le calcul de contrainte au voisinage de la singularité réalisé dans le paragraphe (V.1.1.3.2), on peut conclure que la singularité de contrainte s"amplifie au niveau de la lèvre inférieure et s"atténue au niveau de la lèvre supérieure en augmentant le différentiel de pression, ce qui est en accord avec les résultats de la figure V.29.

L"influence de cette singularité de contrainte sur le défaut de couverture évoqué au chapitre III sera discutée au chapitre VII.

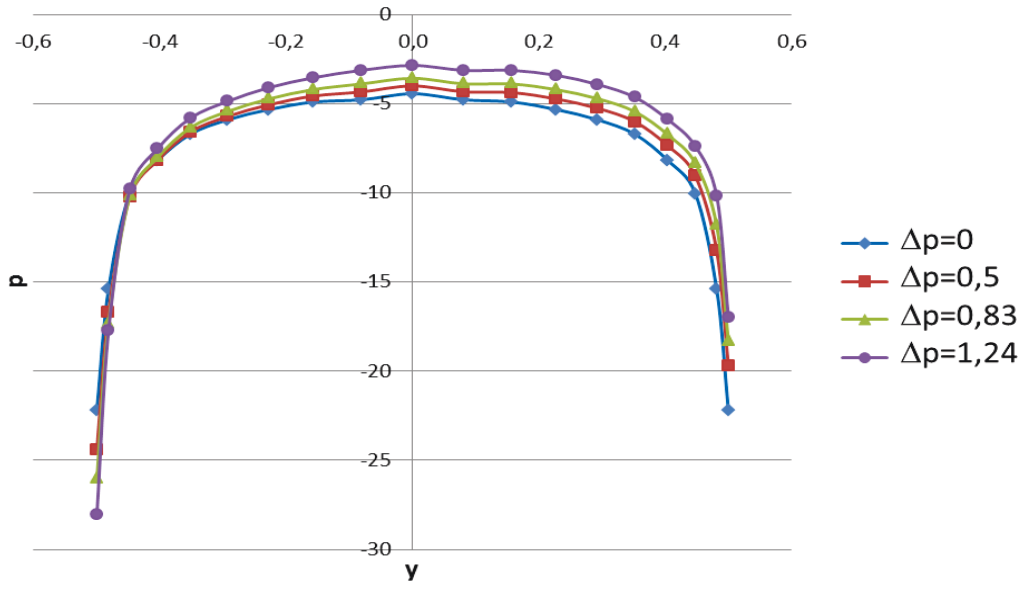


Figure V.29 - Le profil de pression sur le segment $x = 0$ pour différentes valeurs de Δp dans le cas $A = 2$; $Dr = 18$; $d = 0$

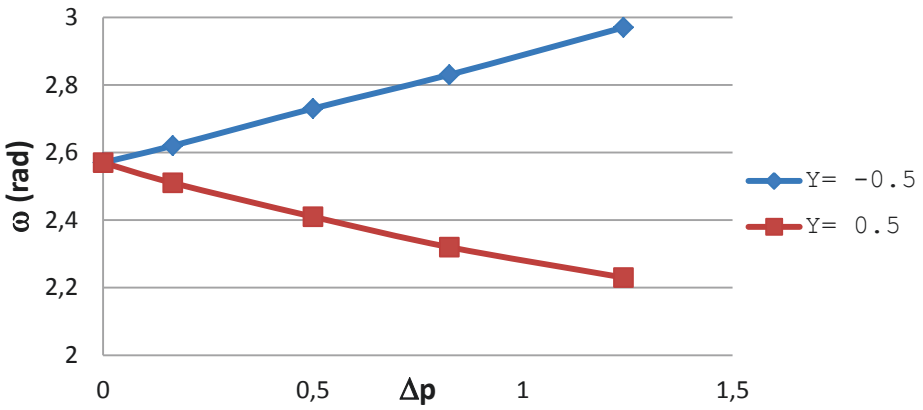


Figure V.30 - Evolution de l'angle ω en fonction de Δp au niveau des deux lèvres de la filière pour $A = 2$; $Dr = 18$; $d = 0$

V.3.3 Etude de la stabilité des solutions stationnaires :

V.3.3.1 Méthode de stabilité linéaire : équations linéarisées :

La méthode de stabilité linéaire est utilisée pour étudier la stabilité de la solution stationnaire. A la différence du modèle 2D symétrique précédent, l"étude de stabilité doit porter sur les deux interfaces $\mathcal{H}_1$ et $\mathcal{H}_2$. S"agissant d"un écoulement instationnaire, la condition de non

miscibilité donnée par l'équation (V.7) n'est plus valable et les deux interfaces $\mathcal{H}_1$ et $\mathcal{H}_2$ sont gouvernées par l'équation cinématique de l'interface qui est donnée par :

$$\begin{cases} \dfrac{\partial h_1}{\partial t} = F_1(h_1, h_2, \theta) \quad avec\ F_1(h_1, h_2, \theta) = -u_{h_1}\dfrac{\partial h_1}{\partial x} + v_{h_1} \\ \dfrac{\partial h_2}{\partial t} = F_2(h_1, h_2, \theta) \quad avec\ F_2(h_1, h_2, \theta) = -u_{h_2}\dfrac{\partial h_2}{\partial x} + v_{h_2} \end{cases} \tag{V.36}$$

avec $u_{h_1} = u(x, h_1(x))$; $v_{h_1} = v(x, h_1(x))$; $u_{h_2} = u(x, h_2(x))$ et $v_{h_2} = v(x, h_2(x))$

Pour simplifier les calculs de stabilité, on considère l'angle entre la courbe moyenne et l'horizontal à la fin d'étirage constant ($\theta = \bar{\theta}$) et on introduit des perturbations sur les deux interfaces $\mathcal{H}_1$ et $\mathcal{H}_2$ par rapport à leur position à l'état stationnaire $\overline{h_1}$ et $\overline{h_2}$ comme suit :

$$\begin{cases} h_1(t,x) = \overline{h_1}(x) + e^{\Lambda t}\widehat{h_1}(x) \\ h_2(t,x) = \overline{h_2}(x) + e^{\Lambda t}\widehat{h_2}(x) \end{cases} \tag{V.37}$$

En injectant ces deux expressions dans l'équation (V.36) et en négligeant les termes d'ordre 2, on obtient les équations linéarisées suivantes :

$$\begin{cases} \Lambda\widehat{h_1} = \dfrac{\partial F_1}{\partial h_1}\left(\overline{h_1}, \overline{h_2}, \bar{\theta}\right)\widehat{h_1}(x) + \dfrac{\partial F_1}{\partial h_2}\left(\overline{h_1}, \overline{h_2}, \bar{\theta}\right)\widehat{h_2}(x) \\ \Lambda\widehat{h_2} = \dfrac{\partial F_2}{\partial h_1}\left(\overline{h_1}, \overline{h_2}, \bar{\theta}\right)\widehat{h_1}(x) + \dfrac{\partial F_2}{\partial h_2}\left(\overline{h_1}, \overline{h_2}, \bar{\theta}\right)\widehat{h_2}(x) \end{cases} \tag{V.38}$$

En posant $H(t,x) = [h_1(t,x)\ ;\ h_2(t,x)]$ et $F(h_1, h_2, \theta) = [F_1(h_1, h_2, \theta)\ ;\ F_2(h_1, h_2, \theta)]$, l'équation (V.37) s'écrit :

$$\nabla_H F(\bar{H}, \bar{\theta})\widehat{H} = \Lambda\widehat{H} \tag{V.39}$$

avec $\nabla_H F(\bar{H}, \bar{\theta}) = \begin{bmatrix} \frac{\partial F_1}{\partial h_1}\left(\overline{h_1}, \overline{h_2}, \bar{\theta}\right) & \frac{\partial F_1}{\partial h_2}\left(\overline{h_1}, \overline{h_2}, \bar{\theta}\right) \\ \frac{\partial F_2}{\partial h_1}\left(\overline{h_1}, \overline{h_2}, \bar{\theta}\right) & \frac{\partial F_2}{\partial h_2}\left(\overline{h_1}, \overline{h_2}, \bar{\theta}\right) \end{bmatrix}$

Par conséquent, le problème de stabilité se résume à un problème aux valeurs propres classique comme dans le cas du modèle 2D précédent, avec Λ une valeur propre et $\widehat{H}$ un vecteur propre.

La résolution numérique de ce problème aux valeurs propres passe par le calcul du gradient $\nabla_H F(\bar{H}, \bar{\theta})$ qui est réalisé en utilisant l'approximation du paragraphe (V.1.1.2.3.2.) pour un δh suffisamment faible. Ayant obtenu la matrice $\nabla_H F(\bar{H}, \bar{\theta})$, le spectre de valeurs propres est obtenu par une simple commande du logiciel *Scilab*.

V.3.3.2 Résultats de stabilité :

On considère un dénivelé $d = 0$ et on étudie la stabilité de la solution stationnaire par la méthode de stabilité linéaire en fonction des autres paramètres du modèle : le différentiel de pression Δp, le facteur de forme A et le taux d'étirage Dr.

V.3.3.2.1 Effet du différentiel de pression sur la stabilité de la solution stationnaire :

On considère un taux d"étirage $Dr = 18$. La figure V.31 montre l"évolution de la partie réelle de la valeur propre dominante en fonction du différentiel de pression pour différents facteurs de forme. Pour $\Delta p = 0$, on retrouve bien les mêmes valeurs propres dominantes obtenues avec le modèle 2D précédent, ce qui constitue une première validation des deux approches 2D.

De plus, on observe que, pour les courtes distances d"étirage ($A = 2$ et $A = 3$), la partie réelle de la valeur propre dominante est négative à $\Delta p = 0$ et elle diminue en augmentant le différentiel de pression. Donc, on peut conclure que, dans le cas de ces deux facteurs de forme, la solution stationnaire est tout le temps stable pour $Dr = 18$, et que le différentiel de pression améliore sa stabilité, comme dans le cas du modèle membrane.

Pour un facteur de forme $A = 5$, on observe qu"à $\Delta p = 0$, la partie réelle de la valeur propre dominante est négative. En augmentant le différentiel de pression, elle conserve le même ordre de grandeur jusqu"à environ $\Delta p = 0.5$ où elle devient positive. On peut donc conclure que, pour des différentiels de pression inférieurs à un certain seuil $\Delta p = 0.4$, la solution stationnaire est stable et sa stabilité ne dépend pas du différentiel de pression. A partir de ce seuil de pression, la solution stationnaire commence à perdre stabilité pour devenir instable à $\Delta p = 0.5$.

Pour $A = 10$, $Re(\Lambda)$ est légèrement positive à $\Delta p = 0$ et elle augmente en augmentant le différentiel de pression. Donc, pour un différentiel de pression nul, la solution stationnaire est à la limite de stabilité et elle devient de plus en plus instable en augmentant Δp.

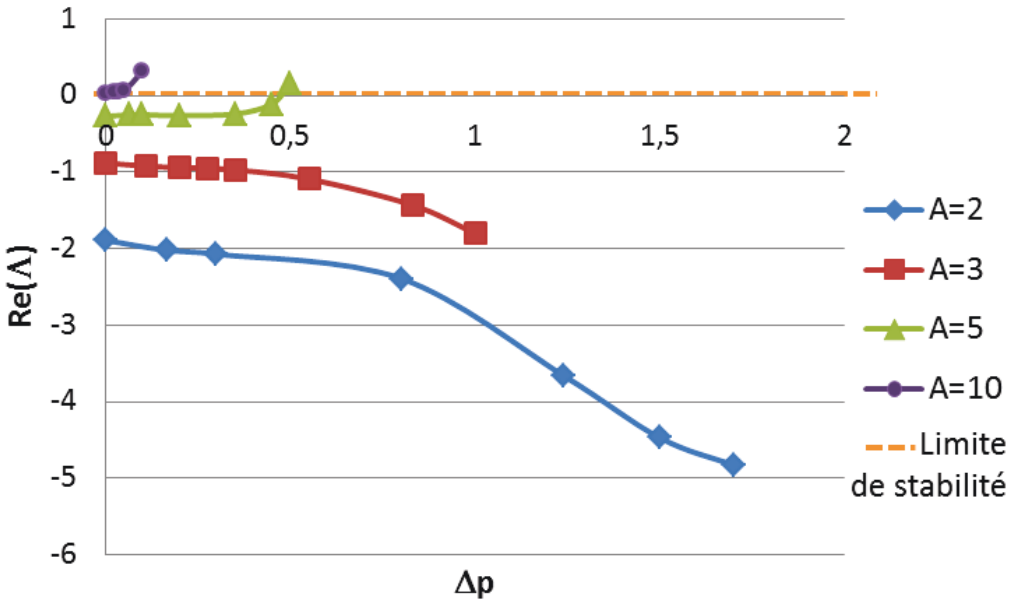


Figure V.31 - Stabilité de la solution stationnaire en fonction du différentiel de pression pour différents facteurs de forme ($Dr = 18$)

Finalement, on peut conclure que l"effet du différentiel de pression sur la stabilité de la solution stationnaire est très influencé par le facteur de forme. En effet, pour les courtes

distances d"étirage, le différentiel de pression représente un facteur stabilisant du procédé mais il se transforme en un facteur déstabilisant à partir d"un facteur de forme $A = 5$.

V.3.3.2.2 Effet du taux d'étirage sur la stabilité de la solution stationnaire :

Afin d"étudier la stabilité de la solution stationnaire à des différentiels de pression équivalents, on considère $B = 5$ et on calcule le différentiel de pression correspondant pour chacun des facteurs de forme considérés selon l"équation (V.35). La figure V.32 montre l"évolution de la partie réelle de la valeur propre dominante en fonction du taux d"étirage pour différents facteurs de forme.

Pour un facteur de forme $A = 5$, $Re(\Lambda)$ est négative à $Dr = 18$ et elle augmente en augmentant le taux d"étirage pour devenir positive à partir de $Dr = 23$. Donc, la solution stationnaire est stable jusqu"à un taux d"étirage critique d"environ 23 et elle devient de plus en plus instable en augmentant le taux d"étirage Dr.

Pour un facteur de forme $A = 3$, on observe qu"à $Dr = 18$, la partie réelle de la valeur propre dominante est négative. En augmentant le taux d"étirage, on observe que $Re(\Lambda)$ augmente légèrement puis se stabilise tout en conservant approximativement le même ordre de grandeur. On peut donc conclure que la solution stationnaire est stable et qu"elle n"est pas très influencée par le taux d"étirage.

Dans le cas $A = 2$, la partie réelle de la valeur propre dominante est négative à $Dr = 18$ et elle devient de plus en plus négative en augmentant le taux d"étirage. L"augmentation du taux d"étirage améliore la stabilité de la solution, ce qui représente un comportement paradoxal par rapport à ce qu"on vient de voir avec les modèles membrane et 2D symétrique et aussi par rapport à la littérature ([Souli, 1993], [Silagy, 1998]).

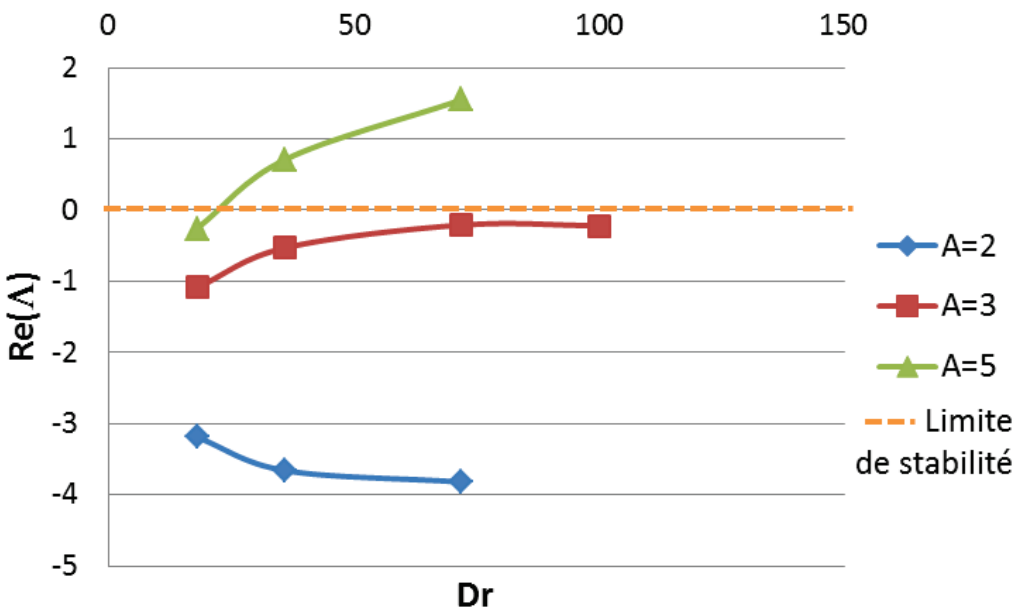


Figure V.32 - Stabilité de la solution stationnaire en fonction du taux d'étirage pour différents facteurs de forme ($B = 5$)

V.3.3.2.3 Effet du facteur de forme sur la stabilité de la solution stationnaire :

On considère un taux d'étirage $Dr = 18$ et on étudie la stabilité de la solution stationnaire en fonction du différentiel de pression et du facteur de forme. Afin de traiter des différentiels de pression équivalents, on considère trois niveaux de dépression représentés chacun par un nombre adimensionnel B. Pour chaque B, on calcule le différentiel de pression correspondant au facteur de forme considéré selon l'équation (V.35). La figure V.33 montre l'évolution de la partie réelle de la valeur propre dominante en fonction du facteur de forme A pour les trois niveaux de dépression.

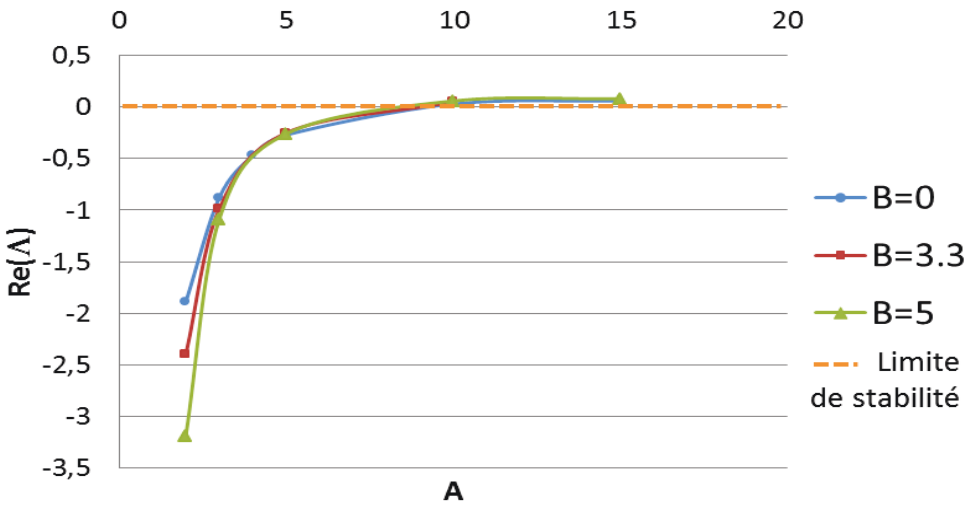


Figure V.33 - Stabilité de la solution stationnaire en fonction du facteur de forme pour différents différentiels de pression

On observe que, pour les trois valeurs de B considérées, $Re(\Lambda)$ est positive pour des facteurs supérieurs à environ $A = 8$ et elle diminue rapidement en réduisant le facteur de forme. Donc, la réduction de la distance d'étirage améliore la stabilité de la solution stationnaire qui devient stable indépendamment du différentiel de pression pour les faibles facteurs de forme.

De plus, on observe que pour des facteurs de forme inférieurs à $A = 4$, l'augmentation du nombre B (c'est à dire du niveau de dépression) améliore la stabilité de la solution stationnaire. En revanche, le différentiel de pression n'a pas d'influence sur la stabilité pour les grands facteurs de forme. Ce résultat confirme ceux du paragraphe (V.3.3.2.2) où on montre que l'effet du différentiel de pression sur la stabilité de la solution stationnaire est très influencée par le facteur de forme.

V.4 Conclusions :

Nous avons présenté deux approches 2D Newtonienne permettant de modéliser le procédé « Revoluflex ». Nous avons commencé par présenter un modèle 2D symétrique qui, à l'inverse des modèles de type membrane, permet de tenir compte de la courte distance d'étirage. Le problème stationnaire relatif à ce premier modèle a été traité à l'aide de deux approches numériques différentes : une méthode de suivi d'interface couplée à une technique de décomposition de domaine et une méthode de simulation directe par capture d'interface. Ces deux méthodes, complètement différentes, ont permis de trouver quasiment la même

solution stationnaire. La stabilité de la solution stationnaire a été également étudiée à l"aide de deux approches différentes : la méthode de stabilité linéaire et la méthode de simulation directe. Nous avons montré, dans un cas d"étude, que ces deux méthodes permettent d"obtenir les mêmes résultats de stabilité. La contribution essentielle de ce modèle réside dans le fait qu"il a permis de montrer que la stabilité du procédé est très influencée par le facteur de forme A et qu"elle s"améliore en réduisant la distance d"étirage. Nous avons montré également que le procédé devient stable à très courte distance d"étirage indépendamment du taux d"étirage considéré.

Le deuxième modèle 2D Newtonien prend en compte un différentiel de pression appliqué entre les deux faces du film, en plus de la courte distance d"étirage. Ce modèle a été résolu uniquement avec une approche de suivi d"interface couplée à une méthode de stabilité linéaire. Ce modèle, dont la complexité de mise en œuvre est bien plus grande, permet de retrouver les résultats du modèle 2D symétrique pour $\Delta p = 0$ et aussi d"étudier l"influence de plusieurs paramètres du procédé sur la stabilité de la solution stationnaire. Nous avons mis en évidence que le différentiel de pression est un facteur stabilisant du procédé mais cela n"est valable que pour des facteur de forme inférieurs à $A = 5$. De plus, nous avons montré que pour une très courte distance d"étirage et un différentiel de pression relativement important, le taux d"étirage, qui a toujours représenté un facteur déstabilisant, se transforme en un facteur stabilisant du procédé. Ce résultat est paradoxal par rapport à tous les modèles développés dans la littérature, mais il est établi dans des conditions très spécifiques qui n"ont pas été explorés auparavant.

Bien que ces deux modèles soient basés sur une loi de comportement simpliste, ils ont permis d"expliquer plusieurs phénomènes expérimentaux rencontrés avec le procédé « Revoluflex », ce qui sera discuté au chapitre VII.

BIBLIOGRAPHIE

[Agassant, 2006] J.-F. Agassant, D.R. Arda, C. Combeaud, A. Merten, H. Münstedt, M. R. Mackley, L. Robert, B. Vergnes, “Polymer Processing Extrusion Instabilities and Methods for their Elimination or Minimisation,” *Int. Polym. Proc.*, Vol. 21, pp. 239–255, 2006.

[Agassant, 2014] J.-F. Agassant, P. Avenas, J.-P. Sergent, B. Vergnes, M. Vincent, *Mise en forme des polymères*. Cachan: Lavoisier, 4 ed., 2014.

[Alauzet, 2003] F. Alauzet, P.J. Frey, “Estimateur d‟erreur géométrique et métriques anisotropes pour l‟adaptation de maillage. partie 2 : exemples d‟applications,” rapport de recherche, RR-4789, 2003.

[Arnold, 1984] D. Arnold, F. Brezzi, M. Fortin, “A stable finite element for the Stokes equations,” *Calcolo*, vol. 23, pp. 337–344, 1984.

[Ben Belgacem, 2000] F. Ben Belgacem, “The mixed mortar finite element method for the incompressible stokes problem: Convergence analysis,” *SIAM J. Numer. Anal.*, vol. 37, pp. 1085–1100, 2000.

[Bernardi, 1992] C. Bernardi, Y. Maday, A. Patera, “A new nonconforming approach to domain decomposition: the mortar element method,” *Non linear partial differential equations and their applications*, New York: Pitman and Wiley, 1992.

[Brooks, 1982] A. Brooks, T. Hughes, “Streamline upwind/Petrov-Galerkin formulations for convection dominated flows with particular emphasis on the incompressible Navier-Stokes equations,” *Comput. Methods Appli. Mech. Engrg.*, vol. 32, pp. 199–259, 1982.

[Cockburn, 1998] B. Cockburn, “Simulation of extrudate swell from long slit and capillary dies,” *Lecture notes of the NASA/VKI Summer School on High Order Discretization Methods in Comp. Fluid Dynamics*, 1998.

[Cogswell, 1977] F.N. Cogswell, “Stretching flow instabilities at the exit of extrusion dies,” *J. Non-Newtonian Fluid Mech.*, 2, pp. 37–47, 1977.

[Coupez, 2000] T. Coupez, “Génération de maillage et adaptation de maillage par optimisation locale,” *Revue Européenne Des Eléments Finis*, vol. 9, pp. 403–423, 2000.

[Coupez, 2013] T. Coupez, E. Hachem, “Solution of high Reynolds incompressible flow with stabilized finite element and adaptive anisotropic meshing,” *Comput. Methods Appli. Mech. Engrg.*, vol. 267, pp. 65–85, 2013.

[El Kosseifi, 2012] N. El Kosseifi, Numerical simulation of boiling for industrial quenching processes, Thèse de doctorat, Ecole Nationale Supérieure des Mines de Paris, 2012.

[Ern, 2000] A. Ern, J. Guermond, *Eléments finis: théorie, applications, mise en oeuvre,* vol. 36. Heildelberg: Springer, 2000.

[Fortin, 1992] A. Fortin, A. Zine, J.F. Agassant, "Computing Viscoelastic Fluid Flow Problems at Low Cost," *J. Non-Newtonian Fluid Mech.*, vol. 45, pp. 209–229, 1992.

[François, 2011] G. François, Eléments finis stabilisés pour le remplissage en fonderie à haut Reynolds, Thèse de doctorat, Ecole Nationale Supérieure des Mines de Paris, 2011.

[Frey, 2005] P.J. Frey, F. Alauzet, "Anisotropic mesh adaptation for CFD computations," *Comput. Methods Appl. Mech. Engrg.*, vol. 194, pp. 5068–5082, 2005.

[Georgiou, 1989] G.C. Georgiou, L.G. Olson, W.W. Schultz, S. Sagan, "A singular finite element for Stokes flow : The Stick-Slip problem," *Int. J. Numer. Meth. Fluids*, vol. 9, 1353–1367, 1989.

[Grisvard, 1986] P. Grisvard, Problèmes aux limites dans les polygones, Mode d"emploi. E.D.F., Bull. De la Direction des Etudes et Recherches," *Série C Mathématiques-Informatique*, 1, pp. 21–59, 1986.

[Hachem, 2011] E. Hachem, G. Francois, T. Coupez, "Stabilised Finite Element for high Reynolds number, LES and free surface flow problems," *Navier-Stokes Equations: Properties, Description and Applications*, New York: Nova Science Pub Inc., 2011.

[Hirt, 1981] C.W. Hirt, B.D. Nichols, "Volume of fluid (VOF) method for the dynamics of free boundaries," *J. Comput. Phys.*, vol. 39, pp. 201–225, 1981.

[Maders, 1990] H. Maders, Y. Demay, J.F. Agassant, Numerical and analytical study of the stress singularity in an isothermal Newtonian Stokes flow in a plane convergent geometry," *Eur. J. Mech. B, Fluids*, vol. 9, pp. 75–92, 1990.

[Michael, 1958] D.H. Michael, "The separation of a viscous liquid at a straight edge," *Mathematika*, vol. 5, pp. 82–84, 1958.

[Mitsoulis, 1984] E. Mitsoulis, J. Vlachopoulos, "Simulation of extrudate swell from long slit and capillary dies," *Polym. Proc. Eng.*, vol. 2, pp. 153–177, 1984.

[Moffat, 1964] H.K. Moffat, "Viscous and resistive eddies near a sharp corner," *J. Fluid Mech.*, vol. 18, pp. 1-18, 1964.

[Osher, 2001] S. Osher, R. Fedkiw, “Level set methods: An overview and some recent results,” J. Comput. Phys., vol. 2, pp. 453–502, 2001.

[Sethian, 1999] J. Sethian, *Level Set Methods and Fast Marching Methods : Evoloving Interfaces in Computational Geometry, Fluid Mechanics, Computer Vision, and Materials Science*. Cambridge: Cambridge University Press, 1999.

[Silagy, 1998] D. Silagy, Y. Demay, J.F. Agassant, “Stationary and stability analysis of the film casting process,” *J. Non-Newtonian Fluid Mech.*, vol. 79, pp. 563–583, 1998.

[Smolianski, 2005] A. Smolianski, “Finite-element level-set operator-splitting (FELSOS) approach for computing two-fluid unsteady flows with free moving interfaces,” *Int. J. Numer. Meth. Fluids*, vol. 48, pp. 231–269, 2005.

[Souli, 1993] M. Souli, Y. Demay, A. Habbal, “Finite-element study of the draw resonance instability,” *Eur. J. Mech. B, Fluids*, vol. 12, pp. 1–13, 1993.

[Sussman, 1994] M. Sussman, P. Smereka, S. Osher, “A level set method for computing solutions to incompressible two phase flow,” *J. Comput. Phys.*, vol. 114, pp. 146–159, 1994.

[Venet, 1997] C. Venet, B. Vergnes, “An experimental study of sharkskin in polyethylenes,” *J. Rheol.*, vol. 41, pp. 873–892, 1977.

[Ville, 2010] L. Ville, L. Silva, T. Coupez, “Convected level set method for the numerical simulation of fluid buckling,” *Int. J. Numer. Meth. Fluids*, vol. 66, pp. 324–344, 2010.

Chapitre VI : Comparaison entre le modèle membrane et le modèle 2D

Nous avons développé des modèles membrane et 2D dans le cas newtonien et on cherche à les combiner afin d"obtenir une solution pertinente à moindre coût. On se propose donc de comparer les résultats obtenus par le modèle membrane newtonien et le modèle 2D newtonien avec dépression. Dans le modèle membrane, deux hypothèses sur les conditions initiales d"écoulement ont été considérées. La première hypothèse notée « CL-1» consiste à prendre $U(0) = \overline{U_0}$ et $e(0) = e_0$, alors que la deuxième hypothèse notée « CL-2» consiste à prendre $U(0) = \frac{\overline{U_0}}{\cos\theta}$ et $e(0) = e_0 \cos\theta$.

On commence par comparer le modèle membrane avec le modèle 2D dans le cas d"un différentiel de pression nul puis dans le cas d"un différentiel de pression non nul.

Le point clé est de trouver des conditions initiales pour lesquelles l"utilisation du modèle membrane permettrait de calculer avec une bonne précision la stabilité du procédé dans le cas d"une grande distance d"étirage.

VI.1 Cas d'un différentiel de pression nul :

On considère un facteur de forme $A = 15$, un taux d"étirage $Dr = 18$ et un différentiel de pression nul. Sachant que les deux conditions initiales CL-1 ($U(0) = \overline{U_0}$) et CL-2 ($U(0) = \frac{\overline{U_0}}{\cos\theta}$) sont identiques pour un différentiel de pression nul, la figure VI.1 montre la forme de l"interface supérieure à l"état stationnaire pour les modèles membrane et 1D. On observe que les deux interfaces sont différentes en sortie de filière mais deviennent confondues en fin d"étirage. Le modèle membrane est effectivement incapable de rendre compte du gonflement en sortie de filière.

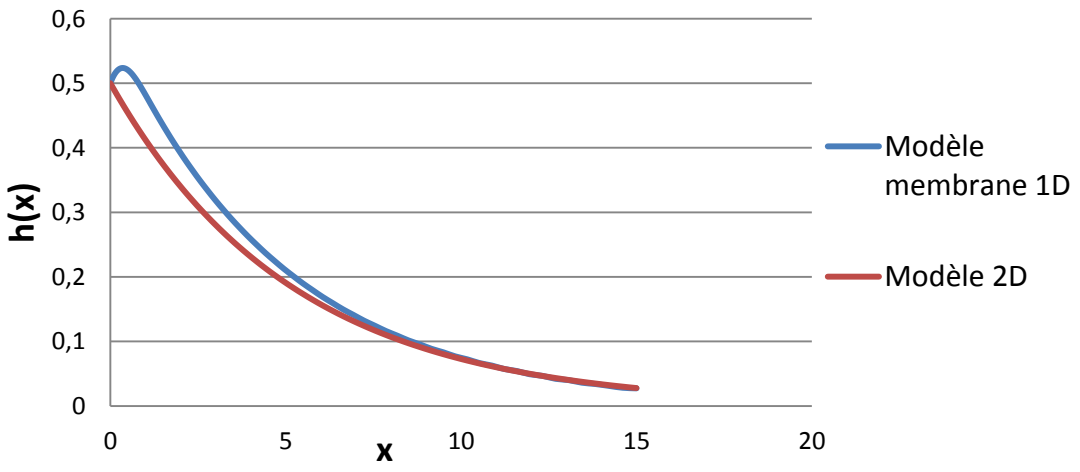


Figure VI.1 - Forme de l'interface stationnaire pour $A = 0$; $Dr = 18$ et $\Delta p = 0$

En ce qui concerne la stabilité dans le cas d"un différentiel de pression nul, nous avons vu dans les chapitres précédents que le taux d"étirage critique est indépendant du facteur de

forme qui est considéré comme infini dans le cas du modèle membrane et qu"il est très dépendant du facteur de forme dans le cas du modèle 2D (voir paragraphe (V.2.4.1)). Cela est expliqué par le fait que le modèle membrane ne permet pas de rendre compte de l"écoulement à l"intérieur de la filière. Cependant, les taux d"étirage critiques obtenus restent du même ordre de grandeur.

VI.2 Cas d'un différentiel de pression non nul :

Dans le cas d"un différentiel de pression non nul, nous avons vu que les deux hypothèses sur les conditions initiales donnent des résultats de stabilité très différents. Il est donc important de savoir laquelle des deux conditions initiales considérées est plus appropriée au modèle membrane 1D. Pour ce faire, on se propose de comparer les résultats du modèle membrane donnés par chacune des deux conditions initiales avec les résultats du modèle 2D. On commence donc par comparer la courbe moyenne de l"écoulement et le profil de vitesse à l"état stationnaire. Ensuite, on compare les deux conditions initiales du modèle membrane au modèle 2D. Finalement, on compare les résultats de stabilité.

VI.2.1 Courbe moyenne de l'écoulement :

On considère un taux d"étirage $Dr = 18$ et deux cas d"étude pour la comparaison de la courbe moyenne de l"écoulement : le premier cas est défini par $A = 15$ et $\Delta p = 0.022$, tandis que le deuxième cas est défini par $A = 10$ et $\Delta p = 0.1$. Dans chacun de ces cas, on compare la courbe moyenne de l"écoulement pour le modèle 2D et les deux modèles membrane.

VI.2.1.1 Premier cas : $A = 15$ et $\Delta p = 0.022$:

Ce cas est équivalent à $B = 5$ dans le modèle membrane pour lequel on considère les deux hypothèses CL-1 ($U(0) = \overline{U_0}$) et CL-2 ($U(0) = \frac{\overline{U_0}}{\cos\theta}$). On rappelle que le nombre adimensionnel B peut être calculé à partir du différentiel de pression adimensionnel Δp grâce à la relation $B = A^2 \Delta p$.

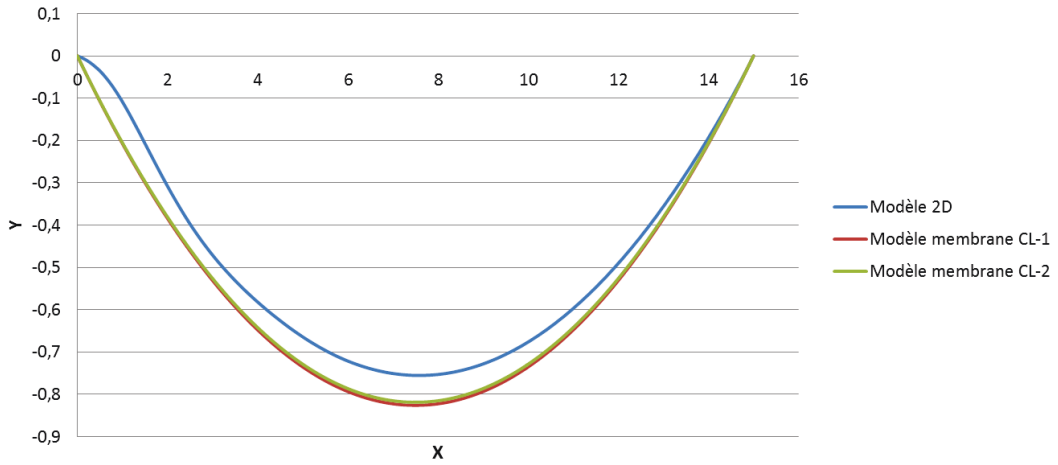


Figure VI.2 - Comparaison de la forme de la courbe moyenne de l'écoulement pour Dr=18; A=15 et Δp=0.022

La comparaison du modèle 2D avec le modèle membrane implique le recours à l"utilisation des deux nombres adimensionnels Δp et B parce que le facteur de forme, qui est fini dans le

cas du modèle 2D, est considéré comme infini dans le cas du modèle membrane. Par conséquent, l'adimensionnement ne se fait pas de la même façon entre les deux modèles, ce qui nous donne deux nombres adimensionnels différents pour décrire le différentiel de pression.

La figure VI.2 montre la forme de la courbe moyenne obtenue par l'approche 2D et les deux approches membrane. On observe que les deux courbes obtenues par le modèle membrane sont presque confondues. En ce qui concerne la courbe calculée par le modèle 2D, elle présente le même aspect que les deux autres courbes avec des différences marquées en début de l'étirage. En effet, juste après la sortie de filière, la phase de transition entre un écoulement de cisaillement et un écoulement élongationnel n'est pas prise en compte dans le cas des modèles membrane.

VI.2.1.2 Deuxième cas : $A = 10$ et $\Delta p = 0.1$:

Ce cas est équivalent à $B = 10$ dans le modèle membrane pour lequel on considère les deux hypothèses CL-1 et CL-2. La figure VI.3 montre la forme de la courbe moyenne obtenue par l'approche 2D et les deux approches membrane.

De même que dans le cas précédent, on observe que les deux courbes du modèle membrane ne coïncident pas avec celle du modèle 2D en sortie de filière. Par contre, dans ce cas, les deux courbes du modèle membrane ne sont plus confondues. Cela est expliqué par l'augmentation du nombre adimensionnel B qui engendre une courbure bien prononcée et donc un angle $\theta(0)$ plus important. L'impact de l'augmentation de cet angle sur les conditions initiales est direct et il permet de creuser le décalage entre les deux hypothèses.

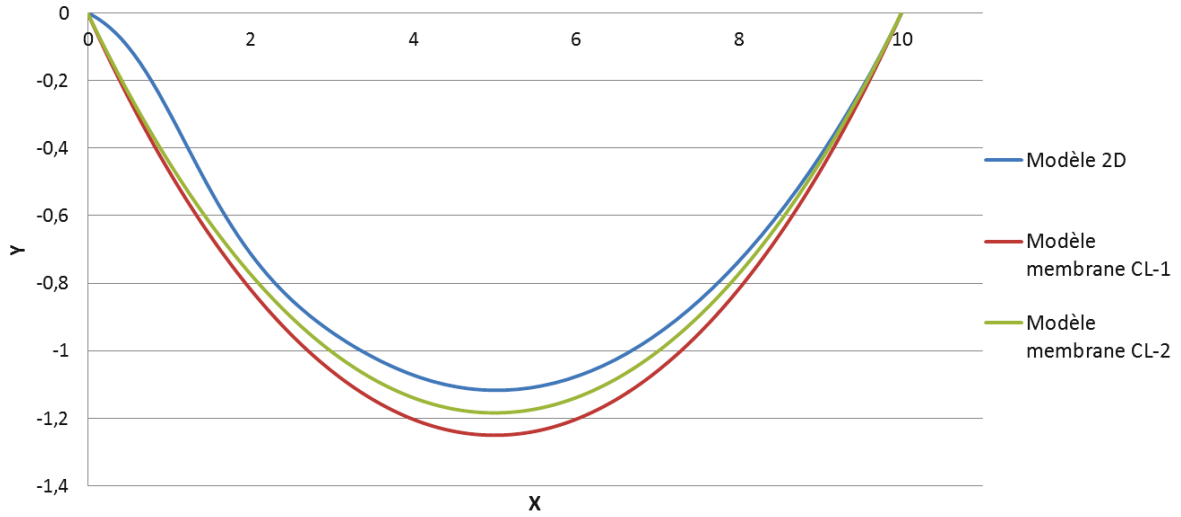


Figure VI.3 - Comparaison de la forme de la courbe moyenne de l'écoulement pour Dr=18; A=10 et Δp=0.1

VI.2.2 Profil de vitesse sur la courbe moyenne de l'écoulement :

On considère le premier cas du paragraphe précédent : $Dr = 18$, $A = 15$ et $\Delta p = 0.022$. La figure VI.4 compare le profil de vitesse obtenu avec les deux modèles membrane à celui

calculé par le modèle 2D le long de la courbe moyenne à l'état stationnaire. On observe que les profils de vitesse du modèle membrane sont confondus et qu'ils se superposent avec celui du modèle 2D en fin d'étirage. Notons que le modèle 2D tient compte de l'écoulement dans la filière qui est un écoulement de Poiseuille plan de vitesse moyenne égale à 1 en sortie de filière. Comme la valeur maximale de cet écoulement est obtenue pour $y = 0$, le profil de vitesse du modèle 2D part d'une valeur supérieure à 1, d'où sa différence avec le modèle membrane en sortie de filière.

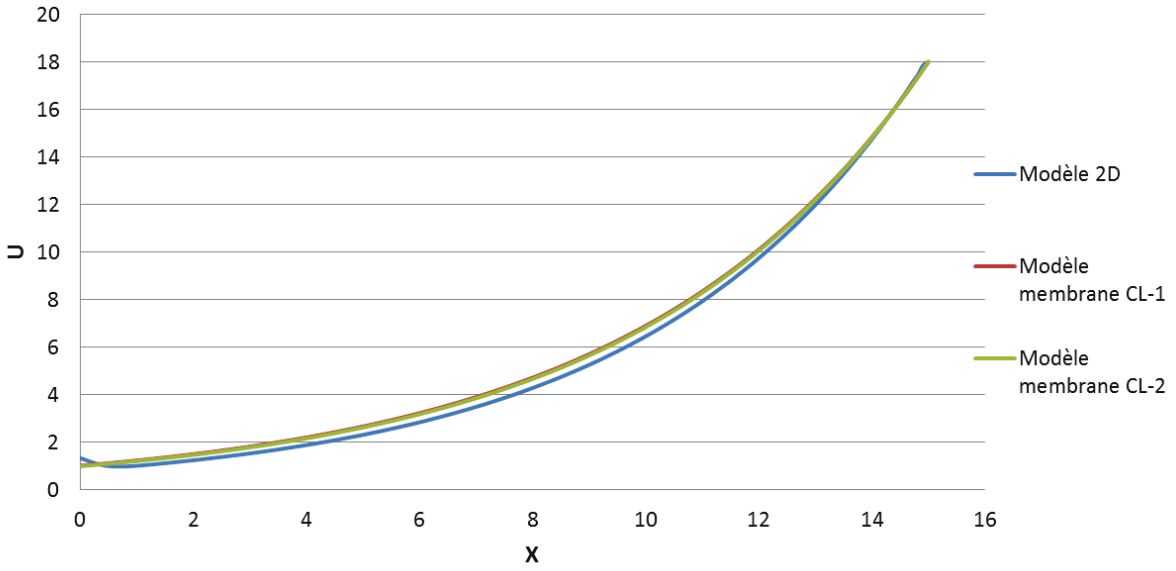


Figure VI.4 - Comparaison du profil de vitesse sur la courbe moyenne de l'écoulement pour Dr=18; A=15 et Δp=0.022

A ce stade il n'est pas encore possible de définir laquelle des deux conditions aux limites du modèle membrane est la plus proche du modèle 2D c'est-à-dire la plus licite.

VI.2.3 Conditions initiales du modèle membrane :

On considère le cas $A = 10$; $Dr = 18$ et $\Delta p = 0.1$ qui correspond à $B = 10$. En se basant sur la solution stationnaire obtenue par le modèle 2D, l'objectif est d'estimer des conditions initiales au sens du modèle membrane (vitesse moyenne et épaisseur) selon une coupe réalisée perpendiculairement à la courbe moyenne du film de polymère au voisinage de la sortie de filière. Pour ce faire, deux coupes ont été considérées perpendiculairement à la courbe moyenne de l'écoulement : la coupe A est réalisée exactement en sortie de filière de façon à ce que l'on passe par le point de coordonnées $(0; -0.5)$, tandis que la coupe B est réalisée à une distance de la filière égale à la moitié de l'entrefer (figure VI.5). Une approximation de l'épaisseur initiale de l'écoulement au sens du modèle membrane consiste à calculer la longueur du segment de coupe. Dans le cas de la coupe A, on obtient une épaisseur initiale $e_0^A = 1$. De la même manière, dans le cas de la coupe B, on obtient une épaisseur initiale $e_0^B = 0.98$. Donc, les deux approches donnent une approximation de l'épaisseur initiale au sens du modèle membrane très proche de 1.

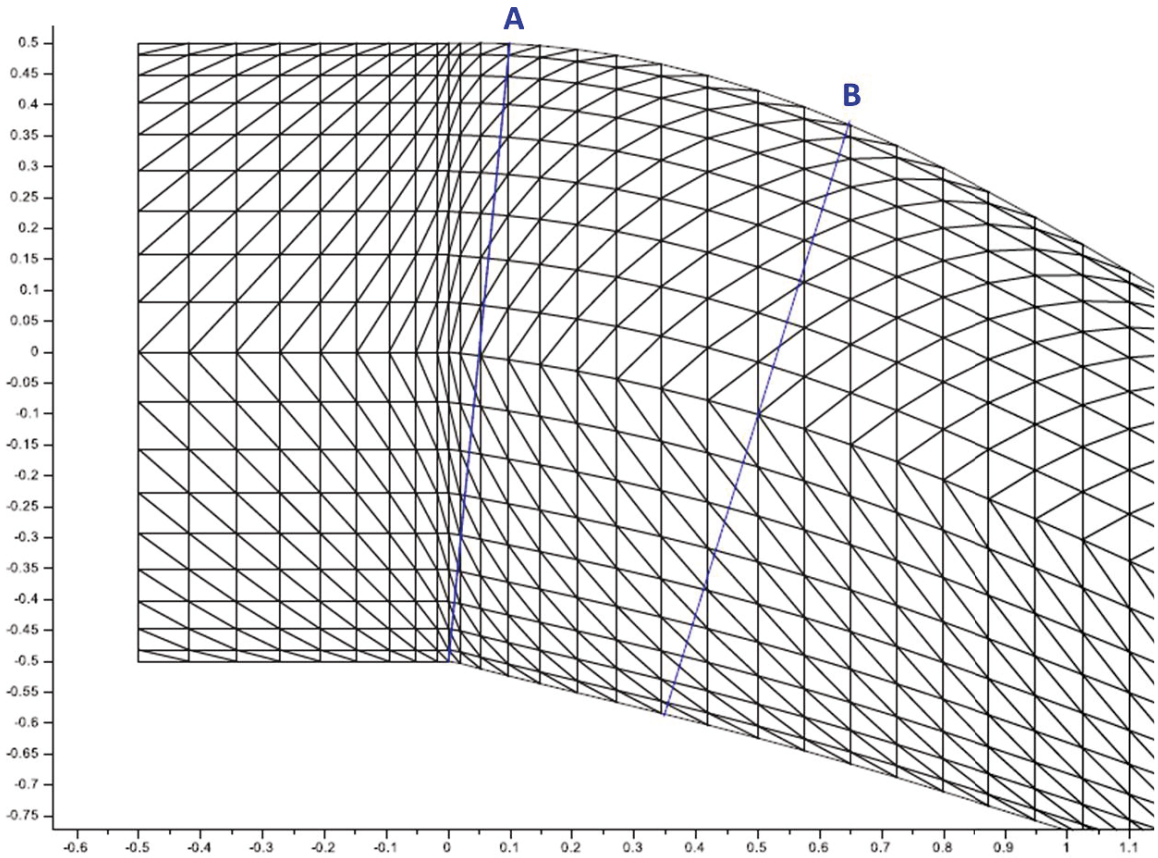


Figure VI.5 - Maillage et position des deux segments de coupe (à l'échelle)

En ce qui concerne l"estimation de la vitesse moyenne initiale, la vitesse d"écoulement est calculée sur chacun des deux segments de coupe par interpolation linéaire. La figure VI.6 montre le profil de la composante de vitesse normale à la direction de coupe sur chacun des deux segments de coupe. On observe que le profil de vitesse sur le segment A ressemble plus à un profil parabolique alors que le profil sur le segment B ressemble plus à un profil uniforme. Cela s"explique par le fait que la coupe A est très proche de la sortie de filière et donc le profil de vitesse est très semblable à celui de l"écoulement dans la filière. D"un autre côté, on observe qu"une distance égale à la moitié de l"entrefer est suffisante pour avoir une transition entre l"écoulement de cisaillement dans la filière et l"écoulement élongationnel dans le domaine d"étirage. A partir de ces deux profils de vitesse, une vitesse moyenne initiale est calculée par intégration numérique pour chacune des deux coupes A et B.

Dans le cas de la coupe A, on obtient une vitesse moyenne initiale $V_0^A = 0.99$. De la même manière, dans le cas de la coupe B, on obtient une vitesse moyenne initiale $V_0^B = 1$.

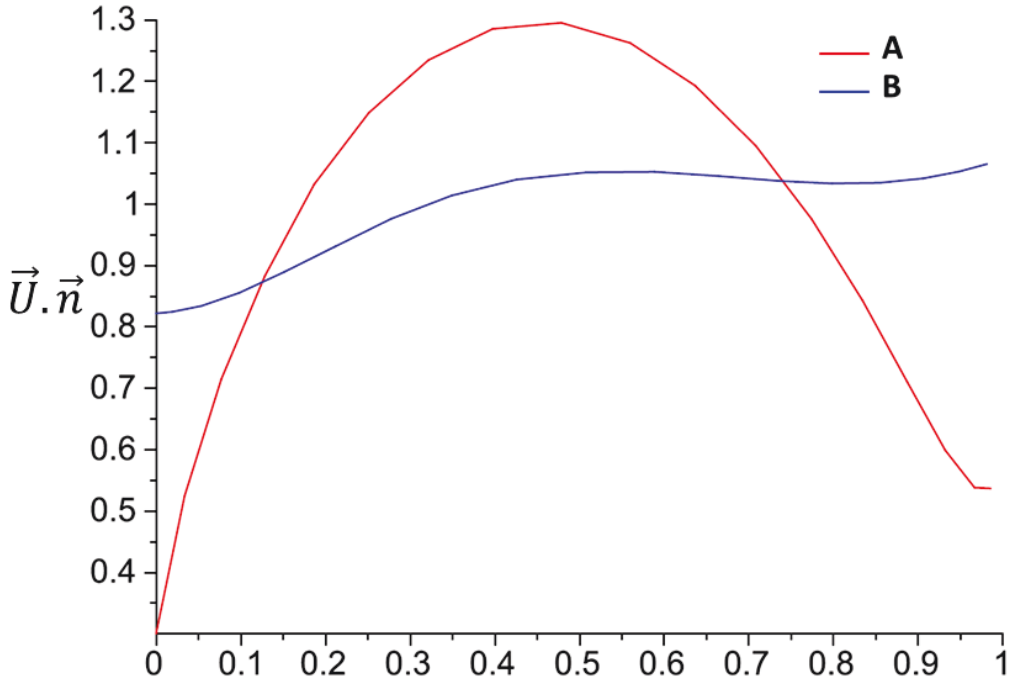


Figure VI.6 - Profil de vitesse sur les deux segments de coupe A et B

Les deux valeurs de vitesse moyenne initiale obtenues sont très proches ce qui est logique puisque le débit est conservé et les deux segments ont presque la même longueur.

Le tableau VI.1 montre les conditions initiales utilisées dans le modèle membrane pour $Dr = 18$ et $B = 10$ pour les deux hypothèses CL-1 ($U(0) = \overline{U_0}$) et CL-2 ($U(0) = \frac{\overline{U_0}}{\cos\theta}$). On remarque que l'hypothèse CL-1 du modèle membrane est beaucoup plus proche des résultats du modèle 2D, c'est à dire plus proche de la réalité.

	$\overline{U_0}$	e_0
Hypothèse CL-1	**1**	**1**
Hypothèse CL-2	**1.133**	**0.882**

Tableau VI.1 - Conditions initiales utilisées dans le modèle membrane pour Dr=18 et B=10

VI.2.4 Stabilité :

On s'intéresse ici à des cas de figures qui ne représentent pas un grand intérêt pour le procédé « Revoluflex ». L'objectif est de chercher des conditions initiales pour lesquelles l'utilisation du modèle membrane permettrait de calculer avec une bonne précision la stabilité du procédé dans le cas d'une grande distance d'étirage. On considère donc deux cas différents : un premier cas $A = 10$; $Dr = 30$ et $\Delta p = 0.05$ qui correspond à $B = 5$, et un deuxième cas $A = 10$; $Dr = 36$ et $\Delta p = 0.03$ qui correspond à $B = 3$. Dans chacun de ces deux cas, on compare les résultats de stabilité du modèle 2D avec les deux modèles membranes (CL-1 et CL-2). Le tableau VI.2 montre les valeurs propres dominantes calculées avec les trois modèles dans le premier cas. On observe que la partie réelle des valeurs propres dominantes est positive pour les trois modèles ce qui signifie que la solution stationnaire est instable. Cependant, on remarque que les valeurs propres dominantes obtenues avec l'hypothèse CL-1 ($U(0) = \overline{U_0}$) sont plus proches des valeurs propres dominantes obtenues avec le modèle 2D.

	Λ
Modèle 2D avec différentiel de pression	$\mathbf{0.8 \pm i\,13.12}$
Modèle membrane avec CL-1	$\mathbf{0.63 \pm i\,14.74}$
Modèle membrane avec CL-2	$\mathbf{0.51 \pm i\,15.56}$

Tableau VI.2 - Valeurs propres dominantes calculées pour A=10; Dr=30 et Δp=0.05

De la même manière, le tableau VI.3 montre les valeurs propres dominantes calculées avec les trois modèles dans le deuxième cas. On observe que la partie réelle des valeurs propres dominantes est positive (ce qui signifie que la solution stationnaire est instable) et qu"elle est identique dans les trois cas.

	Λ
Modèle 2D avec différentiel de pression	$\mathbf{1.18 \pm i\,13.63}$
Modèle membrane avec CL-1	$\mathbf{1.18 \pm i\,15.66}$
Modèle membrane avec CL-2	$\mathbf{1.16 \pm i\,15.92}$

Tableau VI.3 - Valeurs propres dominantes calculées pour A=10; Dr=36 et Δp=0.03

De plus, on remarque que les deux hypothèses CL-1 ($U(0) = \overline{U_0}$) et CL-2 ($U(0) = \frac{\overline{U_0}}{\cos\theta}$) donnent pratiquement les mêmes valeurs propres dominantes et que la partie réelle de celles-ci est égale à celle des valeurs propres dominantes obtenues avec le modèle 2D. Cela peut être expliqué par le fait que B est moins important que dans le premier cas, ce qui signifie que la différence des deux conditions initiales est moins importante. Cependant, la partie imaginaire des valeurs propres dominantes du modèle 2D est différente de celle du modèle membrane.

Par ailleurs, nous avons vu dans le paragraphe (IV.3.4.4) que le différentiel de pression stabilise le procédé considérablement dans le cas de l"hypothèse CL-2 ($U(0) = \frac{\overline{U_0}}{\cos\theta}$) et faiblement dans le cas de l"hypothèse CL-1 ($U(0) = \overline{U_0}$). Nous avons vu également dans le paragraphe (V.3.3.2.1) que le différentiel de pression n"a pas d"influence sur la stabilité, voire déstabilise, pour les grands facteurs de forme pour lesquels les hypothèses du modèle membrane sont valables. Comme on vient de voir que l"hypothèse CL-1 ($U(0) = \overline{U_0}$) est plus réaliste que l"hypothèse CL-2 ($U(0) = \frac{\overline{U_0}}{\cos\theta}$), on peut conclure que la grande stabilisation du différentiel de pression qu"on a observée dans le cas de l"hypothèse CL-2 ($U(0) = \frac{\overline{U_0}}{\cos\theta}$), est artificiellement provoquée par cette hypothèse.

Ainsi, les résultats de stabilité sont en accord avec les résultats du calcul stationnaire : l"hypothèse CL-1 ($U(0) = \overline{U_0}$) est plus proche de la réalité que l"hypothèse CL-2 ($U(0) = \frac{\overline{U_0}}{\cos\theta}$).

VI.2.5 Dénivelé

La figure IV.7 montre l"évolution de la partie réelle de la valeur propre dominante en fonction du dénivelé pour les trois modèles dans le cas $A = 10$; $Dr = 18$ et $\Delta p = 0.1$ qui correspond à $B = 10$. On observe que les résultats du modèle 1D-CL1 sont plus proches du modèle 2D en termes d"ordre de grandeur, ce qui confirme le constat des paragraphes précédents.

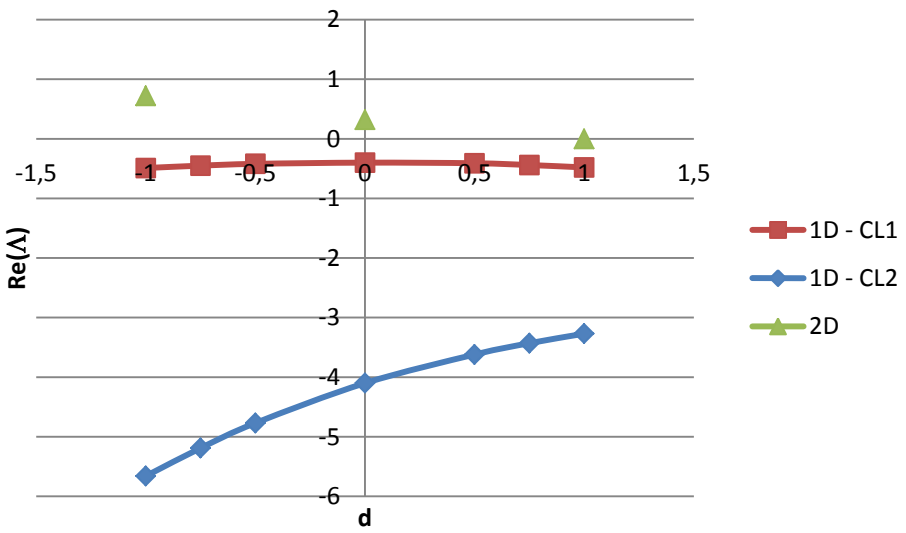


Figure VI.7 - Evolution de la partie réelle de la valeur propre dominante en fonction du dénivelé pour les modèles 2D et membrane ($A = 10$)

VI.3 Conclusions :

La condition initiale du modèle membrane qui consiste à prendre une vitesse initiale et une épaisseur initiale égales respectivement à la vitesse moyenne d"extrusion et à l"entrefer de la filière est donc celle qui est la plus cohérente avec les résultats du modèle 2D. Dans les cas de distances d"étirage importantes avec application d"un différentiel de pression, où l"approximation membrane est licite, c"est donc cette condition initiale qui sera utilisée.

Chapitre VII : Discussion

Le procédé «Revoluflex» a été présenté au chapitre II. Ce procédé est très innovant puisque:

- La distance d'étirage est très faible si on la compare à celle classiquement utilisée dans le procédé *Cast film* (de l'ordre de l'entrefer à l‟extrusion) ;
- Un différentiel de pression est introduit entre les deux faces du film liquide (comme dans le cas du procédé de soufflage de gaine) ;
- Enfin, ces particularités permettent la fabrication d'un film de bonne qualité à des taux d'étirage considérés jusqu'à présent comme très élevés puisque dans les procédés classiques l'apparition de l'instabilité de *draw resonance* limite la productivité.

De plus, le défaut de « *necking* » (rétrécissement latéral du film) est, dans le cas du procédé « Revoluflex », très faible ou inexistant.

Ce procédé « Revoluflex » présente néanmoins, dans certaines conditions opératoires, des défauts d'aspect qui ont été présentés au chapitre III. Nous avons mis en évidence tout d'abord l'apparition d'une instabilité hydrodynamique (les « veines de chêne ») caractérisée par des défauts de surépaisseur de la couche de colle en forme de chevron (ou en forme de "V"). Cette instabilité s'apparente au défaut de « *draw resonance* » mais n'a jamais été observée dans cette forme avec les procédés classiques. Rappelons un effet surprenant : dans certaines conditions opératoires, l'augmentation du taux d'étirage permet de stabiliser le procédé ce qui n‟a jamais été le cas avec le procédé *Cast film*. Un autre défaut observé (défaut de couverture) est caractérisé par la présence de déchirures partielles (non traversantes) dans la couche de colle (du côté du film primaire).

Les chapitres IV et V sont consacrés à la modélisation du procédé. Nous avons développé des modèles mathématiques de complexité croissante permettant de calculer l'état de contrainte au cours de l'étirage et la stabilité de l'écoulement. Pour ce faire, nous avons réalisé des calculs stationnaires et instationnaires. Ces modèles sont inspirés des modèles classiques permettant d'analyser les procédés de *Cast film* et de soufflage de gaine mais ils ont été utilisés avec des valeurs des paramètres du procédé inédites. C'est pourquoi certains résultats sont surprenants si on les compare à la littérature classique. Les modèles membrane présentés au chapitre IV sont simples d'utilisation mais ne rendent pas compte de la courte distance d'étirage. Les modèles
2D présentés au chapitre V sont bien adaptés aux conditions opératoires puisqu'ils prennent en compte le passage d'un écoulement de cisaillement simple dans la filière à un écoulement fortement élongationnel à la fin de l'étirage. Toutefois, ces modèles sont par construction invariants dans la direction z et sont donc incapables de rendre compte de la forme du défaut en chevrons.

VII.1 Analyse des paramètres adimensionnels:

Afin de comparer les résultats des différents modèles développés avec les résultats expérimentaux obtenus, il est nécessaire de calculer, pour chacun des essais réalisés, les nombres adimensionnels correspondants.

Le taux d'étirage $Dr = \frac{U_L}{\overline{U_0}}$, le facteur de forme $A = \frac{L}{2h_0}$, le dénivelé adimensionnel $d = \frac{\hat{d}}{2h_0}$ ($\hat{d}$ étant le dénivelé dimensionnel) peuvent être calculés facilement puisqu'ils sont exprimés directement en fonction des paramètres du procédé.

Selon les modèles, deux nombres adimensionnels B et Δp sont utilisés pour décrire le différentiel de pression. Cela résulte de l'utilisation de deux adimensionnements différents pour les modèles de type membrane et les modèles 2D. On a la relation suivante :

$$B = A^2 \Delta p \qquad \text{(VII.1)}$$

Le différentiel de pression adimensionnel est donné par :

$$\Delta p = \frac{2h_0}{\eta_p \overline{U_0}} \widehat{\Delta p}$$

$\widehat{\Delta p}$ étant le différentiel de pression appliqué entre les deux faces du film, η_p la viscosité du polymère et $\overline{U_0}$ la vitesse moyenne d'extrusion.

La mesure du différentiel de pression entre les deux faces du film de polymère est approximative puisque le capteur de pression est placé à l'intérieur de la pompe à vide. De plus, cette mesure est très influencée par les paramètres géométriques du procédé (dénivelé, distance d'étirage et entrefer).

En ce qui concerne la viscosité du polymère, elle est déterminée à partir des mesures en rhéologie dynamique. Comme on dispose d'une mesure précise de la température de la colle dans la filière, nous calculons une courbe de viscosité à la température considérée grâce à l'énergie d'activation $E_a = 72\ kJ/mol$ déterminée dans le paragraphe (II.2.2.2.2). La viscosité est donc calculée au taux de cisaillement moyen dans la filière. Ce taux de cisaillement moyen est donné par :

$$\dot{\gamma} = \frac{3\overline{U_0}}{2h_0}$$

Ce taux de cisaillement dépend donc de l'entrefer, le grammage et la vitesse d'étirage et il varie en général entre 10 et 1200 s^{-1}.

Bien entendu, ce choix de viscosité est arbitraire dans la mesure où l'écoulement entre la filière et le contact avec le film support est essentiellement élongationnel. Cependant la viscosité élongationnelle est difficile à mesurer compte tenu des taux d'élongation très importants utilisés dans le procédé ($\dot{\alpha} = 400 - 13000\ s^{-1}$). Par ailleurs, l'étirage intervient à grande vitesse et sur une courte distance et donc sur un intervalle de temps très court ($10^{-4} - 10^{-2} s$). Le temps de relaxation moyen calculé au chapitre II est de l'ordre de grandeur du temps de séjour. Néanmoins, on fait l'hypothèse, très forte, que la viscosité reste constante et égale à la viscosité au taux de cisaillement dans la filière.

En ce qui concerne le nombre de Deborah $De = \frac{\lambda \overline{U_0}}{L}$, il a été obtenu suite à un adimensionnement par rapport à la vitesse moyenne d'extrusion $\overline{U_0}$, ce qui se fait couramment dans la littérature. Le temps de relaxation caractéristique λ est déterminé à partir des mesures de rhéologie dynamique à la température considérée en utilisant la méthode du point de

croisement (voir paragraphe (II.2.2.2.2)). Le choix d‟un temps de relaxation moyen est évidemment sujet à caution.

VII.2 Le défaut en « veines de chêne » :

La photo présentée à la figure VII.1 montre que ce défaut, qui est caractérisé par une surépaisseur de la couche de colle (dans la direction y), a un aspect en chevron dans le plan (x, z). Il est donc clairement non invariant dans la direction z. Par souci de simplicité, le calcul de stabilité a été effectué en introduisant des perturbations d'épaisseur de la forme :

$$h(t,x) = \bar{h}(x) + e^{\Lambda t}\,\hat{h}(x) \qquad \text{(VII.2)}$$

Or, même si la solution stationnaire est invariante en z, il serait nécessaire dans ce cas d'introduire des perturbations de la forme :

$$h(t,x) = \bar{h}(x) + e^{\Lambda t + ikz}\,\hat{h}(x) \qquad \text{(VII.3)}$$

Dans cette expression k est le nombre d'onde de la perturbation. En substituant cette expression dans les équations du problème de Stokes avec surface libre en dimension 3 et en linéarisant, on obtient un problème aux valeurs propres. Ces valeurs propres dépendent des paramètres procédés (par exemple Dr) et du nombre d'onde k ($\Lambda = \Lambda(Dr, k)$). La solution stationnaire est stable si la partie réelle des valeurs propres est négative. Elle perd sa stabilité lorsque, pour un nombre d'onde critique k_c et pour un taux d'étirage critique Dr_c, cette partie réelle devient nulle.

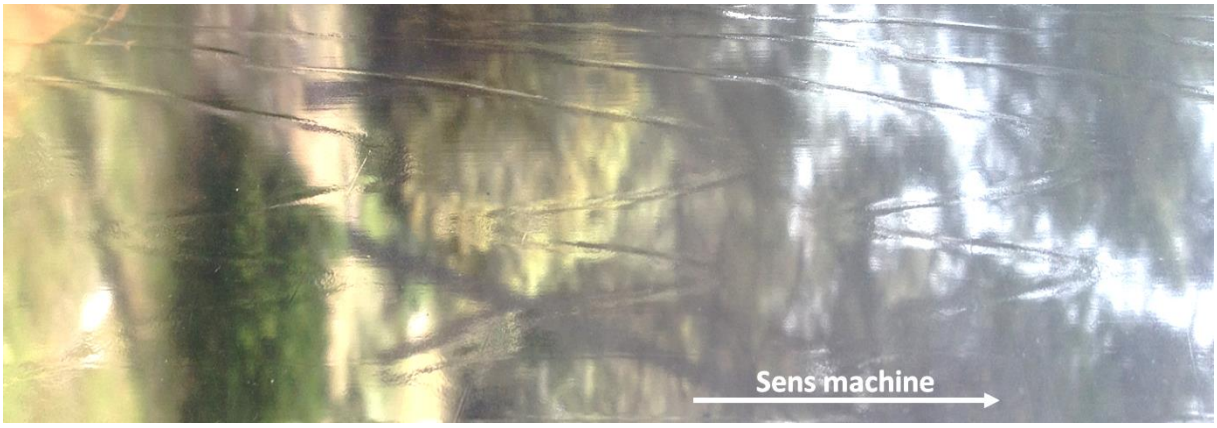


Figure VII.1 - Aspect des veines de chêne sur la surface du complexe

On a alors classiquement deux situations différentes. La figure VII.2-(a) montre le cas où la plus grande partie réelle est obtenue pour $k = 0$. On s'attend alors à un défaut invariant dans la direction z. C'est la situation envisagée précédemment dans les chapitres IV et V (équation VII.2) et c‟est ce que l‟on peut montrer dans le cas du modèle membrane à largeur constante : il est relativement simple, dans ce cas, d‟introduire une perturbation (VII.3) et le taux d‟étirage critique est obtenu pour $k = 0$.

L‟observation expérimentale suggère que, dans le cas de l‟étirage sur une courte distance, nous sommes plutôt dans la situation représentée à la figure VII.2-(b). Cette situation est obtenue dans de nombreux problèmes physiques comme l‟instabilité de Couette-Taylor. La transition vers l'instabilité se fait alors pour des nombres d'onde non nuls $k = \pm k_c$. C'est le

processus classique de sélection du nombre d'onde (voir par exemple [Cross, 1993], [Chossat, 1994] et [Bose, 2013]). Puisque nous devons comparer dans la suite les résultats expérimentaux aux calculs de stabilité qui ont été, par manque de temps, obtenus seulement pour $k = 0$, nous devons tenir compte du fait suivant :

- Une situation calculée stable pour le modèle 2D (avec $k = 0$) peut être en fait instable pour des $k \neq 0$;
- Par contre, une situation calculée instable pour le modèle 2D (avec $k = 0$) est certainement instable mais pour une valeur critique $k_c \neq 0$ du nombre d'onde inconnue.

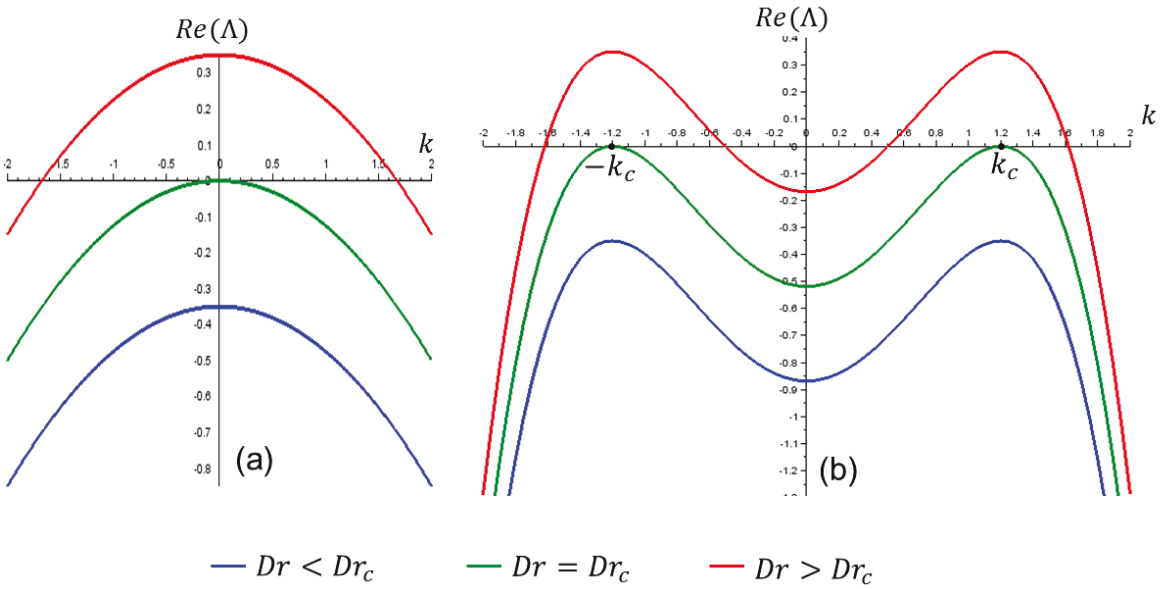


Figure VII.2 - Evolution de la partie réelle de la valeur propre dominante en fonction du nombre d'onde *k*

VII.2.1 Effet du différentiel de pression sur la stabilité :

Nous avons vu au chapitre III que l"on peut toujours stabiliser le procédé « Revoluflex » et faire disparaître les « veines de chêne » en augmentant le différentiel de pression au-delà d"une valeur critique. Le modèle 2D avec dépression a permis de mettre en évidence un effet stabilisant du différentiel de pression. Afin de confronter les résultats de ce modèle avec les expériences, nous avons sélectionné un cas d"étude avec les paramètres suivants : un entrefer $2h_0 = 0.7\ mm$, une température de colle $T = 150°C$, un dénivelé $\hat{d} = 0.4\ mm$, une distance d"étirage $L = 1.8\ mm$, une vitesse d"étirage $U_L = 150\ m/min$ et un grammage de $5\ g/m^2$.

Les essais (0314030 – 0314034 : Annexe II) sont réalisés avec ce jeu de paramètres pour différents différentiels de pression $\widehat{\Delta p} = 0 - 12 - 22 - 28\ - 35\ mbar$.

Ces essais correspondent à un facteur de forme $A = 2.6$, un taux d"étirage $Dr = 126$ et un dénivelé $d = 0.57$. Le calcul du différentiel de pression adimensionnel relatif à chacun de ces essais se fait selon la méthode présentée dans le paragraphe (VII.1) : on obtient $\eta_p = 65\ Pa.s$ et $\overline{U_0} = 2\ cm/s$, ce qui correspond aux valeurs de différentiel de pression adimensionnel données par le tableau VII.1.

Numéro de l"essai	$\widehat{\Delta p}$	Δp	Défaut VdC
0314030	0	0	1
0314031	12	0.66	1
0314032	22	1.2	0
0314033	28	1.53	0
0314034	35	1.91	0

Tableau VII.1 – Différentiels de pression adimensionnels et résultats expérimentaux des essais (0314030 – 0314034 : Annexe II)

On remarque que, pour $\Delta p = 0\ mbar$ ou $\Delta p = 12\ mbar$, le défaut en « veines de chêne » est observé. En augmentant le différentiel de pression au-delà de $\Delta p = 22\ mbar$, le procédé devient stable.

En se basant sur les nombres adimensionnels calculés, on simule ce cas d"étude en utilisant le modèle 2D avec dépression pour plusieurs valeurs de différentiel de pression adimensionnel. La figure VII.3 montre l"évolution de la partie réelle de la valeur propre dominante en fonction du différentiel de pression adimensionnel. On remarque que pour $\Delta p = 0$, on obtient une valeur propre dominante dont la partie réelle est négative ($Re(\Lambda) = -0.45$). En augmentant le différentiel de pression, on observe que la partie réelle de la valeur propre dominante diminue, ce qui signifie que la solution stationnaire est stable quel que soit le différentiel de pression adimensionnel, ce qui signifie que le calcul de stabilité n"est pas, à priori, cohérent avec les expériences.

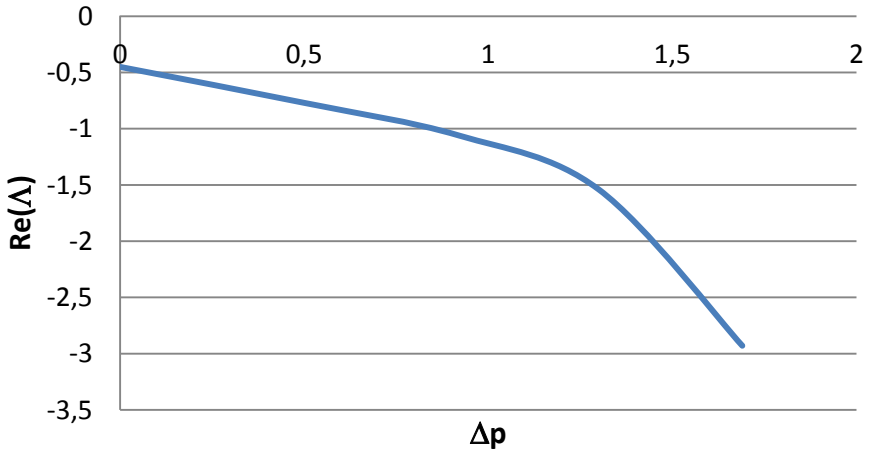


Figure VII.3- Evolution de la partie réelle de la valeur propre dominante en fonction du différentiel de pression adimensionnel pour A=2.6, Dr=126 et d=0.57

Rappelons que le calcul de stabilité a été réalisé dans le cas d"un nombre d'onde $k = 0$. Donc, pour $\Delta p = 0$, même si la valeur propre dominante obtenue est négative, le procédé n"est pas forcément stable. En effet, il est possible que le procédé soit instable pour un nombre d"onde $k \neq 0$ (voir la courbe rouge dans la figure VII.2-(b)). Le calcul de stabilité indique qu"en augmentant le différentiel de pression pour $k = 0$, la partie réelle de la valeur propre dominante décroit. Une explication possible du décalage entre les expériences et les résultats de stabilité du modèle pourrait être formulée comme suit :

- Pour $\Delta p = 0$, la partie réelle de la valeur propre dominante est négative pour $k = 0$ et elle est positive pour un nombre d"onde critique $k_c \neq 0$ comme dans le cas de la courbe rouge sur la figure VII.2-(b) ;
- En augmentant le différentiel de pression au-delà de $\widehat{\Delta p} = 22\ mbar$, la partie réelle de la valeur propre dominante diminue pour $k = 0$ (d"après les calculs de stabilité) et il est possible que la courbe $Re(\Lambda) = f(k)$ conserve la même forme, ce qui donne une situation stable équivalente à la courbe bleue sur la figure VII.2-(b).

Donc le procédé devient stable à partir de $\widehat{\Delta p} = 22\ mbar$, ce qui montre l"effet stabilisant du différentiel de pression à partir d"une dépression critique. D"où la bonne cohérence entre les expériences et les résultats du modèle 2D avec dépression.

VII.2.2 Effet du taux d'étirage sur la stabilité :

Le modèle membrane avec dépression, qui a été développé au chapitre IV, montre que l"augmentation du taux d"étirage déstabilise le procédé ce qui est en accord avec la littérature sur le procédé « *Cast film* ». Cependant, nous avons vu au chapitre III que, dans certaines conditions opératoires, l"augmentation du taux d"étirage permet de stabiliser le procédé (figure III.14). Pour illustrer ce résultat expérimental, nous allons considérer le cas d"étude suivant : un entrefer $2h_0 = 0.7\ mm$, une température $T = 170°C$, un dénivelé $\hat{d} = 0.4\ mm$, une distance d"étirage $L = 0.6\ mm$ et un différentiel de pression $\widehat{\Delta p} = 13\ mbar$. Dans le but d"étudier l"effet du taux d"étirage sur la stabilité sans modifier l"écoulement dans la filière et comme il n"est pas possible d"imposer directement la vitesse moyenne d"extrusion pendant les essais, nous avons choisi trois couples $(U_L, grammage)$ qui correspondent à des taux d"étirage différents et une vitesse moyenne d"extrusion identique $\overline{U_0} = 0.02\ m/s$. Les essais sont donc réalisés pour un facteur de forme $A = 2.6$, un taux d"étirage $Dr = 126$, un différentiel de pression adimensionnel $\Delta p = 1.45$ et un dénivelé $d = 0.57$.

Numéro de l'essai	U_L(m/min)	$grammage$ (g/m²)	Dr	Défaut VdC
1312036	75	10	63	1
1312033	150	5	126	1
1312039	300	2.5	252	0

Tableau VII.2 – Taux d'étirage et présence ou non du défaut en « veines de chêne » pour les essais (1312033, 1312036 et 1312039)

Le tableau VII.2 montre que le défaut en « veines de chêne » apparaît à des taux d"étirage de 63 et 126 et disparaît à $Dr = 252$, ce qui confirme l"effet stabilisant que peut avoir le taux d"étirage dans certaines conditions opératoires.

Les figures VII.4 et VII.5 montrent l"évolution de la partie réelle de la valeur propre dominante calculée par le modèle 2D symétrique (donc sans dépression) en fonction du facteur de forme et du taux d"étirage respectivement. On observe que l"augmentation du taux d"étirage déstabilise le procédé quel que soit le facteur de forme. Cela signifie que ce modèle n"est pas cohérent avec les essais expérimentaux réalisés pour un facteur de forme $A = 2.6$ (tableau VII.2). Cependant, on observe qu"en réduisant le facteur de forme, l"influence du taux d"étirage sur la partie réelle de la valeur propre dominante devient moins marquée. D"où un pouvoir déstabilisant du taux d"étirage qui devient de plus en plus faible.

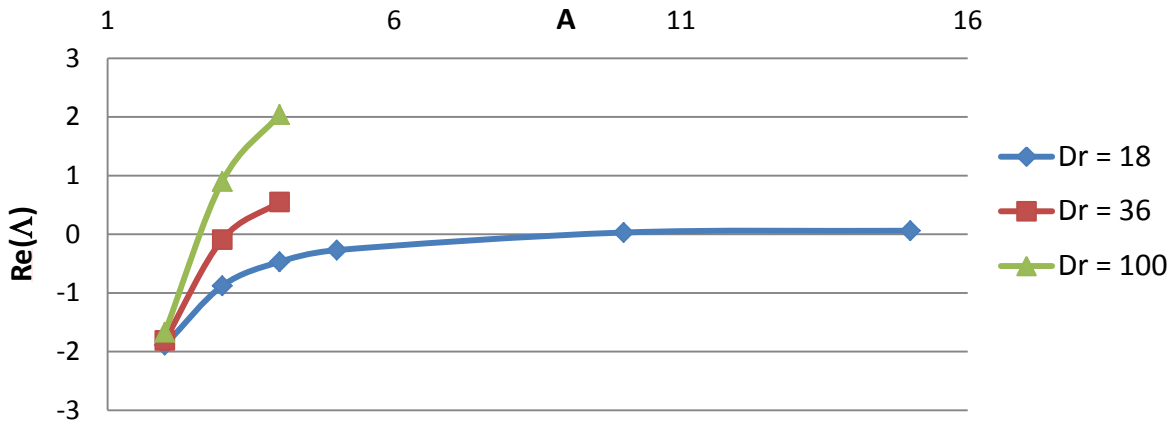


Figure VII.4 - Stabilité de la solution stationnaire en fonction du facteur de forme pour différents taux d'étirage

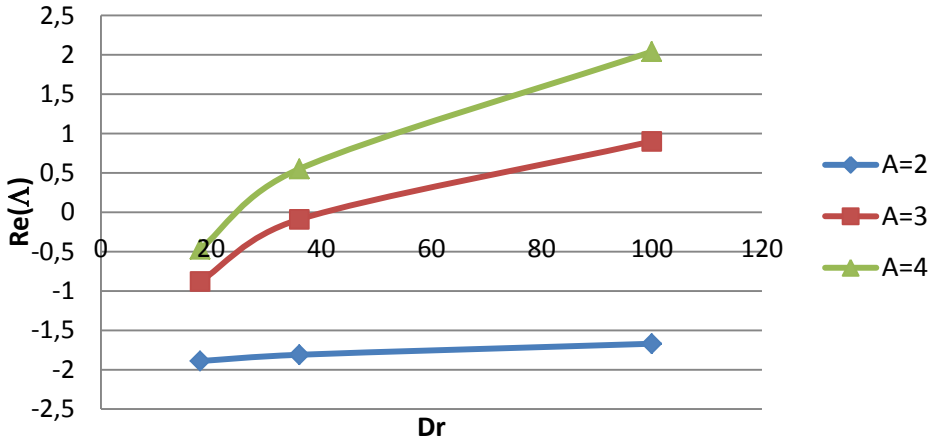


Figure VII.5 - Stabilité de la solution stationnaire en fonction du taux d'étirage pour différents facteurs de forme

En ce qui concerne le modèle 2D avec dépression, la figure VII.6 montre l"évolution de la partie réelle de la valeur propre dominante en fonction du taux d"étirage pour plusieurs facteurs de forme.

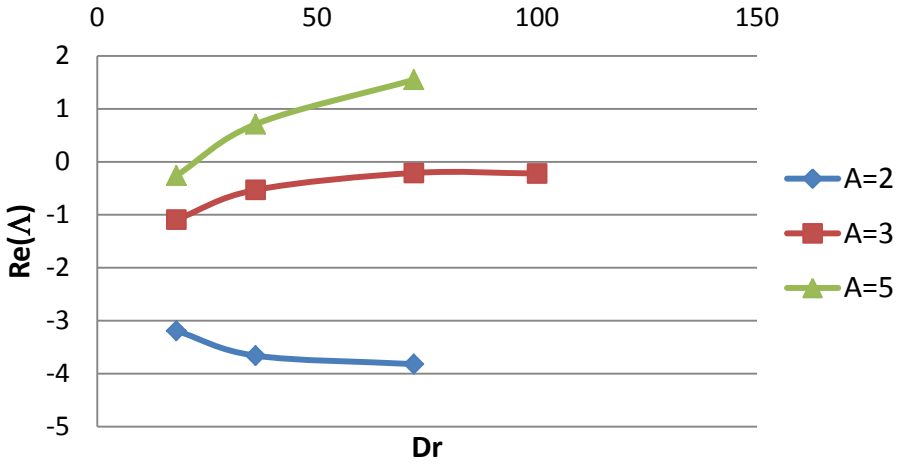


Figure VII.6 - Stabilité de la solution stationnaire en fonction du taux d'étirage pour différents facteurs de forme ($Dr = 18$; $\Delta p = 1.25$; $d = 0.57$; $B = 5$)

On remarque que, pour un faible facteur de forme $A = 2$ ou $A = 3$, l'influence du taux d'étirage sur la partie réelle de la valeur propre dominante est moins marquée que dans le cas du modèle symétrique. De plus, pour un facteur de forme $A = 2$, l'influence du taux d'étirage sur la partie réelle de la valeur propre dominante est inversée : l'augmentation du taux d'étirage stabilise le procédé, ce qui est cohérent avec les expériences bien que les calculs ne sont pas réalisés exactement dans les mêmes conditions opératoires des essais expérimentaux.

On peut conclure que le modèle 2D avec dépression permet d'expliquer l'apparition du défaut en « veines de chêne » en fonction des paramètres du procédé bien qu'il n'est pas capable de de déterminer précisément la forme du défaut.

VII.2.3 Effet de la viscoélasticité sur la stabilité :

La comparaison des résultats expérimentaux avec les résultats des modèles est dans ce cas délicate. Nous avons développé un modèle membrane viscoélastique classique du « *Cast film* » à largeur constante pour la loi de Maxwell (à un seul temps de relaxation). Ce modèle présente une zone inatteignable dans laquelle il n'existe pas de solution stationnaire. Nous devons aussi rappeler que la détermination du temps de relaxation moyen dépend fortement de la méthode utilisée. Un modèle 2D viscoélastique est actuellement hors de portée. Il n'est donc pas envisageable de faire des calculs de stabilité sur l'étirage d'un liquide viscoélastique sur une courte distance. L'étude des effets de la viscoélasticité ne peut donc être faite que dans le cadre du modèle membrane à largeur constante. Comme dans le modèle membrane viscoélastique, la courbe délimitant la zone des instabilités dépend fortement de la valeur du nombre adimensionnel B et que les résultats expérimentaux sont rarement obtenus pour le même B, nous avons choisi de nous limiter à une confrontation des essais expérimentaux avec les résultats du modèle membrane viscoélastique symétrique (c'est à dire $B = 0$).

En calculant le taux d'étirage et le nombre de Deborah relatifs aux essais réalisés à différentiel de pression nul, il est possible de représenter ces essais sur la courbe de stabilité obtenue avec le modèle membrane viscoélastique pour $B = 0$ (figure VII.7). On observe une très grande incohérence entre le calcul et l'expérience et en particulier :

- Des points de mesure dans une zone inatteignable qui correspond d'après la littérature à une zone de casse [Bourrigaud, 2006] ;
- Des points de fonctionnement stables dans des conditions que le modèle considère comme instables.

Toutefois, nous avons vu que la zone inatteignable était très contingente au choix de la loi de comportement. En utilisant une loi viscoélastique de Phan-Thien-Tanner, on repousse significativement cette zone inatteignable (figure IV.1) [Silagy, 1998]. De plus, nous avons utilisé un modèle membrane à largeur constante dont nous avons vu dans le cas Newtonien qu'il pouvait donner des résultats contradictoires à ceux du modèle 2D.

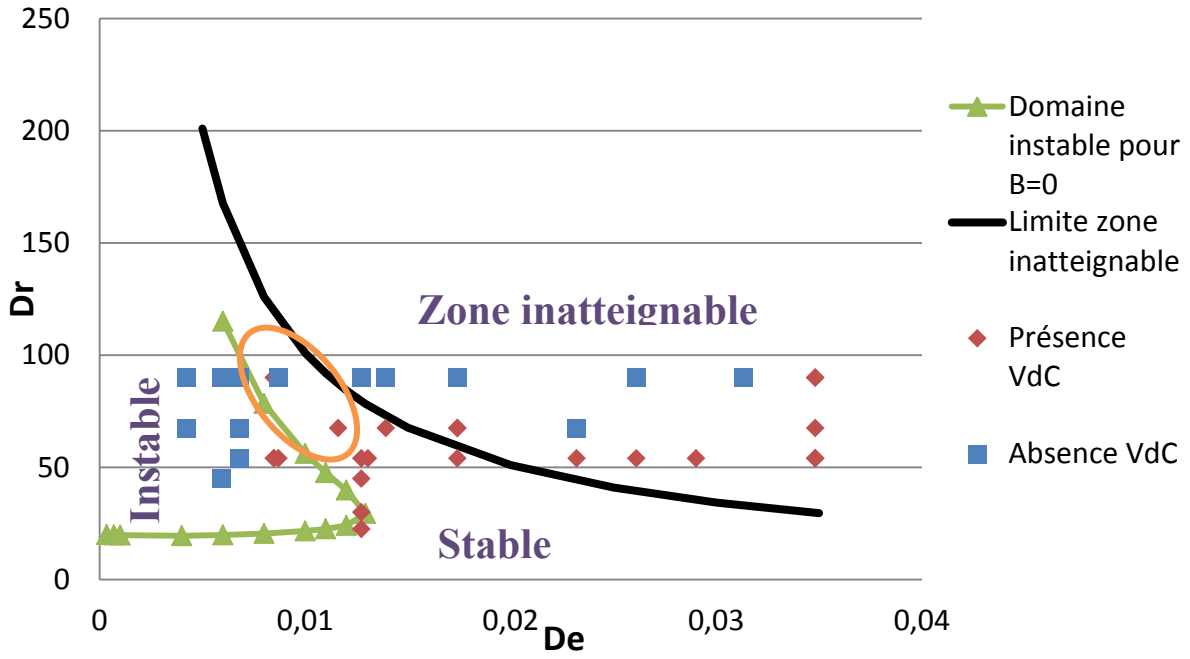


Figure VII.7 - Superposition des résultats expérimentaux et la courbe de stabilité du modèle membrane viscoélastique pour $\Delta p = 0$

Par ailleurs, on observe qu"en augmentant le taux d"étirage, on retrouve par le modèle une deuxième zone stable (cf. brevet [Chambon, 1998]), ce qui correspond à certaines expériences observées.

La confrontation montre donc qu"il y a peu de cohérence entre les résultats du modèle et l"expérimentation, ce qui peut avoir deux origines :

- Une loi de comportement viscoélastique inadaptée ;
- Un modèle membrane dont nous avons vu dans le cas newtonien qu"il pouvait donner des résultats contradictoires à ceux du modèle 2D.

VII.3 Le défaut de couverture :

Nous avons vu au chapitre II qu"il existe deux types de défaut de couverture : les défauts surfaciques et les petits canaux. La caractérisation de ces défauts a permis d"identifier les défauts surfaciques comme des adjonctions d"air qui peuvent être éliminées en appliquant une dépression suffisante. Il a été spéculé que les petits canaux sont provoqués par la singularité de contrainte en sortie de filière. Celle-ci génère des micro-ruptures à la partie inférieure du film de colle qui sont étirés entre la filière et le film primaire pour donner des canaux orientés dans la direction d"étirage. Afin de justifier le fait que ces défauts apparaissent systématiquement en bas du film de colle, on se propose de comparer la valeur de la contrainte au niveau des deux points singuliers à la partie supérieure et à la partie inférieure de la sortie de filière. Pour ce faire, on réalise un calcul avec le modèle 2D avec dépression dans le cas suivant : $A = 2.6$; $Dr = 18$ et $d = -0.43$. La figure VII.9 montre les valeurs des angles ω_h et ω_b que réalise le film de colle respectivement en haut et en bas de la filière pour plusieurs différentiels de pression Δp (figure VII.8). On remarque que l"angle ω_h qui est situé en haut de la filière est peu influencé par le différentiel de pression. Par contre, en augmentant

le différentiel de pression, l'angle ω_b qui est situé en bas de la filière augmente considérablement et dépasse même la valeur π. Nous avons montré dans le paragraphe (V.1.1.3.2) que les contraintes et la pression sont proportionnels à $r^{\alpha-1}$ au voisinage de la singularité et que le coefficient α diminue considérablement pour des angles $\omega \geq \pi$ (figure VII.10).

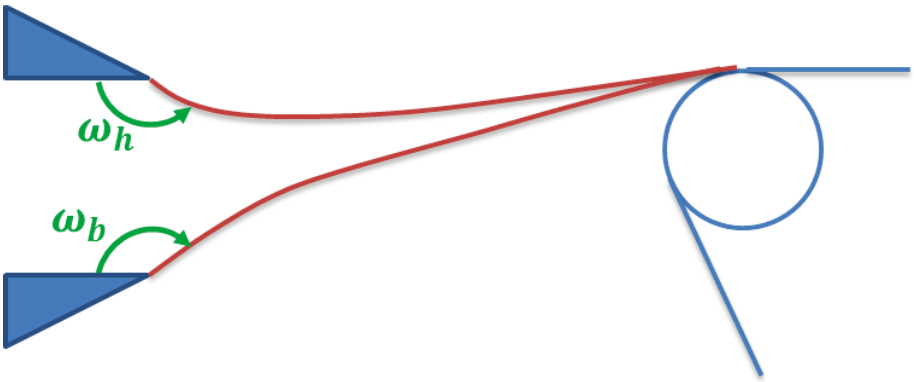


Figure VII.8 - Schéma explicatif des angles de l'écoulement en sortie de filière

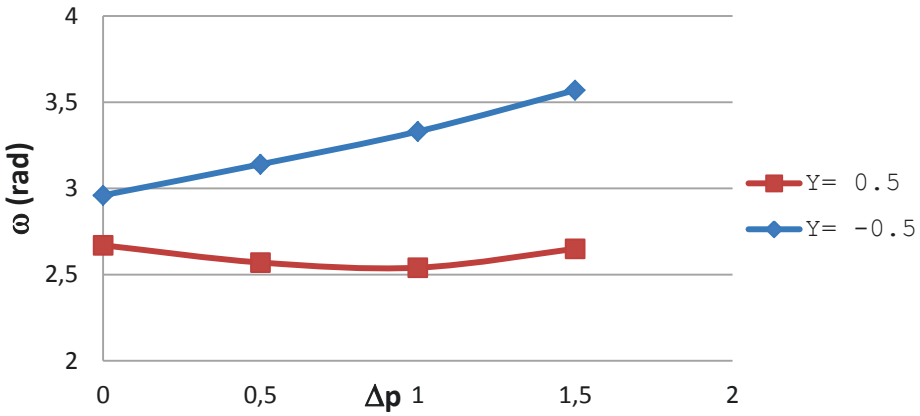


Figure VII.9 - Evolution des angles ω_h et ω_b en fonction du différentiel de pression

Donc, en augmentant le différentiel de pression, la dissymétrie entre les deux singularités devient de plus en plus marquée : les contraintes augmentent considérablement au voisinage de la singularité située à la partie inférieure du film de colle et elles conservent le même ordre de grandeur au voisinage de la singularité située en haut du film de colle. La figure VII.11 confirme ce résultat : on observe que l'augmentation du différentiel de pression engendre une pression plus élevée en $y = -0.5$ et et qui varie légèrement en $y = 0.5$ (pour $\Delta p \geq 0.5$).

Ainsi, on peut conclure que l'augmentation du différentiel de pression amplifie la dissymétrie du problème en exacerbant les singularités de contraintes à la partie inférieure du film de colle et en les atténuant à sa partie supérieure, ce qui constitue une possible explication du fait que le défaut de couverture apparaît systématiquement à la partie inférieure du film de colle. En effet, cette forte singularité de contraintes en bas du film de colle peut provoquer des micro-fissures qui n'ont pas le temps d'aboutir à une rupture globale du film de colle vu les courts temps de séjour mais qui s'allongent au cours de l'étirage pour donner naissance à des canaux.

La confrontation des résultats de la quantification des défauts de couverture avec les calculs numériques reste très difficile à mettre en œuvre. En effet, comme il est difficile de quantifier séparément les défauts surfaciques et les canaux, les données obtenues par analyse d'images dans le chapitre III sont plus influencées par les défauts surfaciques dont la taille est beaucoup plus importante que les canaux.

Par ailleurs, ces singularités de contrainte sont considérablement amplifiées quand on prend en compte le comportement viscoélastique du matériau [Fortin, 1992].

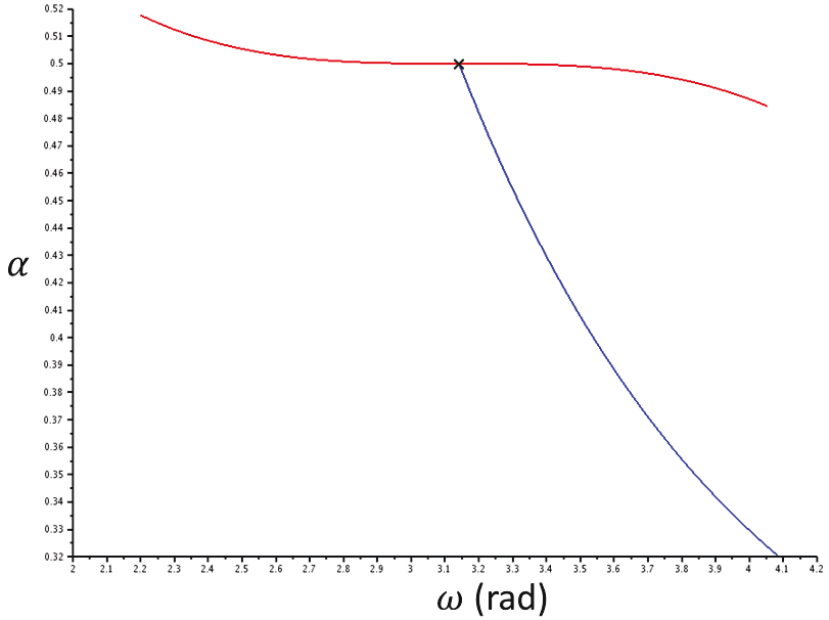


Figure VII.10 - Evolution de l'exposant α en fonction de l'angle ω

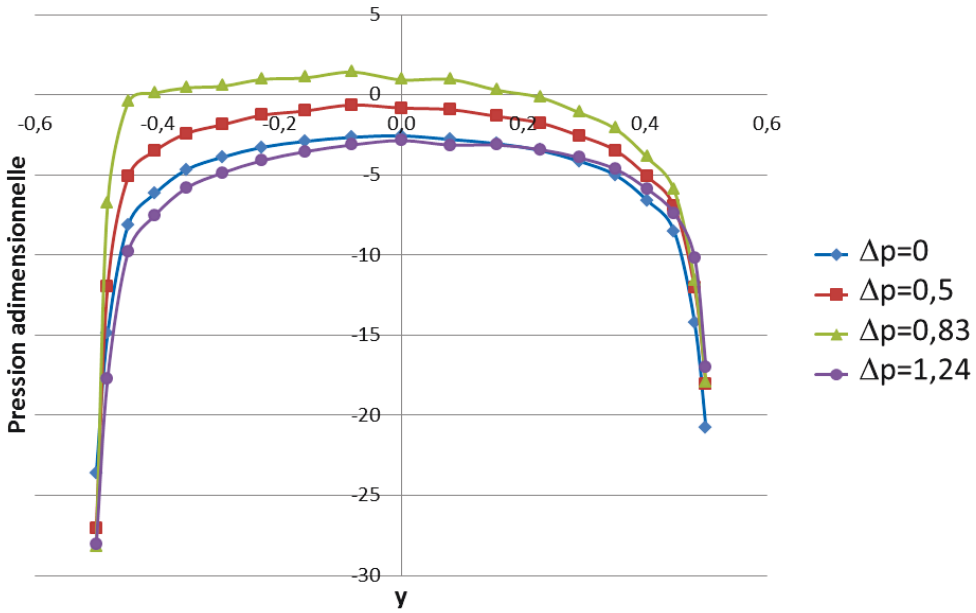


Figure VII.11 – Représentation de la pression adimensionnelle sur l'axe y pour différentes valeurs de Δp dans le cas $A = 2.6$; $Dr = 18$; $d = -0.43$

VII.4 Conclusion :

Nous avons confronté les calculs numériques de plusieurs modèles membrane et 2D avec les résultats expérimentaux. Un certain nombre de phénomènes paradoxaux et contradictoires avec la littérature sur la stabilité du procédé *Cast film* peuvent être expliqués grâce au développement d"un modèle 2D avec différentiel de pression. Ce modèle a permis d"expliquer l"effet stabilisant du taux d"étirage à très courte distance d"étirage qui représentait jusqu"à présent un phénomène contradictoire avec la littérature. Il a permis également de mettre en évidence l"effet stabilisant du différentiel de pression à courte distance d"étirage qui n"a pas fait l"objet d"études précédentes. Cependant, ce modèle ne permet pas de prédire avec précision ni l"apparition du défaut en « veines de chêne » ni sa forme en chevron.

Le modèle membrane est logiquement mis en défaut dès que le facteur de forme du film est faible. L"influence de la viscoélasticité n"a été étudiée que dans le cadre de l"approximation membrane et donne des résultats éloignés de la réalité.

Enfin, la singularité de contraintes en sortie de filière pourrait provoquer des micro-ruptures qui sont à l"origine du défaut de « petits canaux ». Cette explication a été justifiée par des calculs numériques réalisés avec le modèle 2D avec dépression.

BIBLIOGRAPHIE :

[Bose, 2013] K. Bose, T. Cox, S. Silvestri, P. Varin, “Invasion fronts and pattern formation in a model of chemotaxis in one and two dimensions,” *SIAM Undergrad. Res. Online.*, vol. 6, pp. 228–245, 2013.

[Bourrigaud, 2006] S. Bourrigaud, G. Marin, V. Dabas, C. Dupuy, D. Silagy, “The Draw ratio-Deborah number diagram: A useful tool for coating applications,” *Polym. Eng. Sci.*, vol. 46, pp. 372–380, 2006.

[Chambon, 1998] F. Chambon, D. Silagy, Y. Demay, J.F. Agassant, S. Ohlsson, “A method to reduce draw resonance,” Patent 94P 6B 004/006, 1998.

[Chossat, 1994] P. Chossat, G. Iooss, *The Couette-Taylor problem*, New York: Springer-Verlag, Applied Mathematical Sciences, 1994.

[Cross, 1993] M.C. Cross, P.C. Hohenberg, “Pattern formation out of equilibrium,” *Reviews of Modern Physics*, Vol. 65, pp. 851–1112, 1993.

[Fortin, 1992] A. Fortin, A. Zine, J.-F. Agassant, “Computing Viscoelastic Fluid Flow Problems at Low Cost,” *J. Non-Newtonian Fluid Mech.*, vol. 45, pp. 209–229, 1992.

[Silagy, 1998] D. Silagy, Y. Demay, J.-F. Agassant, “Stationnary and stability analysis of the film casting process,” *J. Non-Newtonian Fluid Mech.*, vol. 79, 563–583, 1998.

Conclusions & Perspectives

Nous avons étudié d"un point de vue théorique et expérimental le procédé de contre-collage d"emballages flexibles « Revoluflex ». Ce procédé représente une innovation de rupture dans le domaine de la fabrication des emballages flexibles puisqu"il permet le contre-collage de différents films plastiques à l"aide de colles thermofusibles. Ces colles permettent non seulement de réduire considérablement les temps de production mais aussi d"améliorer la productivité. De plus, contrairement aux colles Polyuréthanes traditionnelles, ces colles *hot melt* ne contiennent pas de matières dangereuses et respectent donc les réglementations en vigueur. Le point clé dans le procédé « Revoluflex » est qu"il permet de réaliser des dépôts de colles thermofusibles de très faible épaisseur à très grandes vitesses, ce qui n"a pas pu être effectué avec les procédés traditionnels de contre-collage. Cela a été rendu possible par l"étirage du film de colle sur une très courte distance (de l"ordre de l"entrefer) à des taux d"étirage très élevés tout en appliquant un différentiel des pression entre ses deux faces. La conception d"un tel procédé, réalisant toutes ces opérations dans un espace très réduit, représente un défi technologique important. L"objectif principal de ce travail était de mieux comprendre l"origine des défauts d"aspect rencontrés avec le procédé « Revoluflex » afin de pouvoir les éliminer ou au moins en différer l"apparition.

Les défauts observés sont paradoxaux par rapport à la littérature :

- Elimination d"un défaut d"instabilité périodique en augmentant le taux d"étirage ;
- Présence de micro-ruptures dans le dépôt de colle qui sont toujours situées du même côté.

Les différents modèles mathématiques développés apportent un éclairage sur l"origine de ces défauts :

- L"effet stabilisant de l"application d"un différentiel de pression entre les deux faces du film de colle a été mis en évidence notamment par le modèle 2D Newtonien avec dépression ;
- La prise en compte d"un écoulement 2D couplé à une dépression explique la stabilisation en augmentant le taux d"étirage pour de très courtes distances d"étirage ;
- L"exacerbation de la singularité de contraintes à la partie inférieure de la filière pourrait expliquer l"initiation systématique des micro-ruptures sur la partie inférieure du film de colle.

Par ailleurs, les modèles développés ont permis de valider, par une approche 2D, l"utilisation de conditions aux limites raisonnables pour un modèle membrane plus simple d"utilisation. Ce modèle membrane qui tient compte d"un différentiel de pression entre les deux faces du film de colle met en évidence une stabilisation, certes d"ampleur modeste, mais qui pourra être mise à profit dans le procédé *Cast film* traditionnel. Le modèle 2D Newtonien avec dépression montre le rôle discriminant que joue le différentiel de pression en fonction de la distance d"étirage.

Enfin, nous avons comparé deux méthodes numériques de calcul d"une surface libre dans un écoulement 2D ainsi que sa stabilité : une première méthode de type « *front-tracking* » basée sur une description explicite de l"interface et couplée à une méthode de stabilité linéaire et une deuxième méthode de simulation numérique directe basée sur une approche de capture d"interface (« *interface capturing* ») couplée à la méthode *Level-Set*. La cohérence entre les résultats de ces deux méthodes nous permet de déployer la première méthode, qui est relativement aisée à mettre en œuvre, sur un grand nombre de cas d"application.

En ce qui concerne les perspectives, l"amélioration des modèles mathématiques développés passera nécessairement par la prise en compte d"un comportement rhéologique réaliste pour la colle *hot melt*, ce qui pose des problèmes redoutables :

- Comment caractériser le comportement élongationnel de la colle *hot melt* à des taux d"élongation de plusieurs centaines de s^{-1}?
- Quelle est l"influence du « passé thermomécanique » sur le comportement de la colle : elle est soumise en filière à des taux de cisaillement de plusieurs milliers de s^{-1} puis pendant quelques centièmes de secondes à des taux d"élongation très élevés.

De plus, l"implémentation de ces lois de comportement viscoélastiques réalistes dans des écoulements qui engendrent de fortes singularités de contraintes posent plusieurs difficultés. Ce type de problème a donné lieu à un grand nombre d"études numériques à la fin du siècle dernier sans que la singularité de contrainte n"ait pu être maîtrisée que par des artifices numériques.

Enfin, le défaut en « veines de chêne » nécessiterait une approche un peu plus développée pour tenir compte de sa forme en chevron observée sur les échantillons. Ceci n"est pas un objectif purement académique car cela permettrait en quelque sorte d"élargir la fenêtre de processabilité stable.

Annexe I : Estimation des transferts thermiques dans le procédé « Revoluflex »

A-I.1 Objectifs :

Le but de cette annexe est d‟estimer les transferts thermiques dans le procédé « Revoluflex ». On utilise un modèle de type *Cast film* avec une température et une vitesse moyenne dans l‟épaisseur du film de colle. L‟équation d‟évolution de la température moyenne utilise une expression classique du coefficient de transfert thermique à l‟interface air-film.

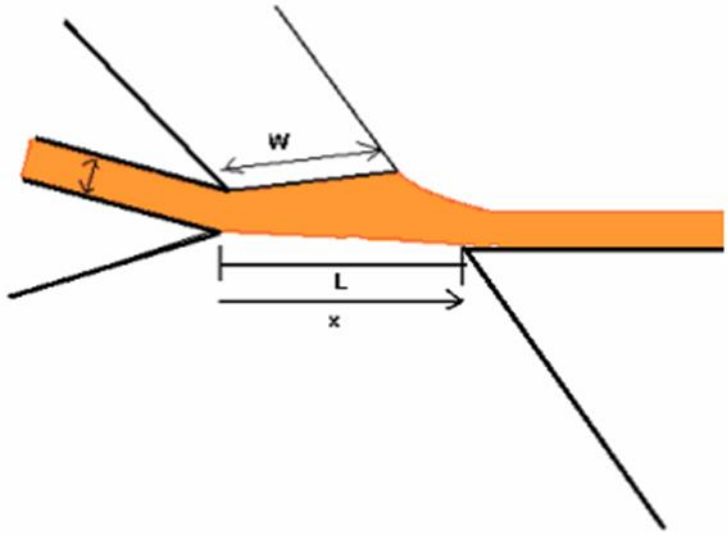


Figure A-I.1 - Schéma simplifié du modèle

A-I.2. Le modèle :

A-I.2.1. Les notations :

On note L la longueur d‟étirage, x la distance à l‟extrusion et W la largeur du film (figure A-I.1). Les variables du modèle sont les suivantes :

- Débit massique Q
- Vitesse moyenne $U(x)$
- Epaisseur $e(x)$
- Température moyenne $T(x)$
- Densité $\rho(T)$
- Viscosité $\eta(T)$
- Contraintes d‟étirage σ_{xx}

A-I.2.2. Les équations [Agassant et al., 2014] :

Les équations stationnaires de comportement, d"équilibre, de conservation de la matière et de la chaleur s"écrivent en négligeant les forces de masse et d"inertie :

- Comportement $$\sigma_{xx} = 4\,\eta(T)\frac{dU}{dx}$$
- Equilibre $$F = \sigma_{xx}\, e\, W \;\; avec \;\; \frac{dF}{dx} = 0$$
- Conservation de la matière $$Q = \rho(T)\, U(x)\, e\, W$$
- Chaleur $$\rho C U L e \frac{dT}{dx} = -hW(T(x) - T_0)$$

Dans cette dernière équation, h est le coefficient de transfert thermique. Ces équations conduisent aux deux équations différentielles :

$$\begin{cases} \dfrac{dU}{dx} = F\,\dfrac{\rho(T)}{4\,Q\,\eta(T)}\,U \\ \dfrac{dT}{dx} = -h\dfrac{W}{C\,Q}(T - T_{air}) \end{cases} \qquad \text{(A-I.1)}$$

avec les conditions initiales en $x = 0$:

$$U(0) = \overline{U_0} \quad et \quad T(0) = T_0 \qquad \text{(A-I.2)}$$

et la condition en $x = L$:

$$U(L) = U_L \qquad \text{(A-I.3)}$$

Pour dimensionner les échanges thermiques, on fait les hypothèses suivantes :

- Les variations de densité ρ(T) avec la température T sont négligées ;
- La viscosité η(T) dépend de la température T selon une loi d"Arrhenius :

$$\eta = \eta_{ref} exp\left(\frac{E_a}{R}\left(\frac{1}{T} - \frac{1}{T_{ref}}\right)\right)$$

- Le coefficient de transfert thermique est estimé à l"aide de la relation suivante [Agassant et *al*., 2014]:

$$h(T) = 0.66\, k_{air}\, \left(\frac{\rho_{air}}{\eta_{air}}\right)^{1/2}\, Pr^{1/3}\, \left(\frac{U}{x}\right)^{1/2}$$

On utilise $Pr_{air} = 0.75$.

A-I.2.3. La méthode de tir :

Les profils de vitesse et de température sont alors solutions du système différentiel couplé d"ordre 1 suivant (C_U et C_T sont des constantes connues) :

$$\begin{cases} \dfrac{dU}{dx} = C_U\, F\, U\, exp\left(-\dfrac{E_a}{R}\left(\dfrac{1}{T} - \dfrac{1}{T_{ref}}\right)\right) \\ \dfrac{dT}{dx} = C_T(T - T_{air})\, \left(\dfrac{U}{x}\right)^{1/2} \end{cases} \qquad \text{(A-I.4)}$$

L"équation (A-I.4) est associée aux conditions (A-I.2) en $x = 0$. La force F est choisie pour satisfaire la condition (A-I.3) en $x = L$.

A-I.3. La résolution numérique :

A-I.3.1. Le schéma :

La présence du terme $x^{1/2}$ ne permet pas d"utiliser un schéma classique du type Runge-Kutta en $x = 0$. On procéde de la manière suivante :

- Soit un pas d"espace et $x_n = n\Delta x$ les points de calcul. On note $U_n = U(x_n)$ et $T_n = T(x_n)$.
- En intégrant les équations (A-I.4) entre x_n et $x_{n+1} = x_n + \Delta x$, on obtient :

$$\begin{aligned} U_{n+1} - U_n &= \int_{x_n}^{x_{n+1}} C_U\, F\, U exp\left(-\frac{E_a}{R}\left(\frac{1}{T} - \frac{1}{T_{ref}}\right)\right) dx \\ &\sim C_U\, F\, U_n\, exp\left(-\frac{E_a}{R}\left(\frac{1}{T_n} - \frac{1}{T_{ref}}\right)\right) \\ T_{n+1} - T_n &= \int_{x_n}^{x_{n+1}} C_T(T - T_{air})\, \left(\frac{U}{x}\right)^{\frac{1}{2}} dx \\ &\sim C_T(T - T_{air})\, (U)^{1/2} 2\left(\sqrt{x_{n+1}} - \sqrt{x_n}\right) \end{aligned} \qquad \text{(A-I.5)}$$

  Ce schéma numérique utilise simplement le fait que, si le terme $x^{-\frac{1}{2}}$ est singulier en $x = 0$, l"intégrale $\int_0^L x^{-\frac{1}{2}} dx$ n"est pas singulière. Ces équations permettent de calculer U_{n+1} et T_{n+1} en fonction de U_n et T_n (U_0 et T_0 sont connus).
- La force F est déterminée pour satisfaire la condition (A-I.3) en $x = L$.

A-I.3.2. La précision :

Le schéma numérique tiré des équations (A-I.5) est d"ordre 1. Ce n"est pas gênant puisque ce calcul n"est pas répétitif. La précision est contrôlée en vérifiant que les pas Δx et $\frac{1}{2}\Delta x$ donnent les mêmes résultats.

A-I.4. Les résultats numériques :

Comme le montre les figures A-I.2 et A-I.3, les variations de températures sont inférieures à 1°C. Le procédé peut donc être considéré comme isotherme.

BIBLIOGRAPHIE :

[Agassant, 2014] J.-F. Agassant, P. Avenas, J.-P. Sergent, B. Vergnes, and M. Vincent, Mise en forme des polymères. Cachan: Lavoisier, 4 ed., 2014.

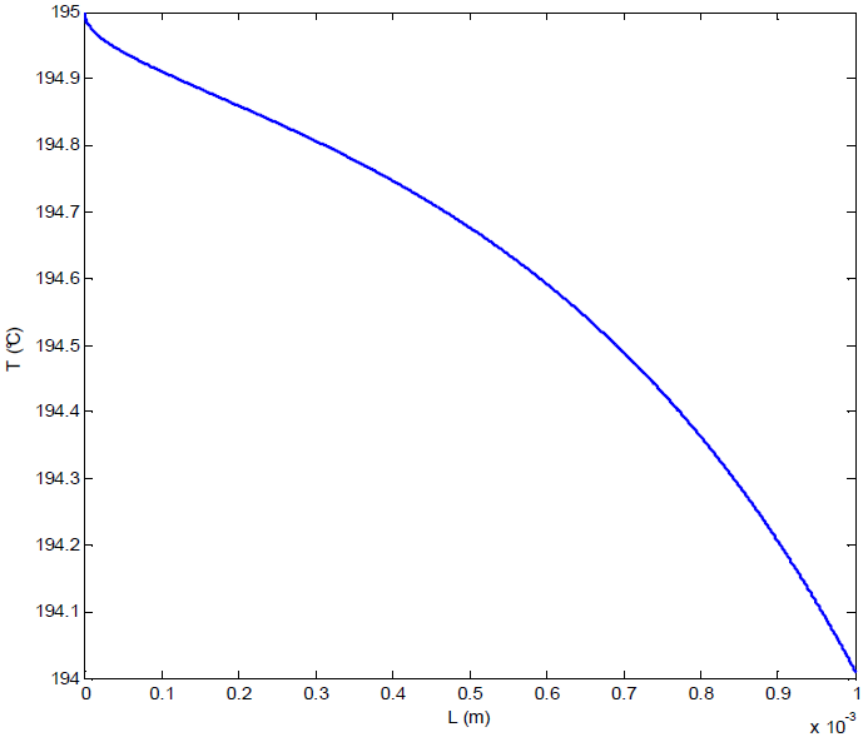


Figure A-I.2 - Profil de température selon x

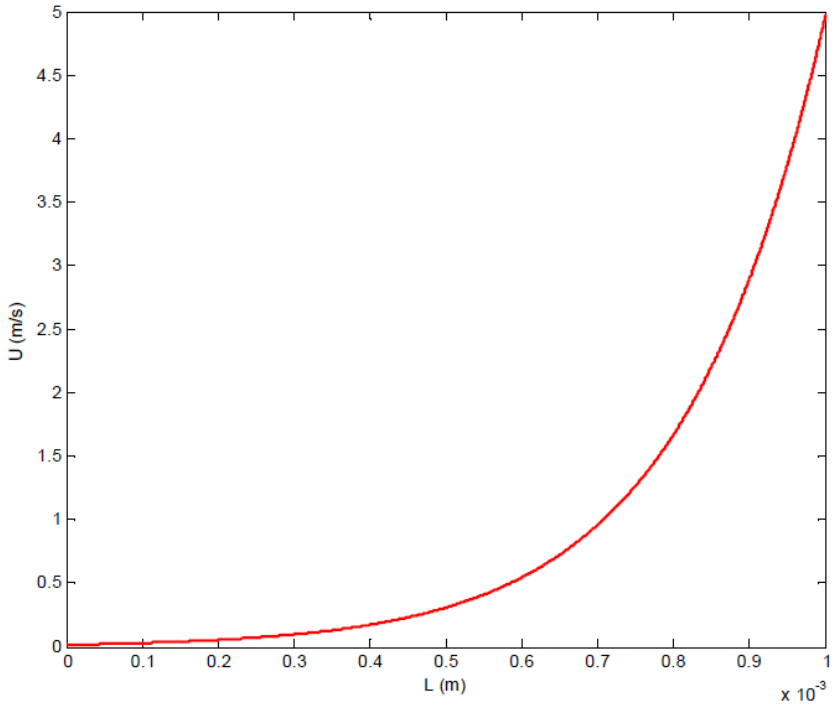


Figure A-I.3 - Profil de vitesse selon x

Annexe II : Essais réalisés sur le défaut en « veines de chêne »

Dans cette annexe on présente les paramètres et les résultats des essais considérés dans les paragraphes (III.2.2.2).

Numéro de l'essai	Vitesse d'étirage (m/min)	Grammage (g/m²)	Δp (mbar)	Veines de chêne	Dr	Débit moyen (g/s)
0314001	200	5	0	1	133	6,7
0314002	200	5	29	0	133	6,7
1312041	200	5	0	1	133	6,7
1312042	200	5	35	0	133	6,7
1312043	200	5	27	0	133	6,7
1312044	200	5	44	0	133	6,7
1312045	200	5	59	0	133	6,7
1312046	200	5	23	0	133	6,7
1312047	333	3	0	1	222	6,7
1312048	333	3	10	1	222	6,7
1312049	333	3	24	0	222	6,7
1312050	333	3	36	0	222	6,7
1312051	333	3	45	0	222	6,7
1312052	333	3	59	0	222	6,7

Tableau A-II.1 - Liste des essais utilisés pour l'analyse de l'influence du différentiel de pression (III.2.2.2.2)

Numéro de l'essai	Vitesse d'étirage (m/min)	Grammage (g/m²)	Δp (mbar)	Veines de chêne	Dr	Débit moyen (g/s)
1312006	50	9	0	0	74	3,0
1312007	75	6	0	0	111	3,0
1312008	112,5	4	0	0	166	3,0
1312009	150	3	0	0	222	3,0
1312010	225	2	0	0	333	3,0
1312010a	200	5	0	1	133	6,7
1312010b	200	5	30	0	133	6,7
1312010c	200	5	50	0	133	6,7
1312010d	200	5	19	0	133	6,7
1312010e	200	5	16	0	133	6,7
1312011	200	5	0	1	133	6,7

1312012	166	6	0	**1**	111	6,6
1312013	100	10	0	**1**	67	6,7
1312014	83	12	0	**1**	55	6,6
1312015	83	12	0	**1**	55	6,6
1312016	50	20	0	**1**	33	6,7
1312017	40	25	0	**1**	27	6,7
1312018	50	20	0	**1**	33	6,7
1312019	50	20	16	**0**	33	6,7
1312020	50	20	13	**0**	33	6,7
1312021	100	10	12	**1**	67	6,7
1312022	100	10	21	**0**	67	6,7
1312023	100	10	30	**0**	67	6,7
1312024	100	10	41	**0**	67	6,7
1312025	100	10	60	**0**	67	6,7
1312026	333	3	0	**1**	222	6,7
1312027	333	3	5	**1**	222	6,7
1312028	333	3	27	**0**	222	6,7
1312029	333	3	17	**0**	222	6,7
1312030	333	3	35	**0**	222	6,7
1312031	333	3	43	**0**	222	6,7
1312032	150	5	0	**1**	133	5,0
1312033	150	5	13	**1**	133	5,0
1312034	150	5	28	**0**	133	5,0
1312035	75	10	0	**1**	67	5,0
1312036	75	10	13	**1**	67	5,0
1312037	75	10	25	**0**	67	5,0
1312038	300	2,5	0	**1**	266	5,0
1312039	300	2,5	12	**0**	266	5,0
1312040	300	2,5	27	**0**	266	5,0

Tableau A-II.2 - Liste des essais utilisés pour l'analyse de l'influence du débit de colle (III.2.2.2.3)

Numéro de l'essai	Vitesse d'étirage (m/min)	Grammage (g/m²)	Δp (mbar)	Veines de chêne	Dr	Débit moyen (g/s)
0314001	200	5	0	**1**	133	6,7
0314003	150	5	0	**1**	133	5,0
0314005	75	3	0	**0**	222	1,5
0314006	75	6	0	**0**	111	3,0
1312041	200	5	0	**1**	133	6,7

1312047	333	3	0	**1**	222	6,7
1312053	100	10	0	**1**	67	6,7
1312060	400	2,5	0	**1**	266	6,7
1312063	150	5	0	**1**	133	5,0
1312068	300	2,5	0	**1**	266	5,0
1312073	75	10	0	**1**	67	5,0
1312078	75	6	0	**0**	111	3,0
1312079	75	5	0	**0**	133	2,5
1312080	75	4	0	**0**	166	2,0
1312081	75	3	0	**0**	222	1,5
1312082	75	2	0	**0**	333	1,0

Tableau A-II.3 - Liste des essais utilisés pour l'analyse de l'influence de la température de colle (III.2.2.2.4)

Numéro de l'essai	Vitesse d'étirage (m/min)	Grammage (g/m²)	Δp (mbar)	Veines de chêne	Dr	Débit moyen (g/s)
1312130	50	3	0	**0**	95	1,0
1312131	80	3	0	**0**	95	1,6
1312132	100	3	0	**0**	95	2,0
1312133	80	3	0	**0**	95	1,6
1312134	100	4	0	**0**	71	2,7
1312135	150	3	0	**0**	95	3,0
1312136	180	3	0	**0**	95	3,6
1312137	100	5	0	**1**	57	3,3
1312138	80	5	0	**1**	57	2,7
1312139	90	5	0	**1**	57	3,0
1312140	60	5	0	**1**	57	2,0
1312141	45	5	0	**1**	57	1,5
1312142	30	5	0	**1**	57	1,0
1312143	75	4	0	**1**	71	2,0
1312144	270	2	0	**1**	143	3,6
1312145	75	4	0	**1**	71	2,0
1312146	200	2	0	**0,5**	143	2,7
1312147	60	4	0	**1**	71	1,6
1312148	50	4	0	**1**	71	1,3
1312149	150	2	0	**0**	143	2,0
1312150	120	2	0	**0**	143	1,6
1312151	100	2	0	**0**	143	1,3
1312152	225	2	0	**1**	143	3,0

1312153	200	3	0	**1**	95	4,0
1312154	150	4	0	**1**	71	4,0
1312155	120	5	0	**1**	57	4,0
1312156	120	5	12	**1**	57	4,0
1312157	120	5	31	**0**	57	4,0
1312158	120	5	45	**0**	57	4,0
1312159	120	5	62	**0**	57	4,0
1312160	120	5	75	**0**	57	4,0
1312161	120	5	0	**1**	57	4,0
1312162	200	3	0	**1**	95	4,0
1312163	200	3	12	**1**	95	4,0
1312164	200	3	27	**0**	95	4,0
1312165	200	3	37	**0**	95	4,0
1312166	200	3	48	**0**	95	4,0
1312167	200	3	59	**0**	95	4,0
1312168	300	2	0	**1**	143	4,0
1312169	300	2	10	**1**	143	4,0
1312170	300	2	28	**1**	143	4,0
1312171	300	2	40	**0**	143	4,0
1312172	300	2	52	**0**	143	4,0
1312173	300	2	58	**0**	143	4,0

Tableau A-II.4 - Liste des essais réalisés pour $h_0 = 0,3\ mm$; $Pos.\ 0$; $T = 150°C$; $L = 0,6mm$ (III.2.2.2.5)

Numéro de l'essai	Vitesse d'étirage (m/min)	Grammage (g/m²)	Δp (mbar)	Veines de chêne	Dr	Débit moyen (g/s)
1312083	50	9	0	**1**	32	3,0
1312084	37,5	12	0	**1**	24	3,0
1312085	75	6	0	**1**	48	3,0
1312086	150	3	0	**0**	95	3,0
1312087	225	2	0	**0**	143	3,0
1312088	300	1,5	0	**0**	190	3,0
1312089	150	3	13	**1**	95	3,0
1312090	150	3	27	**0**	95	3,0
1312091	150	3	39	**0**	95	3,0
1312092	150	3	44	**0**	95	3,0
1312093	90	5	0	**1**	57	3,0
1312094	90	5	10	**1**	57	3,0

1312095	90	5	27	**0**	57	3,0
1312096	90	5	40	**0**	57	3,0
1312097	90	5	53	**0**	57	3,0
1312098	100	3	0	**1**	95	2,0
1312099	50	3	0	**0**	95	1,0
1312100	30	2	0	**0**	143	0,4
1312101	50	2	0	**0**	143	0,7
1312102	75	2	0	**0**	143	1,0
1312103	37,5	4	0	**0**	71	1,0
1312104	90	2	0	**0**	143	1,2
1312105	50	3	0	**0**	95	1,0
1312106	80	3	0	**0**	95	1,6
1312107	70	3	0	**0**	95	1,4
1312108	105	2	0	**0**	143	1,4
1312109	35	6	0	**0**	48	1,4
1312110	120	2	0	**0**	143	1,6
1312111	60	4	0	**0**	71	1,6
1312112	48	5	0	**0**	57	1,6
1312113	100	3	0	**0,5**	95	2,0
1312114	100	3	9	**0**	95	2,0
1312115	100	3	24	**0**	95	2,0
1312116	100	3	40	**0**	95	2,0
1312117	100	3	54	**0**	95	2,0
1312118	100	3	0	**1**	95	2,0
1312119	60	5	0	**1**	57	2,0
1312120	60	5	11	**1**	57	2,0
1312121	60	5	21	**0**	57	2,0
1312122	60	5	37	**0**	57	2,0
1312123	60	5	50	**0**	57	2,0
1312124	60	5	0	**1**	57	2,0
1312125	150	2	0	**0**	143	2,0
1312126	150	2	14	**0**	143	2,0
1312127	150	2	33	**0**	143	2,0
1312128	150	2	42	**0**	143	2,0
1312129	150	2	0	**0**	143	2,0

Tableau A-II.5 - Liste des essais réalisés pour $h_0 = 0,3\ mm$; $Pos.\ 0$; $T = 170°C$; $L = 0,6mm$ (III.2.2.2.5)

Numéro de l'essai	Dénivelé	Vitesse d'étirage (m/min)	Grammage (g/m²)	Veines de chêne	Dr	Débit moyen (g/s)
0314001	0	200	5	**1**	133	6,7
0314003	0	150	5	**1**	133	5,0
0314005	0	75	3	**0**	222	1,5
0314006	0	75	6	**0**	111	3,0
0314036	-	200	5	**1**	133	6,7
0314037	-	150	5	**1**	133	5,0
0314038	-	90	5	**0,5**	133	3,0
0314039	-	150	3	**0**	222	3,0
0314040	-	60	5	**0**	133	2,0
0314041	-	90	5	**1**	133	3,0
0314042	-	112,5	4	**0,5**	166	3,0
0314043	-	200	3	**1**	222	4,0
0314044	-	30	5	**0**	133	1,0
0314045	-	180	3	**0,5**	222	3,6
0314046	-	50	5	**0,5**	133	1,7
0314047	-	300	2	**1**	333	4,0
0314048	-	90	4	**1**	166	2,4
0314049	-	200	5	**1**	133	6,7
0314050	-	50	7	**1**	95	2,3
0314056	-	333	3	**1**	222	6,7
0314098	+	30	5	**1**	133	1,0
0314099	+	40	5	**1**	133	1,3
0314100	+	50	3	**1**	222	1,0
0314101	+	100	3	**1**	222	2,0
0314102	+	300	3	**1**	222	6,0
0314103	+	40	3	**0**	222	0,8
0314104	+	30	3	**0**	222	0,6
1312041	0	200	5	**1**	133	6,7
1312047	0	333	3	**1**	222	6,7
1312053	0	100	10	**1**	67	6,7
1312060	0	400	2,5	**1**	266	6,7
1312063	0	150	5	**1**	133	5,0
1312068	0	300	2,5	**1**	266	5,0
1312073	0	75	10	**1**	67	5,0
1312078	0	75	6	**0**	111	3,0
1312079	0	75	5	**0**	133	2,5
1312080	0	75	4	**0**	166	2,0

1312081	0	75	3	**0**	222	1,5
1312082	0	75	2	**0**	333	1,0

Tableau A-II.6 – Liste des essais réalisés pour $h_0 = 0,7\ mm$; $T = 150°C$; $L = 0,6mm\ \ et\ \Delta p = 0$ (III.2.2.2.6)

Numéro de l'essai	Dénivelé	Vitesse d'étirage (m/min)	Grammage (g/m²)	Veines de chêne	Dr	Débit moyen (g/s)
0314018	0	50	3	**0**	222	1,0
0314019	0	75	3	**0**	222	1,5
0314020	0	90	3	**0**	222	1,8
0314021	0	120	3	**1**	222	2,4
0314022	0	150	3	**1**	222	3,0
0314023	0	90	5	**1**	133	3,0
0314024	0	72	5	**0,5**	133	2,4
0314025	0	150	3	**1**	222	3,0
0314030	0	150	5	**1**	133	5,0
0314035	0	90	4	**0**	166	2,4
0314060	-	90	5	**1**	133	3,0
0314061	-	50	5	**1**	133	1,7
0314062	-	30	5	**0**	133	1,0
0314063	-	30	4	**0**	166	0,8
0314064	-	150	3	**1**	222	3,0
0314065	-	100	3	**1**	222	2,0
0314066	-	50	4	**1**	166	1,3
0314067	-	40	4	**0**	166	1,1
0314068	-	50	3	**0**	222	1,0
0314069	-	75	3	**0**	222	1,5
0314070	-	90	5	**1**	133	3,0
0314071	-	50	5	**0,5**	133	1,7
0314072	-	30	5	**0**	133	1,0
0314073	-	30	4	**0**	166	0,8
0314074	-	30	3	**0**	222	0,6
0314075	-	75	3	**0**	222	1,5
0314076	-	75	4	**1**	166	2,0
0314077	-	60	3	**0**	222	1,2
0314078	-	50	4	**1**	166	1,3
0314079	-	50	3	**0**	222	1,0
0314080	+	90	5	**1**	133	3,0

0314081	+	50	5	**1**	133	1,7
0314082	+	30	5	**1**	133	1,0
0314083	+	30	4	**0**	166	0,8
0314084	+	30	3	**0**	222	0,6
0314085	+	30	2	**0**	333	0,4
0314086	+	30	8	**1**	83	1,6
0314087	+	30	4,5	**1**	148	0,9
0314088	+	50	3	**1**	222	1,0
0314089	+	40	4	**1**	166	1,1
0314090	+	40	3	**0**	222	0,8
0314091	+	60	2	**0**	333	0,8
0314092	+	50	2	**0**	333	0,7
0314093	+	100	3	**1**	222	2,0

Tableau A-II.7 - Liste des essais réalisés pour $h_0 = 0,7\ mm$; $T = 150°C$; $L = 1.8\ mm\ \ et\ \Delta p = 0$ (III.2.2.2.7)

Numéro de l'essai	Dénivelé	Vitesse d'étirage (m/min)	Grammage (g/m²)	Δp (mbar)	Veines de chêne	Dr	Débit moyen (g/s)
0314001	0	200	5	0	**1**	133	6,7
0314002	0	200	5	29	**0**	133	6,7
0314036	-	200	5	0	**1**	133	6,7
0314043	-	200	3	0	**1**	222	4,0
0314049	-	200	5	0	**1**	133	6,7
0314051	-	200	5	17	**1**	133	6,7
0314052	-	200	5	27	**1**	133	6,7
0314053	-	200	5	40	**0**	133	6,7
0314054	-	200	5	58	**0**	133	6,7
1312041	0	200	5	0	**1**	133	6,7
1312042	0	200	5	35	**0**	133	6,7
1312043	0	200	5	27	**0**	133	6,7
1312044	0	200	5	44	**0**	133	6,7
1312045	0	200	5	59	**0**	133	6,7
1312046	0	200	5	23	**0**	133	6,7
0314055	-	333	3	17	**1**	222	6,7
0314056	-	333	3	0	**1**	222	6,7
0314057	-	333	3	27	**1**	222	6,7
0314058	-	333	3	42	**0**	222	6,7
0314059	-	333	3	55	**0**	222	6,7

1312047	0	333	3	0	**1**	222	6,7
1312048	0	333	3	10	**1**	222	6,7
1312049	0	333	3	24	**0**	222	6,7
1312050	0	333	3	36	**0**	222	6,7
1312051	0	333	3	45	**0**	222	6,7
1312052	0	333	3	59	**0**	222	6,7

Tableau A-II.8 - Liste des essais réalisés pour $h_0 = 0,7\ mm$; $T = 150°C$; $L = 0.6\ mm\ \ et$ Q $= 6.7\ g/s$ (III.2.2.2.8)

Annexe III : Essais réalisés sur le défaut de couverture

Dans cette annexe on présente les paramètres et les résultats des essais considérés dans les paragraphes (III.4.2).

Numéro de l'essai	Dénivelé	Distance d'étirage (mm)	Vitesse machine (m/min)	Grammage (g/m²)	Δp (mbar)	Dr	Débit moyen (g/s/m)	Taux de couverture (%)
0314111	0	0,6	200	5	27	133	16,7	**85,12**
0314112	0	0,6	200	5	38	133	16,7	**92,51**
0314113	0	0,6	90	5	0	133	7,5	**77,85**
0314115	0	0,6	90	5	11	133	7,5	**89,92**
0314116	0	0,6	90	5	31	133	7,5	**97,29**
0314117	0	0,6	90	5	27	133	7,5	**97,06**
0314118	0	0,6	100	3	0	222	5,0	**95,49**
0314120	0	0,6	100	3	35	222	5,0	**96,53**
0314121	0	0,6	100	3	26	222	5,0	**95,47**
0314122	0	0,6	150	3	0	222	7,5	**91,35**
0314123	0	0,6	150	3	19	222	7,5	**84,99**
0314124	0	0,6	150	3	27	222	7,5	**87,52**
0314125	0	0,6	150	3	33	222	7,5	**90,55**
0314126	0	1,8	90	5	0	133	7,5	**88,27**
0314127	0	1,8	90	5	21	133	7,5	**94,42**
0314128	0	1,8	90	5	30	133	7,5	**95,11**
0314129	0	1,8	100	3	10	222	5,0	**85,37**
0314130	0	1,8	100	3	20	222	5,0	**86,96**
0314131	0	1,8	100	3	28	222	5,0	**92,5**
0314132	0	1,8	150	3	10	222	7,5	**93,35**
0314133	0	1,8	150	3	20	222	7,5	**64,73**
0314134	0	1,8	150	3	29	222	7,5	**80,55**
0314135	-	0,6	90	5	0	133	7,5	**91,87**
0314136	-	0,6	90	5	20	133	7,5	**93,19**
0314137	-	0,6	90	5	34	133	7,5	**93,7**
0314138	-	0,6	150	3	27	222	7,5	**82,68**
0314139	-	0,6	150	3	40	222	7,5	**90,9**
0314140	-	0,6	100	3	24	222	5,0	**92,1**
0314141	-	0,6	100	3	31	222	5,0	**92,07**
0314142	+	0,6	90	5	24	133	7,5	**95,89**
0314143	+	0,6	90	5	31	133	7,5	**95,09**
0314144	+	0,6	100	3	24	222	5,0	**88,56**
0314145	+	0,6	100	3	30	222	5,0	**91,34**

Tableau A-III.1 - Résultats de la mesure du taux de couverture sur tous les essais réalisés (III.4.2)

Annexe IV : Article scientifique publié dans *International Journal of Numerical Methods in Fluids*

Titre : *Stability analysis of a polymer film casting problem*

(paru en ligne le 11 mars 2015)

INTERNATIONAL JOURNAL FOR NUMERICAL METHODS IN FLUIDS
Int. J. Numer. Meth. Fluids (2015)
Published online in Wiley Online Library (wileyonlinelibrary.com). DOI: 10.1002/fld.4024

Stability analysis of a polymer film casting problem

A. Kallel[1,*,†], E. Hachem[1], F. Rapetti[2], Y. Demay[2] and J. F. Agassant[1]

[1]*MINES ParisTech, Center for Materials Forming (CEMEF), UMR CNRS 7635, BP 207, 06904 Sophia-Antipolis, France*
[2]*University of Nice Sophia-Antipolis, Lab. Dieudonné, UMR CNRS 7351, Parc Valrose, 06102 Nice, France*

SUMMARY

The polymer cast film process consists of stretching a molten polymer film between a flat die and a drawing roll. Drawing instabilities are often encountered and represent a drastic limitation to the process. Newtonian fluid film stretching stability is investigated using two numerical strategies. The first one is a 'tracking' method, which consists of solving Stokes equations in the whole fluid area (extrusion die and stretching path) by finite elements. The interface is determined to satisfy a kinematic equation. A domain decomposition meshing technique is used in order to account for a flow singularity resulting from the change in the boundary conditions between the die flow region and the stretching path region. A linear stability method is then applied to this transient kinematic equation in order to investigate the stability of the stationary solution. The second method is a direct finite element simulation in an extended area including the fluid and the surrounding air. The time-dependent interface is captured by solving an appropriate level-set function. The agreement between the two methods is fair. The influence of the stretching parameters (Draw ratio and drawing length) is investigated. For a long stretching distance, a critical Draw ratio around 20 delimitating stable and unstable drawing conditions is obtained, and this agrees well with the standard membrane models, which have been developed 40 years ago. When decreasing the stretching distance, the membrane model is no longer valid. The 2D models presented here point out a significant increase of the critical Draw ratio, and this is consistent with experimental results. Copyright © 2015 John Wiley & Sons, Ltd.

Received 24 September 2014; Revised 14 January 2015; Accepted 15 February 2015

KEY WORDS: cast film; tracking strategy; capturing strategy; draw resonance; domain decomposition technique

1. INTRODUCTION

The cast film process is commonly used to produce polymer films or coatings, especially for packaging applications. It consists of extruding a molten polymer in a flat die (gap $2h_0 \sim 1$ mm, extrusion velocity $u_0 \sim 1$ cm/s; width $W \sim 1$ m) and then stretching the polymer sheet by a chill roll whose linear velocity can reach $u_f = 1$ m/s, to produce a polymer film of thickness $2h_f$ (of the order of 10 μ m). The stretching distance L between the die and the roll is generally of the order of several centimeters (Figure 1) [1]. When the hot polymer film (temperature around $200°C$) is in contact with the cold roll (temperature around $20°C$), it is cooled down rapidly due to its very thin thickness in such a way that stretching is really imposed on the distance L.

The key parameters of this cast film process are the Draw ratio $Dr = u_f/u_0$ and the shape factor $A = L/2h_0$. Due to the high viscosity of molten polymers ($\eta = 10^3 Pa.s$) the final gap of the die $2h_0$ needs to be sufficiently large to limit the pressure required to deliver the appropriate extrusion velocity u_0. It is thus necessary to impose a high Draw ratio to produce the target film thickness $2h_f = 10\mu m$ and this results in several processing problems.

*Correspondence to: A. Kallel, MINES ParisTech, Center for Materials Forming (CEMEF), UMR CNRS 7635, BP 207, 06904 Sophia-Antipolis, France
†E-mail: achraf.kallel@mines-paristech.fr

Copyright © 2015 John Wiley & Sons, Ltd.

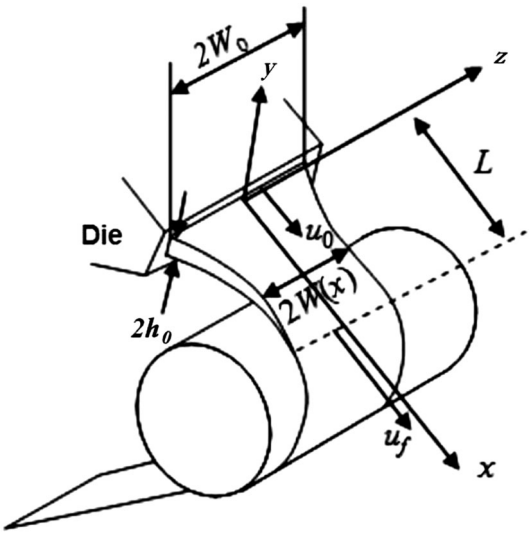


Figure 1. Typical cast film process and leading parameters visualization.

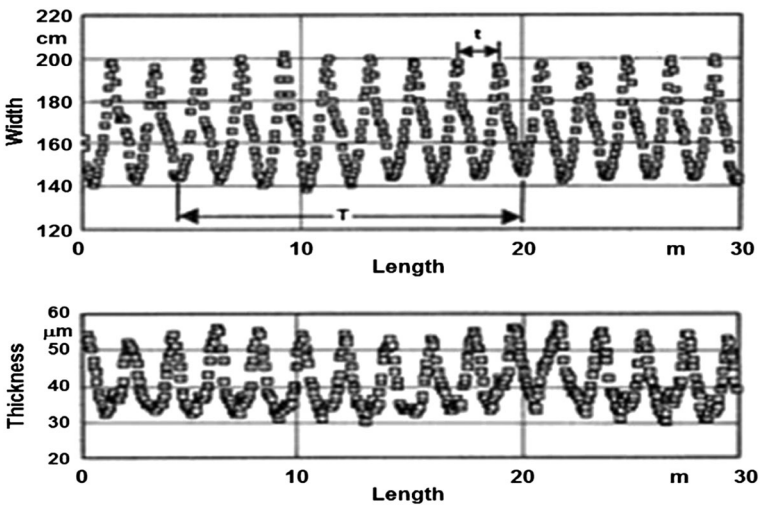


Figure 2. Typical width and thickness periodic instabilities in cast film processing [2].

First, the film width will shrink during stretching, which limits the film thickness reduction ($h_f/h_0 < 1/Dr$). In addition, this 'neck-in' phenomenon will result in an inhomogeneous final film thickness, even if the initial sheet thickness at die exit is homogeneous. The resulting localized over-thicknesses on each side of the film (commonly called 'dog-bone' phenomenon) make it necessary to trim the lateral borders of the film, and this will again reduce the width of the produced film. Both phenomena are amplified when the Draw ratio and/or the stretching distance increase. One can try to reduce the stretching distance, but this induces complex technological problems and generally the shape factor is higher than 10 ($L > 1$ cm).

Moreover, periodic instabilities on both the film width and the film thickness are observed as soon as the Draw ratio is higher than a critical value ($Dr > Dr_c$) (Figure 2).

These defects represent obvious limitations for the productivity of the process and a lot of scientific and technological effort has been devoted to limit the 'necking' and 'dog-bone' phenomena and to postpone the development of periodic instabilities. Increasing the drawing distance L and applying an appropriate cooling air jet along this drawing distance allow to increase the critical Draw ratio Dr_c but at the same time both 'necking' and 'dog-bone' phenomena are enhanced. One can try to reduce these defects by reducing the stretching distance, and it was speculated that the critical

Copyright © 2015 John Wiley & Sons, Ltd.

DOI: 10.1002/fld

Draw ratio would remain constant or even decrease (which means that periodic instabilities would appear at a lower stretching velocity) but surprisingly, the opposite was experimentally observed. This paper aims at understanding these observations.

2. STATE OF THE ART

Due to the industrial importance of the cast film process, a large range of models exists (see for example [3]), and the goal here is not to give an exhaustive description for each of them but to underline the main common features connected with this study. The different models deal principally with one or several of the following difficulties:

- behaviour of the molten polymer (Newtonian or viscoelastic);
- description of 'necking' and 'dog-bone' phenomena;
- determination of the critical Draw ratio; and
- description of the transition from a shear flow to a stretching flow.

The first model is a simple but interesting 1D membrane model [4]. It assumes a constant width and a Newtonian behaviour. If variables x and t denote, respectively, stretching direction and time, the unknown functions $h(t,x)$ and $u(t,x)$ denote, respectively, the half thickness of the web and the mean value of the velocity in the $x$direction over the thickness. The steady model has an analytical solution, which obviously does not account for 'necking' and 'dog-bone' phenomena. Stability of the steady flow is studied using linear stability analysis. It consists in calculating the dominant eigenvalue (two complex conjugates eigenvalues) of the stationary solution. This Newtonian isothermal constant width situation leads to the well known critical Draw ratio $Dr_c = 20.2$, below which all eigenvalues have a negative real part, which means that any flow perturbation will decrease and finally vanish as a function of time [5]. Let us mention that for $Dr > Dr_c$, a Hopf bifurcation occurs: the steady flow becomes unstable when a time-periodic solution appears. This elegant and rapid stability analysis has been then applied to more realistic and complex situations (viscoelastic constitutive equations, non isothermal flow) in the case of fiber spinning, which is basically governed by the same system of equations (see [3] for a detailed bibliography). Of particular interest, this approach points out that increasing the drawing distance and introducing film cooling will stabilize the process (leading to a higher critical Draw ratio), and this is consistent with experiments. The drawback of this method is that computing the time-dependent solution is tedious and possible only in a small neighborhood of the critical Draw ratio. Let us point out that, as the transition from a shear flow in the flat die to a stretching flow between the die, and the chill roll is neglected, the critical Draw ratio is overestimated: this is easily understood having in mind that swelling (in the y direction) occurring at the die exit is neglected.

The following are membrane models using mean values of velocity components $u(t,x,z)$ and $v(t,x,z)$ in the x and z directions, respectively, (stretching and shrinking directions) as well as thickness $e(t,x,z)$ ([6–10]). The important contribution of these 2D membrane models is a description of 'necking' and 'dog-bone' phenomena. They were first developed based on a Newtonian behaviour, but they were then extended to account for viscoelastic fluids. In this case, the stability of the steady flow is determined using transient simulations and a convenient time-space numerical scheme. Growth or decay of a small perturbation of the steady flow can be observed. It was found that the critical Draw ratio depends on the initial film width $2W_0$ and the stretching distance L (Figure 1).

A difficult point is to take into account the transition from a shear flow in the flat die to a stretching flow between die and chill roll (Figure 3). This can be done for large initial width by assuming a constant width of the web and considering a 2D Stokes free boundary problem in the (x,y) plane of Figure 1 ([11, 12]). For instance, because the thickness of the polymer film and the stretching distance are negligible compared with the width, it is possible to assume that the flow is invariant according to z (the position in the transverse direction). Generalization to a viscoelastic fluid remains challenging.

Copyright © 2015 John Wiley & Sons, Ltd.

DOI: 10.1002/fld

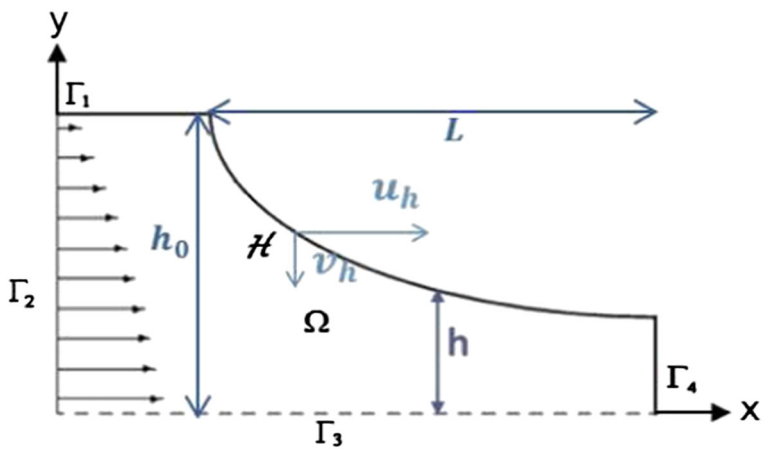


Figure 3. Geometry of the 2D flow domain (only one half of the flow domain is considered).

In this paper, two complementary methods for the 2D problem in the (x, y) plane will be proposed and compared, first for a long stretching distance ($A \gg 1$) to check the validity of the results with the existing membrane models, and then for a short distance ($A \sim 1$), which corresponds to a new development.

- A front-tracking method is first developed. A stationary solution is computed in the polymer flow domain (Figure 3). The interface with air is determined to satisfy the kinematic interface steady equation. The linear stability method is then applied to this interface location in order to predict onset of Draw resonance.
- For the direct numerical simulation, both polymer flow and the surrounding air are considered and the time-dependent interface, between polymer and air, is captured by solving a suitable transport equation for a level-set function.

The front-tracking method coupled with a linear stability analysis is able to determine the onset of Draw resonance at a low computational cost for various processing conditions. Scilab programming language is used and it results in a computation code that runs in few minutes on a laptop computer.

3. FRONT-TRACKING METHOD

The 2D stretching flow of a (highly viscous) Newtonian fluid is considered. As this flow presents an unknown interface with air, the classical and well posed Stokes problem is coupled with a kinetic interface equation, allowing to determine the air-polymer interface at each time step. This interface becomes unstable at high-stretching rates. Let us point out that as the Reynolds number is small ($Re \ll 1$), this instability is not inertial. The development of instability at high values of the Draw ratio is due to the nonlinear terms of the kinematic interface equation. The finite-element computation of the steady flow is first described. The linear stability is studied in Section 4 by introducing the time dependency in the kinetic interface equation. The comparison of linear stability results to a time-dependent simulation using a capturing method will be detailed in Section 5.

3.1. Governing equations for the steady flow

The considered fields are velocity U, rate of strain tensor $\dot{\boldsymbol{\epsilon}}$, stress tensor $\boldsymbol{\sigma}$ and pressure p:

$$U = \begin{bmatrix} u \\ v \end{bmatrix} \quad ; \quad \dot{\boldsymbol{\epsilon}} = \frac{1}{2}\left(\nabla U + \nabla U^t\right) \quad ; \quad \boldsymbol{\sigma} = \begin{bmatrix} \sigma_{xx} & \sigma_{xy} \\ \sigma_{xy} & \sigma_{yy} \end{bmatrix}$$

As the objective is to describe the transition from a purely shearing flow in the flat die to a purely stretching flow (Figure 3), the considered geometry includes the final part of the flat die and the stretching area until take up. The change of boundary conditions at die exit induces a geometric

Copyright © 2015 John Wiley & Sons, Ltd.

DOI: 10.1002/fld

singularity, which is responsible for computational difficulties. Let us note $2h_0$ the gap of the flat die. Extrusion occurs at $x = 0$. The flow in the die is considered on a length h_0 (from $x = -h_0$ to $x = 0$), and the contact of the fluid with the wall is sticky. After extrusion, the liquid is stretched by imposing at $x = L$, a take-up velocity u_L largely greater than the mean extrusion velocity u_0. The flow domain Ω and its boundaries are presented on Figure 3. Let us precise the following boundary conditions:

- The velocity components vanish on the upper wall Γ_1 of the flat die.
- A plane Poiseuille flow is imposed on Γ_2.
- On the symmetry axis Γ_3, the normal component of the velocity vanishes ($v = 0$) as well as the shear component of the stress tensor ($\sigma_{xy} = 0$).
- On Γ_4 (take up), the x-component of the velocity is imposed ($u = u_L$), and the shear components of the stress tensor vanishes ($\sigma_{xy} = 0$).
- The interface with air $\mathcal{H}$ is described as the graph $y = h(x)$. On this part, the interface balance equation writes: $\boldsymbol{\sigma}\overrightarrow{n} = 0$.

The stress tensor $\boldsymbol{\sigma}$ for a Newtonian behaviour reads (η_p is the polymer viscosity):

$$\boldsymbol{\sigma} = 2\eta_p\,\dot{\boldsymbol{\epsilon}} - p\,\boldsymbol{Id} \tag{1}$$

Due to the large value of η_p, gravity and inertia are neglected, and the balance equation becomes

$$\nabla \cdot \boldsymbol{\sigma} = 0. \tag{2}$$

Finally, as the fluid is incompressible, mass conservation holds:

$$\nabla \cdot U = Tr\,(\dot{\boldsymbol{\epsilon}}) = 0 \tag{3}$$

Equations (1)–(3) form the classical Stokes problem, which is well posed with the previously described boundary conditions on $\partial\Omega$ for a given air-polymer interface (i.e., for a given function $y = h(x)$). A finite-element strategy is used to compute velocity components u, v and pressure p (see paragraph 3.2). Let us point out that as inertia is neglected, the considered equations are unchanged if the time dependency is introduced.

At this step, a supplementary condition is needed to determine the steady interface $\mathcal{H}$. As the non-miscibility condition writes for a steady flow $U \cdot \overrightarrow{n} = 0$ [11], we have

$$u_h \frac{\partial h}{\partial x} = v_h$$

with $u_h(x) = u(x, h(x))$ and $v_h(x) = v(x, h(x))$.

The non-miscibility condition leads to a highly nonlinear equation for h, namely

$$F(h) = -u_h \frac{\partial h}{\partial x} + v_h = 0 \tag{4}$$

An iterative process is used to solve this equation. First, the interface position is initialized by the analytical solution of the 1D membrane model $h(x) = h_0 Dr^{-\frac{x}{L}}$ [13]. Then, several fixed-point iterations allow to make the interface position closer to the solution and thus ensure an easy convergence. Finally, the steady-state interface is obtained by successive Newton-Raphson's iterations.

3.2. *The finite elements strategy*

For a given air-polymer interface, the Stokes problem is classically written as a mixed problem:

Find $U \in \mathcal{V}$ and $p \in \mathcal{Q}$ such that

$$a(U, V) + b(V, p) = 0 \qquad \forall\, V \in \mathcal{V} \tag{5a}$$

$$b(U, q) = 0 \qquad \forall\, q \in \mathcal{Q} \tag{5b}$$

Copyright © 2015 John Wiley & Sons, Ltd.

DOI: 10.1002/fld

with

$$a(U,V) = 2\int_{\Omega} \eta_p \, \epsilon(U) : \epsilon(V) \qquad \text{and} \qquad b(U,p) = -\int_{\Omega} p \, div(U)$$

The spaces $\mathcal{V}_h$ and $\mathcal{Q}_h$ of test functions are convenient subspaces of Sobolev spaces $\mathcal{V} \subset \left(H^1(\Omega)\right)^2$ and $\mathcal{Q} \subset L^2(\Omega)$ [14]. The finite-element approximation of problem (5) leads to a linear system for nodal values of U and p of the following form:

$$\begin{bmatrix} A & B^{\top} \\ B & 0 \end{bmatrix} \begin{bmatrix} \boldsymbol{U} \\ \boldsymbol{P} \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} \boldsymbol{F}_U \\ 0 \end{bmatrix} \tag{6}$$

In this matrix equation, $\boldsymbol{U}$ and $\boldsymbol{P}$ are the unknown vectors of nodal values for the velocity and pressure, whereas the right-hand side part $\boldsymbol{F}_U$ of the equation contains Dirichlet conditions for velocity. Due to Korn inequality, the bilinear form $a(.,.)$ is coercive, and hence matrix A is positive definite. However, the linear system (6) is not invertible for all choices of the finite-element pairs for interpolating velocity and pressure. The finite element pair $\mathcal{P}_1^+ - \mathcal{P}_1$ (Mini-element, [15]), which satisfies the Babushka-Brezzi-Ladysenskaia condition is used here for velocity components and pressure. According to this choice, every triangular element K is divided in three sub-triangles having as a common vertex the element's center of gravity, and the discrete velocity space is enriched by a bubble function defined as the test function associated to the center of gravity of the element. This bubble function is continuous, linear on each sub-triangle and vanishes on the boundary of K. The supplementary velocity component DOFs introduced by the bubble function are removed thanks to the so-called static condensation strategy, which consists of writing the discrete equations of (5a) with the bubble as test function on each velocity component. Assembling on the three sub-triangles allows to compute nodal values of velocity at the center of each element as a function of nodal values of velocity and pressure at the vertices of the element. It thus leads to the following linear system:

$$\begin{bmatrix} \widehat{A} & \widehat{B}^{\top} \\ \widehat{B} & \widehat{C} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} \boldsymbol{U} \\ \boldsymbol{P} \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} \widehat{\boldsymbol{F}}_{\boldsymbol{U}} \\ \widehat{\boldsymbol{F}}_{\boldsymbol{p}} \end{bmatrix} \tag{7}$$

In the following sections, $\widehat{A}, \widehat{B}, \widehat{C}, \widehat{F}_U$ and $\widehat{F}_p$ will be simply denoted by A, B, C, F_U and F_p.

3.3. Flow domain, meshing and domain decomposition technique

The flow domain between the extrusion die and the take-up is restricted by the position of the interface $\mathcal{H}$, which is defined by a piecewise linear interpolation of function h:

$$h_i = h(x_i) \quad \text{with} \quad x_0 = 0 \quad \text{and} \quad x_N = L$$

where h_0 is half of the flat die thickness and the set $h_1 \cdots h_N$ is unknown. Because it is required to determine the onset of Draw resonance, for various processing conditions, relatively quickly (few minutes) and at a low computational cost, a direct and simple strategy is considered. For example, structured meshes are used to easily control node numbers at the air-polymer interface. Moreover, a reference domain $\Omega_{ref} = [-h_0, L] \times [0, h_0]$ is defined, and a meshing of domain Ω is then obtained by applying the following transformation, between die exit and take-up, to a meshing of Ω_{ref}:

$$(x,y) \longmapsto \left(x, y\,\frac{h(x)}{h_0}\right) \qquad \text{for} \qquad x \geqslant 0$$

In addition, mesh refinement at die exit is required to deal with the pressure singularity resulting from the change of boundary conditions at die exit (sticky contact at the wall Γ_1 in the die and vanishing normal stress on $\mathcal{H}$). As the effect of this geometrical singularity is well known for the so called *stick-slip flow* (in this case velocity and stress tensor behave respectively as $r^{\frac{1}{2}}\Phi(\theta)$ and $r^{-\frac{1}{2}}\Psi(\theta)$), and in order to avoid the use of an adaptation method, the mesh of the reference domain

Copyright © 2015 John Wiley & Sons, Ltd.

DOI: 10.1002/fld

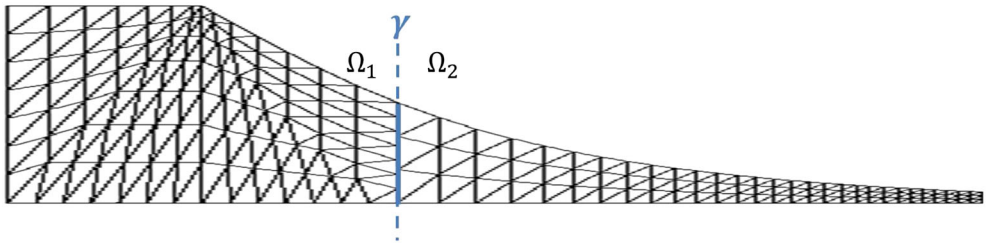


Figure 4. Structured mesh transformation.

Ω_{ref} is radially refined in the neighborhood of extrusion die exit ($x = 0$ and $y = h_0$). Figure (4) shows the mesh refinement of the resulting flow domain. The suitability of this mesh refinement was checked because it allowed to capture the 19% die swelling when no draw ratio is imposed [16].

Obviously, in the flow region located immediately after die exit (about half a thickness after die exit), shear components, which were dominant inside the die, vanish progressively, whereas elongation components become largely dominant along the stretching path. In the remaining part of the flow, the velocity component v and its gradient become negligible with respect to the velocity component u and its gradient, respectively. Therefore, in this part of the domain, it is required to refine the mesh only in the x direction. Thus a domain decomposition approach, allowing to adapt the meshes to the features of the solution in the flow domain, is adopted [17]. Indeed, it allows to obtain a convenient solution at low computational cost. Classical approaches when dealing with non-conforming finite approximations are the mortar element method ([18, 19]) and the discontinuous Galerkin method. See also [20] and the references therein for more details on discretization methods for fluid problems and their theoretical analysis in complex geometries. The scope here is mostly confined to a very simple coupling approach, which neither introduces additional difficulties (such as complicated function spaces or new variational terms depending on parameters to set) nor alters the significant features of the solution (such as stability, flow rate distribution) even if the coupling is not optimal with respect to the consistency error. The rule of mesh-conformity (i.e., two elements of the mesh sharing either nothing, or a vertex or a whole edge) constrains mesh refinement to propagate from the die exit singularity up to the end of the domain. To by-pass this difficulty, two meshes that do not match on the connection line γ are used as shown in Figure 4. The coupling technique used to link components of $\boldsymbol{U}$ and $\boldsymbol{P}$ associated to nodes on γ for the two meshes is described in the following. The flow domain Ω is decomposed into two non-overlapping sub-domains $\Omega_k, k = 1, 2$:

$$\overline{\Omega} = \overline{\Omega}_1 \cup \overline{\Omega}_2, \qquad \Omega_1 \cap \Omega_2 = \emptyset, \qquad \overline{\Omega}_1 \cap \overline{\Omega}_2 = \gamma, \tag{8}$$

such that Ω_1 contains the die exit singularity and Ω_2 the final part of the polymer film. The connection line γ is vertical and located after die exit, for example, at $x_\gamma = h_0$ where neither the pressure nor the velocity present too strong variations in the y direction. Then, two different families of triangulations $\mathcal{T}_1$ and $\mathcal{T}_2$ are used on Ω_1 and Ω_2, respectively. Let us denote by $\boldsymbol{U}^k$ and $\boldsymbol{P}^k$ the vectors of nodal values for U and P on mesh $\mathcal{T}_k, k = 1, 2$. After the assembling on each local mesh, one obtains matrices A^k, B^k and C^k. Let us point out that because the nodes of $\mathcal{T}_1$ and $\mathcal{T}_2$ do not in general coincide on γ, the continuity conditions

$$U^1(x) = U^2(x) \ ; \ \ p^1(x) = p^2(x) \ ; \text{for } \ x \in \gamma \tag{9}$$

have to be restored at the discrete level. This is carried out by interpolation. For the final linear algebraic system, unknown values on $\mathcal{T}_1$ and $\mathcal{T}_2$ are split. We set $\boldsymbol{U} = [\boldsymbol{U}^1, \boldsymbol{U}^2]^\top$ and $\boldsymbol{P} = [\boldsymbol{P}^1, \boldsymbol{P}^2]^\top$ with

$$\boldsymbol{U}^1 = \left[\boldsymbol{U}_I^1, \boldsymbol{U}_\gamma^1\right]^\top, \qquad \boldsymbol{U}^2 = \left[\boldsymbol{U}_\gamma^2, \boldsymbol{U}_I^2\right]^\top, \qquad \boldsymbol{P}^1 = \left[\boldsymbol{P}_I^1, \boldsymbol{P}_\gamma^1\right]^\top, \qquad \boldsymbol{P}^2 = \left[\boldsymbol{P}_\gamma^2, \boldsymbol{P}_I^2\right]^\top,$$

where $\boldsymbol{U}_I^k$ (resp. $\boldsymbol{P}_I^k$) denotes the vector of unknown values for velocity (resp. pressure) associated to nodes $x_j \in \mathcal{T}_k$ with $x_j \notin \gamma$ and $\boldsymbol{U}_\gamma^k$ (resp. $\boldsymbol{P}_\gamma^k$) the one of unknowns for velocity (resp. pressure) associated to nodes $x_j \in \mathcal{T}_k \cap \gamma$. With the chosen ordering, we have

Copyright © 2015 John Wiley & Sons, Ltd.

DOI: 10.1002/fld

$$A^1 = \begin{bmatrix} A^1_{II} & A^1_{I\gamma} \\ A^1_{\gamma I} & A^1_{\gamma\gamma} \end{bmatrix}, \quad \text{and} \quad A^2 = \begin{bmatrix} A^2_{\gamma\gamma} & A^2_{\gamma I} \\ A^2_{I\gamma} & A^2_{II} \end{bmatrix}$$

(similarly for B^k and C^k). The right-hand side vectors $\boldsymbol{F}^k_U$ and $\boldsymbol{F}^k_p$ have the same block structure as the one of $\boldsymbol{U}^k$ and $\boldsymbol{P}^k$. For the discrete continuity condition on γ, it is decided to consider Ω_1 as the (master) subdomain that passes the information to the (slave) subdomain Ω_2 at γ. This choice is motivated by the fact that $\mathcal{T}_1$ is finer than $\mathcal{T}_2$ on γ in the y-direction (see figure 4). Let us first describe this master-slave strategy for the pressure (a scalar field). The continuity condition (9) is imposed by interpolation on γ and it induces that the coefficients $p^2_i, i = 1, m^2_\gamma$, associated to nodes $\left(x_\gamma, y^2_i\right) \in \mathcal{T}_2 \cap \gamma$ verify:

$$p^2_i = \sum_{j=1,m^1_\gamma} p^1_j \, \varphi^1_j \left(x_\gamma, y^2_i\right), \qquad i = 1, m^2_\gamma.$$

where φ^1_j is the piecewise linear Finite Element function associated to node $\left(x_\gamma, y^1_j\right)$ on mesh $\mathcal{T}_1$. Here m^1_γ and m^2_γ are respectively the number of nodes on γ for $\mathcal{T}_1$ and $\mathcal{T}_2$.

In matrix form, we thus obtain

$$\boldsymbol{P}^2_\gamma = Q \boldsymbol{P}^1_\gamma, \qquad \text{with} \quad Q_{ij} = \varphi^1_j \left(x_\gamma, y^2_i\right), \quad 1 \leqslant i \leqslant m^2_\gamma, \, 1 \leqslant j \leqslant m^1_\gamma. \tag{10}$$

This can be written as follows:

$$\begin{bmatrix} \boldsymbol{P}^1_I \\ \boldsymbol{P}^1_\gamma \\ \boldsymbol{P}^2_\gamma \\ \boldsymbol{P}^2_I \end{bmatrix} = \tilde{Q} \begin{bmatrix} \boldsymbol{P}^1_I \\ \boldsymbol{P}^1_\gamma \\ \boldsymbol{P}^2_I \end{bmatrix} \quad \text{with} \quad \tilde{Q} = \begin{bmatrix} Id & 0 & 0 \\ 0 & Id & 0 \\ 0 & Q & 0 \\ 0 & 0 & Id \end{bmatrix}$$

If the block matrix $\tilde{C}$ has the structure

$$\tilde{C} = \begin{bmatrix} C^1 & 0 \\ 0 & C^2 \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} C^1_{II} & C^1_{I\gamma} & 0 & 0 \\ C^1_{\gamma I} & C^1_{\gamma\gamma} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & C^2_{\gamma\gamma} & C^2_{\gamma I} \\ 0 & 0 & C^2_{I\gamma} & C^2_{II} \end{bmatrix} \tag{11}$$

according to the set of unknown $\left[\boldsymbol{P}^1_I, \boldsymbol{P}^1_\gamma, \boldsymbol{P}^2_\gamma, \boldsymbol{P}^2_I\right]^\top$, the matrix C_r for the reduced set of unknowns $\left[\boldsymbol{P}^1_I, \boldsymbol{P}^1_\gamma, \boldsymbol{P}^2_I\right]^\top$ is then given by

$$C_r = \tilde{Q}^\top \tilde{C} \; \tilde{Q} \tag{12}$$

Let us note that if nodes of $\mathcal{T}_1$ and $\mathcal{T}_2$ coincide on γ, Equation (12) achieves the assembly of triangles of $\mathcal{T}_1$ and $\mathcal{T}_2$ having nodes on γ.

The same strategy is applied for nodal values of the velocity components using matrices Q_2 and $\tilde{Q}_2$. They are built as follows:

$$\mathbf{U}^2_\gamma = Q_2 \, \mathbf{U}^1_\gamma \quad \text{and hence} \quad \begin{bmatrix} \boldsymbol{U}^1_I \\ \boldsymbol{U}^1_\gamma \\ \boldsymbol{U}^2_\gamma \\ \boldsymbol{U}^2_I \end{bmatrix} = \tilde{Q}_2 \begin{bmatrix} \boldsymbol{U}^1_I \\ \boldsymbol{U}^1_\gamma \\ \boldsymbol{U}^2_I \end{bmatrix} \quad \text{with} \quad \tilde{Q}_2 = \begin{bmatrix} Id & 0 & 0 \\ 0 & Id & 0 \\ 0 & Q_2 & 0 \\ 0 & 0 & Id \end{bmatrix}$$

Copyright © 2015 John Wiley & Sons, Ltd.

DOI: 10.1002/fld

Matrices $\tilde{A}$ and $\tilde{B}$ are defined similarly to Equation (11) by

$$\tilde{A} = \begin{bmatrix} A^1 & 0 \\ 0 & A^2 \end{bmatrix} \quad \text{and} \quad \tilde{B} = \begin{bmatrix} B^1 & 0 \\ 0 & B^2 \end{bmatrix}$$

Then, the reduced matrices A_r and B_r and the reduced vectors $\boldsymbol{F}_{r,U}$ and $\boldsymbol{F}_{r,p}$ are defined by:

$$A_r = \tilde{Q}_2^T \, \tilde{A} \, \tilde{Q}_2, \qquad B_r = \tilde{Q}^\top \, \tilde{B} \, \tilde{Q}_2, \qquad \boldsymbol{F}_{U,r} = \tilde{Q}_2^\top \boldsymbol{F}_U \qquad \boldsymbol{F}_{p,r} = \tilde{Q}^\top \boldsymbol{F}_p$$

With this notation, the final reduced system for the solution of the Stokes problem writes:

$$\begin{pmatrix} A_r & B_r^\top \\ B_r & C_r \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \mathbf{U}_r \\ P_r \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \boldsymbol{F}_{U,r} \\ \boldsymbol{F}_{p,r} \end{pmatrix} \tag{13}$$

where

$$\mathbf{U}_r = \left[\mathbf{U}_I^1, \mathbf{U}_\gamma^1, \mathbf{U}_I^2\right]^\top, \qquad P_r = \left[P_I^1, P_\gamma^1, P_I^2\right]^\top$$

The domain decomposition technique secures a good compromise between reducing the number of elements in the final film thickness and preserving a structured mesh. Thus, it helps optimizing the mesh by refining it locally only in the flow regions or in the directions where refinement is needed. Moreover, this technique improves the condition number of the global matrix compared with the classical mono-domain technique.

3.4. Numerical computation of the interface steady-state solution

The interface-tracking is used in the computation of flow problems with unknown interface. It requires meshes that 'track' the interface and are updated at each iteration [21]. To this end, the interface is represented by several connected marker points $h_1 \cdots h_N$ across the stretching direction. At steady-state, these marker points must satisfy the kinematic interface Equation (4). For a given set of parameters $h_1 \cdots h_N$, a flow domain is defined and meshed using the domain decomposition technique previously mentioned. Stokes problem is then solved in the flow domain using the mixed formulation and velocity, and pressure fields are computed according to the boundary conditions previously mentioned. This allows to compute the discrete function $\boldsymbol{F}$ defined by

$$\boldsymbol{F}(h_1, \cdots, h_N) = \begin{bmatrix} f_1(h_1, \cdots, h_N) \\ \vdots \\ f_N(h_1, \cdots, h_N) \end{bmatrix} \quad \text{with} \quad f_i(h_1, \cdots, h_N) = -u_h(x_i, h_i) \, \frac{\partial h}{\partial x}(x_i) + v_h(x_i, h_i)$$

The set of N unknowns representing the steady interface are computed through solving the following set of N equations

$$\boldsymbol{F}(h_1, \cdots, h_N) = 0 \tag{14}$$

This is achieved using an iterative process, which is initialized according to the analytical 1D model solution mentioned previously. To improve this initialization, several iterations allow to get closer to the shape of the steady interface. These iterations consist in computing h by solving the following 1D equation:

$$-\frac{d}{dx}\left(\frac{dh}{dx}\right) = -\frac{d}{dx}\left(\frac{u(x, h(x))}{v}\right) \quad \text{with} \quad h(0) = h_0 \quad \text{and} \quad h(L) = \frac{h_0}{Dr}$$

Finally, Equation (14) is solved numerically by successive Newton-Raphson iterations. At the beginning of each iteration, the interface is updated according to the computed velocity field, and the gradient of the function $\boldsymbol{F}$ is numerically computed using the approximation (for a small enough value of δh):

Copyright © 2015 John Wiley & Sons, Ltd.

DOI: 10.1002/fld

$$\frac{\partial f_i}{\partial h_j}(h_1, \cdots, h_N) = \frac{1}{\delta h}\left(f_i(h_1, \cdots, h_j + \delta h, \cdots, h_N) - f_i(h_1, \cdots, h_j, \cdots, h_N)\right)$$

This strategy is relatively precise, but unlike the capturing strategy, it is unable to describe transient evolution of the interface.

In the following, the steady interface is denoted by $y = \overline{h}(x)$.

4. LINEAR STABILITY ANALYSIS OF THE INTERFACE STEADY-STATE SOLUTION

4.1. Linearized equations

Once the interface steady-state solution is computed, the linear stability method is used to investigate its stability, which allows determining the onset of Draw resonance instability. When considering an unsteady flow, the kinematic interface Equation (4) becomes

$$\frac{\partial h}{\partial t} = F(h) \tag{15}$$

Because the only equation including time-derivatives is the dynamic interface Equation (15), stability of the steady state $\overline{h}$ is studied by introducing a small perturbation as follows:

$$h(t, x) = \overline{h}(x) + e^{\Lambda t}\,\widehat{h}(x) \tag{16}$$

where Λ is an eigenvalue and $\widehat{h}(x)$ an eigenfunction. Inserting this expression into the dynamic interface equation and neglecting second-order terms, gives the following linearized equation:

$$\nabla_h F(\overline{h})\,\widehat{h} = \Lambda\,\widehat{h} \tag{17}$$

Thus, the stability problem is reduced to a classical eigenvalue problem as described in Section 2. The gradient of function $\boldsymbol{F}$ is computed numerically using a similar strategy to the one considered in the case of Newton-Raphson iterations, and the N eigenvalues are then computed using a classical `Scilab` routine. The steady-state interface is stable only if the real part of the leading eigenvalues (two complex conjugate eigenvalues) is negative. As a test, numerical results were compared with those of the classical membrane model by imposing a slipping condition on Γ_1 and considering a large stretching distance and the classical critical Draw ratio $Dr_c = 20.2$ was obtained.

4.2. Case study: $\frac{L}{2h_0} = 2$ *and* $Dr = 18$

In this section, some results are shown for a specific case $\left(\frac{L}{2h_0} = 2 \text{ and } Dr = 18\right)$. Figure 5 shows a scaled image for the steady-state interface.

Figures 6 and 7 show the velocity iso-values in the stretching direction and the pressure distribution. These figures prove that the membrane assumption becomes valid at the final part of the film. This finding justifies the usefulness of block-structured meshes. Besides, the die exit singularity is revealed in Figure 7.

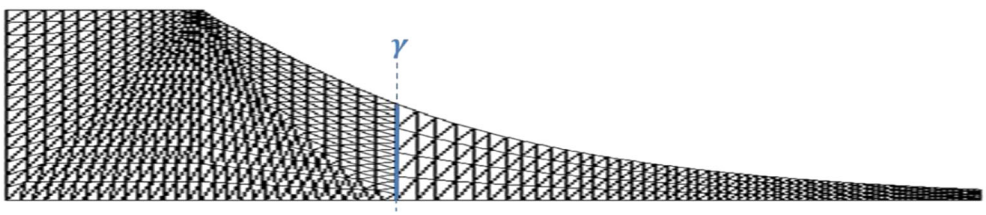


Figure 5. Steady-state interface $\left(\frac{L}{2h_0} = 2 \text{ and } Dr = 18\right)$.

Copyright © 2015 John Wiley & Sons, Ltd.

DOI: 10.1002/fld

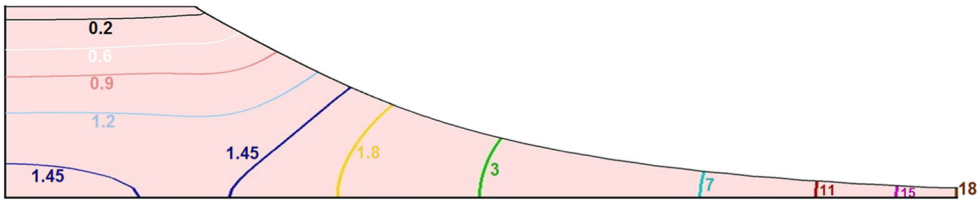


Figure 6. Iso-values of the velocity component in the stretching direction.

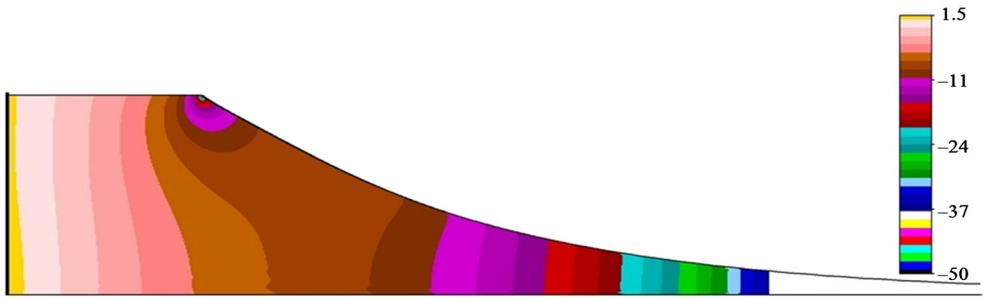


Figure 7. Pressure field inside the flow domain.

Linear stability method has been used to investigate the stability of the computed steady-state interface. The obtained leading eigenvalues are $\Lambda = -1.89 \pm i\ 11.1$, and the steady-state interface is thus stable in this case.

5. DIRECT NUMERICAL SIMULATION

5.1. Extended domain and interface capturing strategy

The polymer flow domain Ω is extended to the air flow domain in the neighborhood of the air-polymer interface. The whole domain Ω_e is represented on Figure 8. The subdomain $\Omega_e \backslash \Omega$ is occupied by a fictitious Newtonian fluid of very low viscosity η_a. The viscosity η_a can be chosen as the air viscosity, but the key point is that $\eta_a/\eta_p \ll 1$ and the balance Equation (2) ensures that the normal stress vanishes on the air-polymer interface $\mathcal{H}$. Boundary conditions for the Stokes problem are extended to the new domain as follows (Figure 8):

- On Γ_4, the same boundary condition is extended to the air phase: the x-component of the velocity is imposed ($u = u_L$).
- On Γ_5, a free-surface condition is considered which means that normal stress vanishes: $\boldsymbol{\sigma}\overrightarrow{n} = 0$.
- On Γ_6, a non slip condition is considered meaning that velocity components vanish ($u = 0$ and $v = 0$).

The Stokes problem (1)–(3) is now solved on Ω_e and combined with a convection equation for a level-set function (see [22]). If $\phi(x,t)$ and E denote the distance function to $\mathcal{H}$ and a truncation thickness, respectively, the level-set function α is defined as follows:

$$\alpha = \begin{cases} \dfrac{2E}{\pi} & \text{for } \phi > E \\ \dfrac{2E}{\pi}\sin\left(\dfrac{\pi}{2E}\phi\right) & \text{for } |\phi| < E \\ -\dfrac{2E}{\pi} & \text{for } \phi < -E \end{cases} \tag{18}$$

Copyright © 2015 John Wiley & Sons, Ltd.

DOI: 10.1002/fld

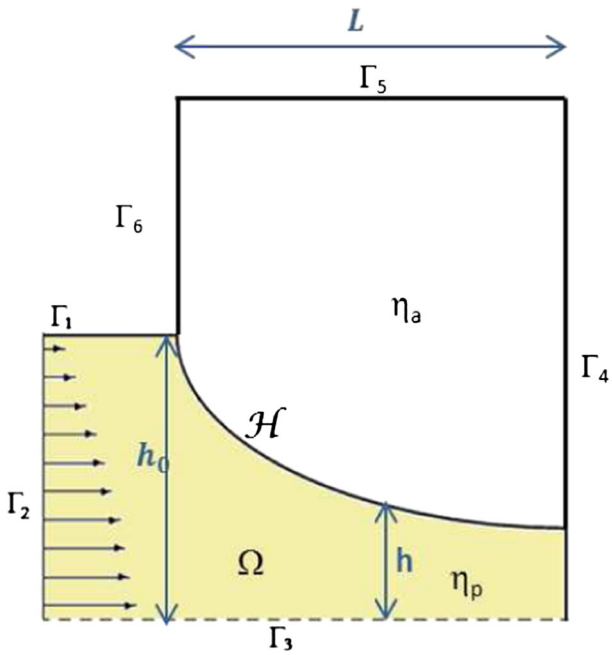


Figure 8. Geometry of the extended 2D flow domain.

Function α satisfies (see [23]) the convected level-set equation:

$$\begin{cases} \dfrac{\partial \alpha}{\partial \alpha} + \mathbf{u}.\nabla\alpha + \lambda\, s(\alpha)\left(|\nabla\alpha| - \sqrt{1-\left(\dfrac{\pi}{2E}\alpha\right)^2}\right) = 0 \\ \alpha(t=0,x) = \alpha_0(x) \end{cases} \tag{19}$$

where the sign function $s(\alpha)$ is defined as follows:

$$s(\alpha) = \begin{cases} 1 & \text{if}\, \alpha > 0 \\ 0 & \text{if}\, \alpha = 0 \\ -1 & \text{if}\, \alpha < 0 \end{cases} \tag{20}$$

In this equation, λ is a coupling constant depending on time and spatial discretisations (typically $\lambda \simeq h_K/\Delta t$ where h_K is the mesh size and Δt the time step). Following [24] and setting

$$a = s(\alpha)\frac{\nabla\alpha}{|\nabla\alpha|} \quad \text{and} \quad g(\alpha) = \sqrt{1-\left(\frac{\pi}{2E}\alpha\right)^2},$$

a rearranged form of (19) leads to the following simple convection equation:

$$\begin{cases} \dfrac{\partial \alpha}{\partial t} + (\mathbf{u} + \lambda a)\cdot\nabla\alpha = \lambda s(\alpha) g(\alpha) \\ \alpha(t=0,x) = \alpha_0(x) \end{cases} \tag{21}$$

Compared with [25] and [26], this method is specific because we intend to restrict all the levelsets to the interface, thus avoiding different reinitialization of the distance function all over the domain and reducing computational effort. Moreover, this particular filtering of the levelset function allows

Copyright © 2015 John Wiley & Sons, Ltd.

DOI: 10.1002/fld

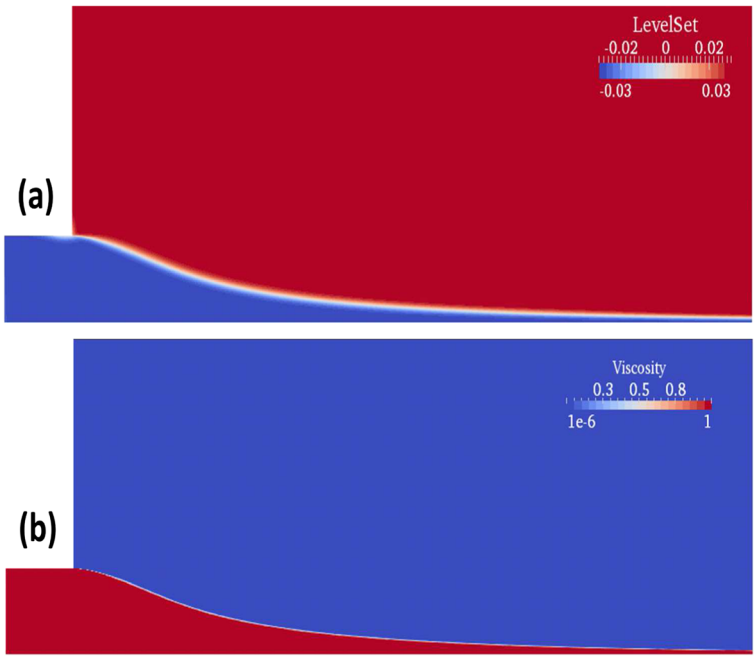


Figure 9. (a) The level-set function; and (b) the mixed viscosity.

to embed the reinitialization steps automatically in the transport equation. At this point, the Stokes problem (1)–(3) is coupled with Equation (21) through the expression of viscosity. This is classically carried out using a linear interpolation for the dynamic viscosity as follows:

$$\eta = H(\alpha)\eta_p + (1 - H(\alpha))\eta_a \tag{22}$$

where H is a smoothed Heaviside function given by

$$H(\alpha) = \begin{cases} 1 & \text{if } \alpha > \varepsilon \\ \frac{1}{2}\left(1 + \frac{\alpha}{\varepsilon} + \frac{1}{\pi}\sin\left(\frac{\pi\alpha}{\varepsilon}\right)\right) & \text{if } |\alpha| \leqslant \varepsilon \\ 0 & \text{if } \alpha < -\varepsilon \end{cases} \tag{23}$$

Here, ε is a small parameter (the interface thickness) chosen such that if h_I is the mesh size in the normal direction to the interface, $\varepsilon \sim h_I$. The use of linear interpolation for the dynamic viscosity is advised for an interface orthogonal to the flow. However, this can lead to inaccurate results for an interface parallel to the flow. In order to handle the abrupt changes at the interface, the following harmonic mean formulation has been used:

$$\frac{1}{\eta} = \frac{H(\alpha)}{\eta_p} + \frac{1 - H(\alpha)}{\eta_a} \tag{24}$$

5.2. *Numerical strategy*

The Stokes problem (1)–(3) is solved using the mixed finite elements strategy $\left(\mathcal{P}_1^+ - \mathcal{P}_1\right)$ described in Section 3. As Equation (21) is an advection equation it is necessary to use upwind scheme. A finite-element formulation based on the classical Streamline upwind Petrov-Galerkin (SUPG) method able to control the spurious oscillations of the advection dominated regime is used (see [27]). The finite-element formulation of Equation (21) can be written as follows:

Copyright © 2015 John Wiley & Sons, Ltd.

DOI: 10.1002/fld

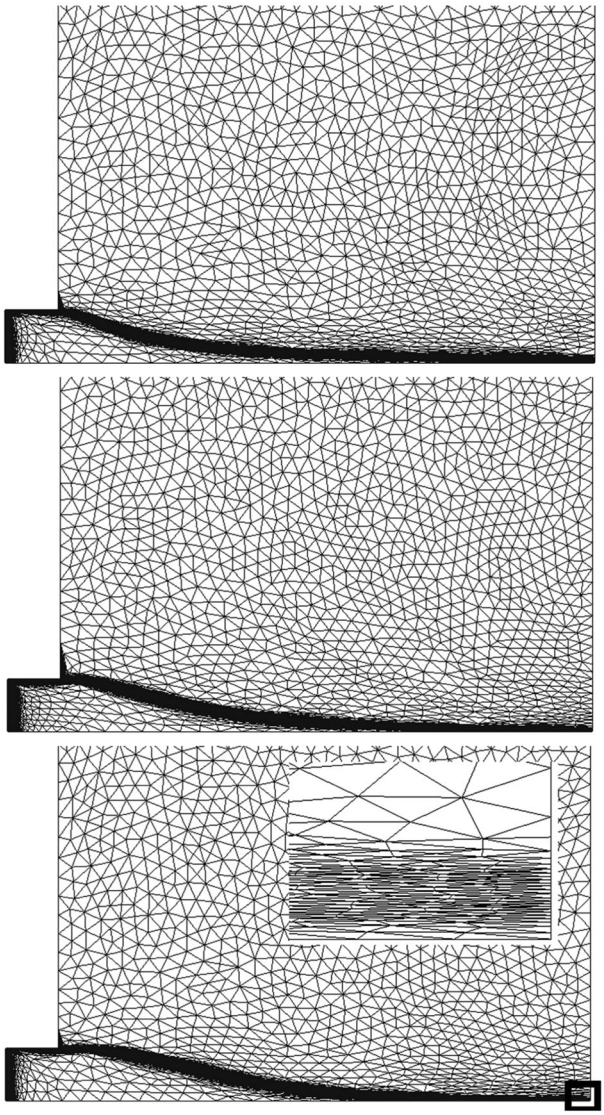


Figure 10. Anisotropic adapted meshes at different time steps.

Find $\alpha_h \in V_h$ such that $\forall w_h \in W_h$

$$\int_\Omega \left(\frac{\partial \alpha_h}{\partial t} + (\mathbf{u}_h + \lambda a_h) \cdot \nabla \alpha_h - \lambda s(\alpha_h) g(\alpha_h) \right) w_h +$$

$$\sum_{e=1}^{n_{el}} \int_{\Omega^e} \tau_{SUPG} \left(\frac{\partial \alpha_h}{\partial t} + (\mathbf{u}_h + \lambda a_h) \cdot \nabla \alpha_h - \lambda s(\alpha_h) g(\alpha_h) \right) (\mathbf{u}_h + \lambda a_h) \cdot \nabla w_h \tag{25}$$

$$= 0$$

where V_h and W_h are standard test and weight finite-element spaces for the $\mathcal{P}_1$ interpolation. The classical Galerkin terms are represented by the first integral, whereas the element-wise summation, tuned by the stabilization parameter τ_{SUPG}, represents the SUPG term needed to control the convection in the streamline direction. More detail about the use of stabilized finite-element method for the convection equation and the evaluation of this parameter on anisotorpic meshes can be found in [28].

Copyright © 2015 John Wiley & Sons, Ltd.

DOI: 10.1002/fld

Finally, the last step consists in deriving the anisotropic adapted mesh that describes very accurately the interface between the polymer and the surrounding air. Indeed, anisotropic mesh adaptation allows to capture scale heterogeneities in particular when simulating multiphase flow problems: the discontinuities and high gradients of the solution are captured with good accuracy for a reasonable number of elements. This challenging construction of the anisotropic mesh adaptation can be conveyed to that of constructing an appropriate mesh tensor by means of a discretization error analysis. All details of the algorithm can be found in [28].

Therefore, we start by applying an a posteriori error estimator based on the length distribution tensor approach and the associated edge based error estimator to ensure an accurate capture of the discontinuities and an oscillation-free solution. The key idea of the approach is to produce extremely stretched and highly directional elements under the constraint of a fixed number of nodes. All boundaries and evolving inner interfaces are then captured automatically in particular for high-viscosity ratio. Figure 9 shows the modified level-set function and the distribution of the viscosity along the polymer-air interface.

Snapshots of the adapted mesh at different time steps are depicted in Figure 10. As expected, the algorithm progressively detects and refines the mesh at the moving polymer-air interface, leading to a well respected shape in terms of curvature, angles, and so on. The zoom at the take up position illustrates the sharp capture of the interface and the right orientation and deformation of the mesh elements (longest edges parallel to the boundary). This yields a great reduction of the number of triangles and consequently a reduction in the computational cost.

Moreover, the anisotropic mesh adaptation takes into account only the levelest function because the background mesh remains isotropic. Remeshing is carried out every 10 time steps, and the solution is linearly interpolated on the new mesh. It is worth mentioning that the large width of the interface is related to the interface thickness and also the use of a size gradation to ensure a smooth transition, which is needed in the case of monolithic formulations.

6. COMPARISON OF THE TWO NUMERICAL METHODS

The two proposed numerical methods are compared in a specific case: $A = \dfrac{L}{2h_0} = 5$ and $Dr = 10$. These strategies are compared on the basis of the obtained steady-state interfaces and also with respect to stability.

Figure 11(a) compares the shape of the interface at the steady-state: both methods are able to converge to the same solution. This is also confirmed by comparing the velocity profiles along the x-axis (Figure 11(b)).

The interface stability is investigated using the linear stability method and direct simulation.

In the case of tracking strategy, linear stability analysis results in the following leading eigenvalues $\Lambda = -1.15 \pm i\ 10.39$, which means that the process is stable.

In the case of capturing strategy, the transient stability analysis is performed by introducing a small perturbation to the steady-state solution. The transient response due to this perturbation is

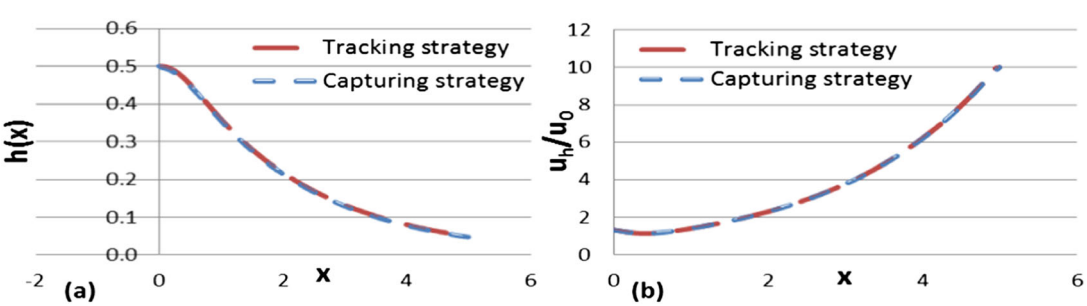


Figure 11. (a) The shape of the interface, (b) The velocity profile along the x-axis.

Copyright © 2015 John Wiley & Sons, Ltd.

DOI: 10.1002/fld

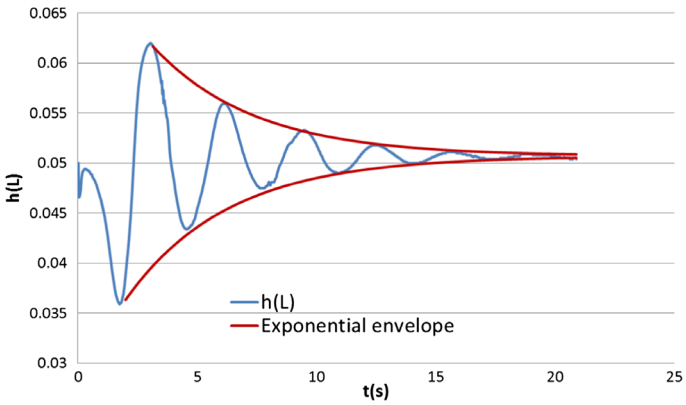


Figure 12. Transient stability analysis.

monitored by the direct simulation, taking into account both domains, the polymer fluid and the surrounding air. The evolution of the final film thickness $h(L)$ is depicted in Figure 12.

Convergence to a steady value of the final thickness is observed within a precision of 1%, and this shows that the numerical method is reasonably conservative. The real part of the leading eigenvalues is estimated from the exponential envelope of the transient response, while its imaginary part is estimated from the time period of oscillations. Leading eigenvalues $\Lambda = -1.18 \pm i\ 9.88$ are obtained for the same conditions, which is very close to the leading eigenvalues computed with the tracking strategy.

This finding shows that both strategies are able to give the same stability results using two different stability analysis techniques.

7. NUMERICAL EXPERIMENTS

Because the tracking strategy is faster and easier to implement, it is used in the following to investigate the process stability.

7.1. Steady-state interface evolution with the shape factor $A = \dfrac{L}{2h_0}$

Figure 13 shows the shape of the steady state interface obtained for a Draw ratio of 18 and two different shape factors. In the case of $A = 15$, a 4% die swelling is observed. When a planar Poiseuille flow is considered and no Draw ratio is imposed, a Newtonian die swell of about 19% is numerically established [16]. However, by increasing the Draw ratio, die swell decreases.

In the case of $A = 5$, which means a stretching distance three times shorter, no die swelling is observed. Therefore, die swelling is much influenced by the stretching distance and it vanishes for low values of A.

7.2. Interface stability as a function of the shape factor $A = \dfrac{L}{2h_0}$

A Draw ratio of 18 is considered and the interface stability is investigated for three different shape factors. Table I shows the dominant eigenvalues Λ obtained in each situation. The case $A = 2$ is very stable because the real part of its dominant eigenvalues is negative and relatively far from zero. Besides, the case $A = 5$ is stable, but it is just at the limit of stability. Thus, reducing the stretching distance (at a fixed Draw ratio) improves significantly the stability of the process. This result confirms experimental studies (performed at Bostik company) showing that when the stretching distance is of the same order of magnitude as the die gap, the process becomes more stable at very high Draw ratios.

In the case $A = 15$, the real part of the dominant eigenvalue is close to zero. This means that the critical Draw ratio is close to 18. Because its shape factor is relatively high, this result can be

Copyright © 2015 John Wiley & Sons, Ltd.

DOI: 10.1002/fld

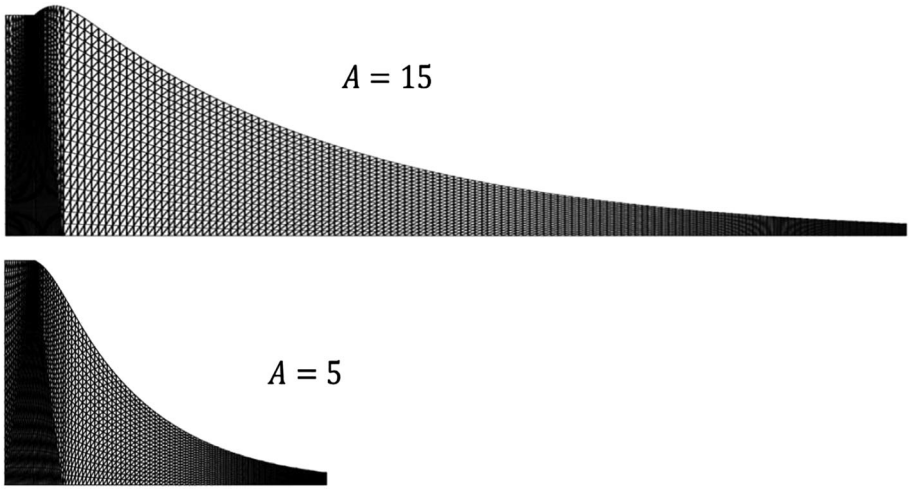


Figure 13. The shape of the interface for different shape factors.

Table I. The dominant eigenvalues for different shape factors.

$Dr = 18$	$A = 15$	$A = 5$	$A = 2$
Λ	$0.06 \pm i11.94$	$-0.27 \pm i12.03$	$-1.89 \pm i11.1$

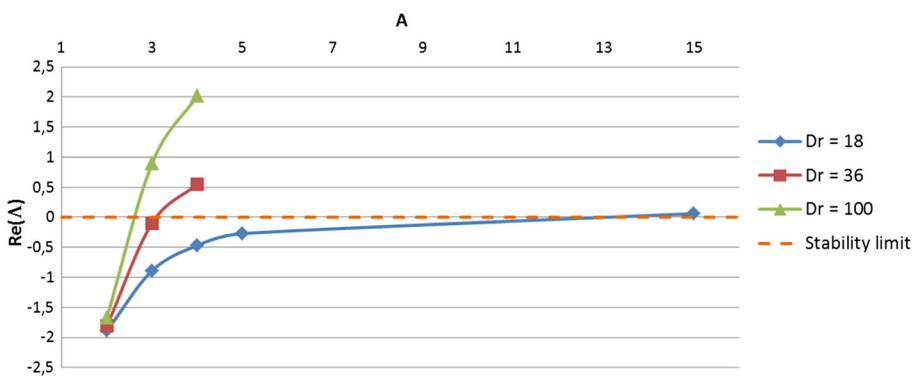


Figure 14. Interface stability for different Draw ratios and different shape factors.

compared with the critical Draw ratio $Dr_c = 20.2$ given by a constant width membrane model. The difference between the two solutions is not surprising, because a different set of boundary conditions is used in each model. In the membrane model, a plug flow is considered at die exit, which does not account for the flow inside the die. Nevertheless, the two critical Draw ratios have the same order of magnitude.

7.3. Interface stability as a function of the Draw ratio

Three different Draw ratios are considered and interface stability is investigated as a function of the shape factor $A = \dfrac{L}{2h_0}$. Figure 14 shows the evolution of the real part of the dominant eigenvalues Λ as a function of the shape factor A. For all Draw ratios, the real part of the dominant eigenvalues increases with the shape factor A. For instance, for a low Draw ratio $Dr = 18$, the real part of the dominant eigenvalues remains negative until important stretching distances: It becomes slightly positive at $A = 15$. However, for a higher Draw ratios ($Dr = 36$ and $Dr = 100$), the real part of the dominant eigenvalues becomes positive for a shape factor A of the order of 3. By reducing

Copyright © 2015 John Wiley & Sons, Ltd.

DOI: 10.1002/fld

the shape factor to $A = 2$, the real part of the dominant eigenvalues becomes significantly negative and of the same order of magnitude for all Draw ratios, which means that the process becomes very stable regardless of the Draw ratio.

8. CONCLUSION

Interface tracking method and direct numerical simulation give similar results for the stationary interface of a Newtonian film stretching process. The tracking strategy coupled with a domain decomposition meshing technique makes it possible to apply an efficient linear stability method to determine the stability of the process. The direct numerical capturing method gives similar results, which validates the tracking method. Nevertheless, it necessitates important computation resources, and it is thus difficult to use it for a systematic investigation of the extrusion and stretching conditions. This has been carried out with the tracking method to investigate cast film processing conditions. For large stretching distances, the real part of a pair of complex conjugate eigenvalues becomes positive for a critical Draw ratio whose value is very close to the critical Draw ratio of the membrane model. When reducing the stretching distance, the real part of the dominant eigenvalues decreases, which corresponds to a marked stabilizing effect, and this has been observed experimentally, on a pilot cast film line at Bostik company, by reducing the distance between the extrusion die and the chill roll. For further developments, more realistic viscoelastic constitutive equations need to be considered.

ACKNOWLEDGEMENTS

The authors would like to thank BOSTIK SA and TOTAL GROUP for technical and financial support.

REFERENCES

1. Agassant JF, Avenas P, Sergent JP, Vergnes B, Vincent M. *Mise en Forme Des Polymères* (4th edn). Lavoisier: Cachan, 2014.
2. Barq P, Haudin JM, Agassant JF, Roth H, Bourgin P. Instability phenomena in film casting process. *International Polymer Processing* 2014; **5**(4):264–271.
3. Demay Y, Agassant JF. An overview of molten polymer drawing instabilities. *International Polymer Processing* 2014; **29**(1):128–139.
4. Pearson J. *Mechanical Principles of Polymer Melt Processing*. Pergamon Press: London, 1966.
5. Fisher R, Denn M. Finite amplitude stability and draw resonance in isothermal melt spinning. *Chemical Engineering Science* 1975; **30**:1129–1134.
6. D'Halewyn S, Agassant JF, Demay Y. Numerical simulation of the cast film process. *Polymer Engineering and Science* 1990; **30**:335–340.
7. Silagy D, Demay Y, Agassant JF. Stationary and stability analysis of the film casting process. *Journal of Non-Newtonian Fluid Mechanics* 1998; **79**(2-3):563–583.
8. Debbaut B, Marchal J, Crochet M. Viscoelastic effects in film casting. *Zeitschrift fur Angewandte Mathematik und Physik* 1995; **46**:5679–5698.
9. Kim J, Lee J, Shin D, Jung H. Transient solutions of the dynamics of film casting process using a 2d viscoelastic model. *Journal of Non-Newtonian Fluid Mechanics* 2005; **132**:53–60.
10. Shin D, Lee J, Kim J, Jung H. Transient and steady-state solutions of 2D viscoelastic nonisothermal simulation model of film casting process via finite element method. *Journal of Rheology* 2007; **51**:393–407.
11. Souli M, Demay Y, Habbal A. Finite-element study of the draw resonance instability. *European Journal of Mechanics - B/Fluids* 1998; **12**(1):1–13.
12. Fortin A, Carrier P, Demay Y. Numerical simulation of coextrusion and film casting. *International Journal for Numerical Methods in Fluids* 1995; **20**:31–57.
13. Yeow Y. On the stability of extending films: a model for the film casting process. *Journal of Fluid Mechanics* 1974; **66**:613–622.
14. Ern A, Guermond J. *Éléments Finis: Théorie, Applications, Mise en Oeuvre*, Vol. 36. Springer: Heidelberg, 2000.
15. Arnold D, Brezzi F, Fortin M. A stable finite element for the Stokes equations. *Calcolo* 1984; **23**(4):337–344.
16. Mitsoulis E, Vlachopoulos J. Simulation of extrudate swell from long slit and capillary dies. *Polymer Process Engineering* 1984; **2**:153.
17. Cockburn B. *Discontinuous Galerkin Methods for Convection Dominated Problems*, Lecture notes of the NASA/VKI Summer School on High Order Discretization Methods in Comp. Fluid Dynamics, 1998.

Copyright © 2015 John Wiley & Sons, Ltd.

DOI: 10.1002/fld

18. Bernardi C, Maday Y, Patera A. A New Nonconforming Approach to Domain Decomposition: The Mortar Element Method. In *Non Linear Partial Differential Equations and their Applications*, Brezi H, Lions JL (eds). Pitman and Wiley: New York, 1992.
19. Ben Belgacem F. The mixed mortar finite element method for the incompressible stokes problem: Convergence analysis. *SIAM Journal on Numerical Analysis* 2000; **37**:1085–1100.
20. Canuto C, Hussaini M, Quarteroni A, Zang T. *Spectral Methods: Evolution to Complex Geometries and Applications to Fluid Dynamics*. Springer-Verlag: Berlin/Heidelberg, 2007.
21. Tezduyar T. Interface-tracking and interface-capturing techniques for finite element computation of moving boundaries and interfaces. *Computer Methods in Applied Mechanics and Engineering* 2006; **195**:2983–3000.
22. Hachem E, Francois G, Coupez T. *Stabilised Finite Element for High Reynolds Number, Les and Free Surface Flow Problems*, Navier-Stokes Equations: Properties, Description and Applications, vol. 15. Nova Science Pub Inc.: New York, 2011.
23. Sussman M, Smereka P, Osher S. A level set method for computing solutions to incompressible two phase ow. *Journal of Computational Physics* 1994; **114**:146–159.
24. Ville L, Silva L, Coupez T. Convected level set method for the numerical simulation of fluid buckling. *International Journal for Numerical Methods in Fluids* 2010; **66**:324–344.
25. Osher S, Fedkiw R. Level set methods: An overview and some recent results. *Journal of Computational Physics* 2001; **2**:453–502.
26. Sethian J. *Level Set Methods and Fast Marching Methods: Evoloving Interfaces in Computational Geometry, Fluid Mechanics, Computer Vision, and Materials Science*. Cambridge University Press: Cambridge, U.K., 1999.
27. Brooks A, Hughes T. Streamline upwind/Petrov-Galerkin formulations for convection dominated flows with particular emphasis on the incompressible Navier-Stokes equations. *Computer Methods in Applied Mechanics and Engineering* 1982; **32**:199–259.
28. Coupez T, Hachem E. Solution of high-reynolds incompressible flow with stabilized finite element and adaptive anisotropic meshing. *Computer Methods in Applied Mechanics and Engineering* 2013; **267**:65–85.

Copyright © 2015 John Wiley & Sons, Ltd.

DOI: 10.1002/fld

Étude d'un procédé innovant de contre-collage d'emballages flexibles par des colles thermofusibles

RESUME : « Revoluflex » est un procédé de contre-collage de films plastiques par l'intermédiaire d'une fine couche d'adhésif thermofusible. Dans ce procédé, l'adhésif fondu est extrudé à travers une filière plate (entrefer $\sim 1\ mm$) puis étiré dans l'air sur une très courte distance ($\sim 1\ mm$) à des taux d'étirage très importants ($Dr > 100$) et enfin déposé sur le film plastique primaire. Une pompe à vide, placée au-dessous du film extrudé, permet de stabiliser le procédé et d'empêcher l'admission de bulles d'air entre le film primaire et l'adhésif. Un film plastique secondaire est ensuite déposé sur le film primaire pour former le film complexe. En fonction des paramètres du procédé, plusieurs défauts sont observés. Par exemple, on observe dans certaines conditions des surépaisseurs périodiques dans la couche d'adhésif qui s'apparentent à une instabilité d'étirage appelée *Draw Resonance*. D'autres défauts qui correspondent plutôt à des déchirures dans le film adhésif sont observés. Ces défauts représentent un obstacle pour le développement de ce procédé innovant et donc l'enjeu de cette étude consiste à comprendre l'origine de ces défauts afin de pouvoir les supprimer ou, au moins, en différer l'apparition. Pour ce faire, ces défauts ont été caractérisés et leur apparition a été quantifiée en fonction des paramètres du procédé. De plus, la rhéologie dynamique de différentes formulations d'adhésif thermofusible a été étudiée. Finalement, des modèles de complexité croissante, tant au niveau de la description cinématique de l'écoulement que de la loi de comportement du polymère, ont été développés. Des modèles membrane Newtonien et viscoélastique à largeur constante où un différentiel de pression est appliqué entre les deux faces du film extrudé constituent une première approche théorique qui rend compte de l'effet de la pompe à vide. La méthode de stabilité linéaire a été utilisée pour prédire le phénomène d'instabilité périodique. La caractérisation rhéologique des adhésifs est d'une grande importance puisqu'elle permet de déterminer les paramètres à introduire dans les lois de comportement considérées. Notre étude a montré que les résultats de ces modèles membrane sont très influencés par les conditions initiales de l'écoulement. Comme l'hypothèse membrane n'est plus valide à de très courtes distances d'étirage, deux modèles 2D Newtonien dans l'épaisseur du film extrudé qui rendent compte de l'écoulement dans la filière ont été développés. Le premier modèle est un modèle symétrique qui ne prend pas en compte l'effet de la pompe à vide mais qui a été résolu avec deux approches différentes : une méthode de suivi d'interface couplée à la méthode de stabilité linéaire et une méthode de simulation directe par capture d'interface (méthode *Level-Set*). Nous avons montré que les deux méthodes utilisées permettent d'obtenir la même solution stationnaire et pratiquement les mêmes résultats de stabilité. Le deuxième modèle 2D est un modèle qui rend compte du différentiel de pression et qui a été résolu uniquement par une technique de suivi d'interface couplée à la méthode de stabilité linéaire. Ce modèle permet d'expliquer plusieurs phénomènes observés expérimentalement comme l'effet stabilisant du différentiel de pression et de la courte distance d'étirage. Il a également servi pour trancher entre les différentes conditions initiales testées avec le modèle membrane. De plus, il a permis de mettre en évidence un résultat paradoxal qui est l'effet stabilisant du taux d'étirage dans certaines conditions opératoires. Finalement, nous avons montré que le différentiel de pression provoque une contrainte très élevée au niveau de la lèvre inférieure de la filière, ce qui peut être une explication des déchirures observés dans la couche de colle.

Mots clés : Film, Colle thermofusible, Instabilité, Draw Resonance, Viscoélasticité, Membrane

Investigation of an innovative hot melt adhesive-Based laminating process for flexible packaging

ABSTRACT : "Revoluflex" is an innovative laminating process consisting in bonding two plastic films with a thin layer of hot melt adhesive. The molten adhesive is extruded through a flat die (gap ~ 1 mm). Then, it is stretched into the air at very high draw ratio (Dr> 100) over a very short distance (~ 1 mm) and set down on the primary plastic film. A vacuum pump, located beneath the extruded film, stabilizes the process and prevents air bubble intake between the primary and the adhesive film. A secondary plastic film is then laid on the coated primary film to give a laminate. Many defects can be observed as a function of the process parameters such as wavelike instabilities characterized by periodical sustained oscillations in the hot melt adhesive layer. This instability is similar to the "Draw Resonance" instability encountered with classical processes involving the stretching of a molten polymer. Other defects looking like small bubbles, cracks or rips in the adhesive layer are also observed. These defects hinder commercial deployment of the process. The aim of this study is there to understand their origins in order to remove them or at least delay their onset. These defects have first been characterized and their appearance was quantified according to process parameters and adhesive rheology. Several theoretical models of increasing complexity, in terms of flow kinematics and polymer rheology, have been developed. Newtonian and Viscoelastic constant width membrane models involving a pressure differential between the two sides of the extruded film represent a first theoretical approach that accounts for the vacuum pump effect. The linear stability method was used to investigate the influence of adhesive rheological behavior and process parameters on the onset of periodic instabilities. It was shown that the results were highly dependent on the initial flow conditions at die exit. Since the membrane assumption is not valid for very short stretching distances, we developed two Newtonian 2D models accounting for both extrusion and drawing steps. The first one is a symmetric model that does not account for the vacuum pump effect. It was solved using two different approaches: a front-tracking method coupled with linear stability analysis and a direct numerical simulation with interface capturing method (*Level-Set* method). It was shown that both methods lead to the same stationary solution and the same stability results. The second model accounts for the pressure differential and it was solved using only the front-tracking method. This latter 2D model enables to check the validity of the initial flow conditions of the membrane model. These models allow us to explain several experimental phenomena such as the stabilizing effect of the pressure differential and the short stretching distance. In addition, they help explaining experimental features which contradict the classical literature on drawing instabilities such as the stabilizing effect of increasing the draw ratio under certain operating conditions. Finally, they show that the pressure differential induces a high stress at the bottom lip of the extrusion die, which may clarify the cracks and rips observed in the adhesive layer.

Keywords : Film, Hot melt adhesive, Instability, Draw Resonance, Viscoelasticity, Membrane

MINES ParisTech

ParisTech
INSTITUT DES SCIENCES ET TECHNOLOGIES
PARIS INSTITUTE OF TECHNOLOGY