

# VALIDATION DES OUTILS DE MESURE DE VISCOSITE

La viscosité est un paramètre important pour mettre en évidence les modifications chimiques de la formulation. Les deux outils disponibles au laboratoire pour la mesure de viscosité sont de deux types : **premièrement**, un mélangeur à rotors que nous appellerons "malaxeur" dans la suite du texte. Les rotors, spécifique aux polymères, sont de type "roller". Le malaxeur proposé dans la littérature (20) comme un rhéomètre à cylindres coaxiaux jumeaux. **Deuxièmement**, des filières capillaires associées à un ensemble d'extrusion vis-fourreau. Ces essais devront être validés par une étude parallèle de la viscosité sur des rhéomètres de trois types : **rhéomètre rotatif plan plan, rhéomètre capillaire à filières plate, rhéomètre capillaire à filière capillaire dont le mode de fonctionnement et la validité sont discutés et comparés dans l'annexe II.**

Dans le présent chapitre, nous étudierons les variations de viscosité d'un matériau test qui présente la propriété d'avoir une viscosité qui augmente lorsque les conditions de mise en forme sont sévères. Cette étude sera réalisée avec les 2 outils susnommés. Les mesures seront comparées aux viscosités mesurées avec les 3 rhéomètres de laboratoire précités.

## 1. LE MATERIAU

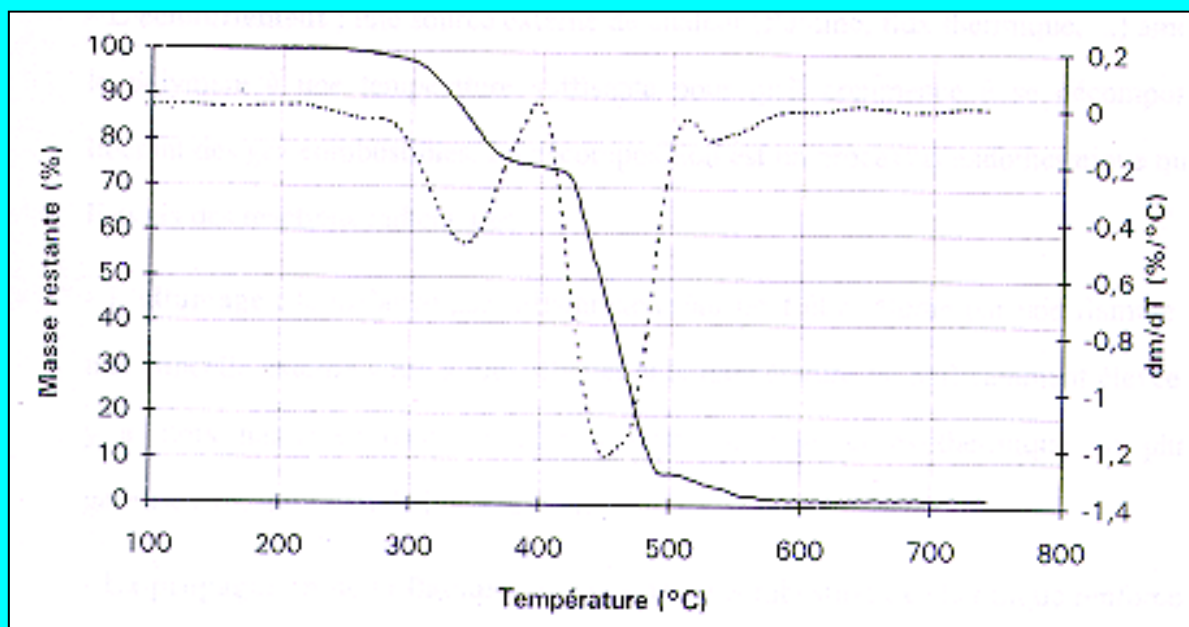
L'étude porte sur l'analyse rhéologique d'une formulation industrielle d'éthylène et d'acétate de vinyle (EVA 8 : copolymère éthylène-acétate de vinyle 8 % pondéral, Melt Index : 0.4 g/10mn) commercialisée par ELF ATOCHEM sous la référence 1005 VN 3. Ce matériau est utilisé câblerie électrique entant que gaines des câbles "basse tension" <sup>55, 56, 57</sup>. L'EVA 8 dont la densité est de 0.767 à la température de 190 °C est caractérisée par un point de fusion relativement faible de 101°C. Cette formulation industrielle contient de nombreux adjuvants (anti oxydants, anti UV).

Les propriétés "retard au feu" de ce polymère (LOI <sup>58</sup> égal à  $17.5 \pm 0.5$  %, non classé en UL 94 <sup>59</sup>) doivent être améliorées par l'ajout d'additifs à des températures de mise en forme supérieures à 215°C pour lesquelles la dégradation de l'EVA 8 est probable.

L'EVA 8 subit en effet une dégradation thermique dès 230 °C attribuée à la perte d'acide acétique <sup>60, 61, 62</sup> (figure 32). Cette étape nous intéresse particulièrement

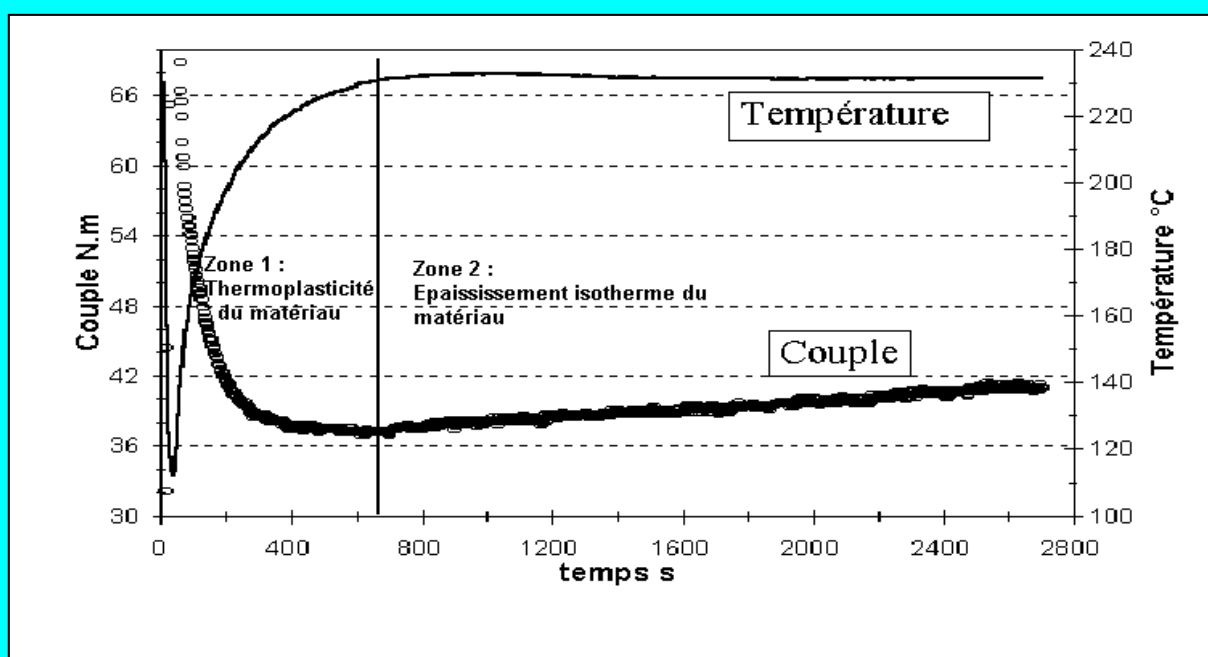
dans le cadre de cette étude puisqu'elle correspond à la zone de température de mise en forme du matériau lorsqu'il est additivé. Une deuxième étape intervient dès 400 °C avec la dégradation thermo-oxydante des esters tandis que la dernière étape à environ 520°C caractérise la dégradation oxydante des hydrocarbures résiduels <sup>63</sup>.

figure 32 : Courbes TG(—) et DTG (----) de l'EVA 8 pur sous air



La dégradation de l'EVA 8 provoque un épaississement de la formulation qui est problématique pour la mise en œuvre industrielle du matériau dans le cas d'une injection moulage par exemple (figure 33).

figure 33: Evolution du couple et de la température de l'EVA 8 avec un malaxeur à la température de 220 °C



Ces transformations chimiques à basses températures provoquent des modifications des propriétés d'écoulement de la formulation pour des températures de mise en forme supérieures à 200 °C et peuvent être mises en évidence avec un outil rhéologique adapté

## 2 LES RHEOMETRES DU LABORATOIRE

Les expérimentations sur malaxeur et ensemble d'extrusion vis-fourreau sont effectuées avec l'**unité d'entraînement PLASTI-CORDER®** de la marque BRABENDER® (annexe III). Ce système consiste en une unité dynamométrique (mesure du couple et de la vitesse de rotation) et en un boîtier de régulation de température composé de **6 régulateurs de marque Eurotherm® type 808 PID** (Proportionnelle Intégrale Dérivée). L'ensemble est couplé à une **interface PL 2000-6** commandé par un ordinateur qui permet l'acquisition en temps réel de la pression et de la température matière. Ces données sont ensuite retravaillées à l'aide des **logiciels** propre à chaque outil utilisé (**Malaxeur** : logiciel pour PL 200 n° 27187-F, **ensemble d'extrusion vis-fourreau** : programme de base pour extrudeuse avec évaluations multiples avec un Plasti-Corder® Informatique PL 2000 n° 27189-F, programme de conversion de données n° 37014-F, Température et programme de vitesse en relation avec un Plasti-Corder® Informatique PL 2000 n° 27199-F). Cette entité a été développée dans un souci de flexibilité pour mesurer les propriétés rhéologiques des thermoplastiques, thermodurcissables, élastomères ou tout autre matériau polymérisé. C'est un outil polyvalent qui permet d'entraîner les rotors du malaxeur W 350 et de la vis de l'ensemble d'extrusion 30/25D dont les caractéristiques sont reportées dans le tableau 1.

Les ensembles d'extrusion à vis unique et à vis jumelles contrarotatives (annexe III) utilisés seront considérés comme des outils et ne font l'objet d'aucune étude particulière (les généralités sur l'extrusion sont reprises dans l'annexe I).

tableau 1: Caractéristiques des outils utilisés.

<b>Le système PLASTI-CORDER®</b>			
Couple		0-400 N.m.Rad <sup>-1</sup>	
V		0-120 tours.mn <sup>-1</sup>	
Prises pour thermocouples de régulation		6 (20-350°C)	
Prises pour thermocouples matières		10 (20-750°C)	
Prises pour capteurs de pression		10 (0-700 Bar)	
<b>Le mélangeur à rotors ou malaxeur</b>			
Modèle		W 350 E	
Volume utile		370 cm <sup>3</sup>	
Poids de l'échantillon		200-250 g	
Couple maximum		400 N.m.Rad <sup>-1</sup> limité à 200 N.m.Rad <sup>-1</sup> durant les essais avec des goupilles de cisaillement	
V		0-120 tours.mn <sup>-1</sup> pour le rotor le plus rapide	
Refroidissement		air	
<b>Les rotors du malaxeur</b>			
Type		Roller	
Rapport des vitesses de rotation		3 : 2	
Longueur H		0.086 m	
Rayon R <sub>2</sub> de la chambre		0.035 m	
Rayon R <sub>1</sub> des rotors		De 0.0255 à 0.034 m	
<b>L'ensemble d'extrusion</b>			
Matériel	Marque	Type	Caractéristiques
ensemble d'extrusion vis-fourreau 30/25D	Brabender	832400	C : 0-400 N.m.rad <sup>-1</sup> limité à 200 N.m.rad <sup>-1</sup> durant les essais avec des goupilles de cisaillement L=0.75 m D=0.03 m Refroidissement par air indépendant sur chaque zone de chauffe
Filière	Brabender		Forme tubulaire
vis	Brabender	444273	Ratio de compression : 1/1 Diamètre du noyau : constant Usage : extrusion PE BASSE DENSITÉ
Capteur de pression	Gneuss	DA 150	0-689 Bar, précision : ± 0.5 % de la pleine échelle

## 2.1 LE MELANGEUR A ROTORS : "MALAXEUR"

### 2.1.1 PRESENTATION DE L'APPAREIL

Sa conception remonte au début des années 30. Son ancêtre, le Farinographe fut développé pour l'étude des pâtes farineuses. C'est un outil aisé à mettre en œuvre qui nécessite de faibles quantités de matériau ce qui explique sa large utilisation.

Comme le montrent les figures 34 et 35, il est constitué de deux chambres de mélange contiguës contenant chacune un rotor. Les deux rotors tournent en sens inverse à des vitesses différentes.

figure 34: Le concept du malaxeur <sup>65</sup>

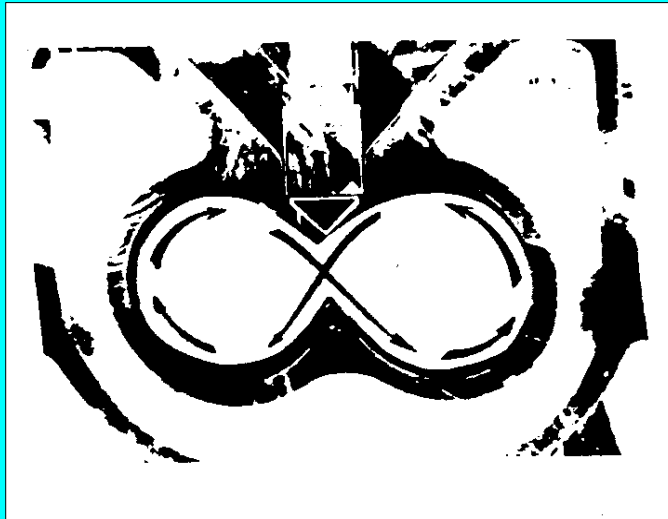
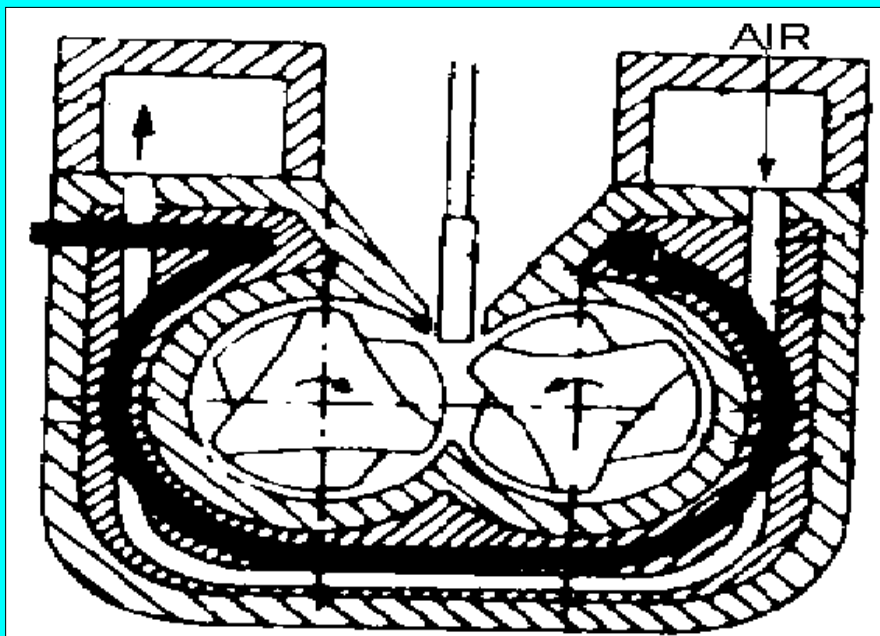


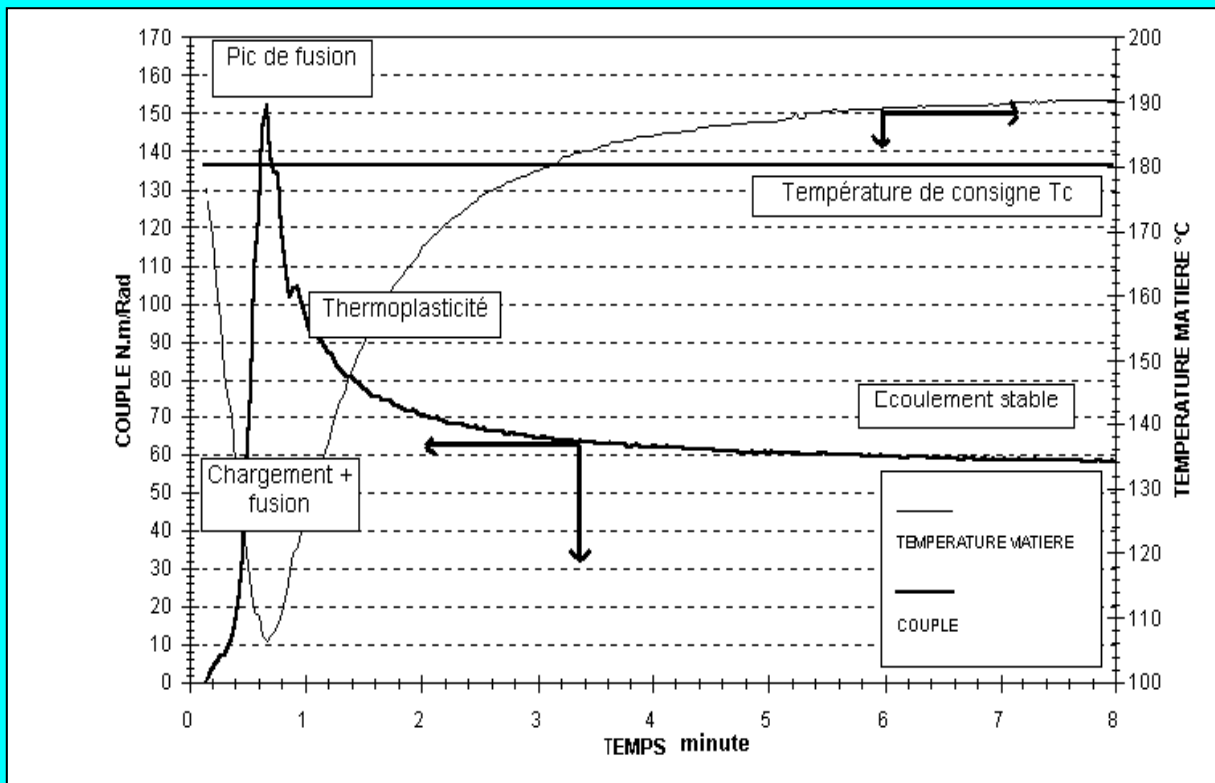
figure 35: Schéma de l'appareil, rotors de type "roller" <sup>65</sup>



Le cisaillement répété du matériau au niveau de l'entrefer rotor paroi et le broyage intensif dans l'espace rotor rotor provoque un échauffement important. Le produit, surchauffé au niveau de la paroi est entraîné vers le centre de l'appareil par le mouvement contrarotatif des deux rotors. Ceci explique le fonctionnement particulier de la régulation. Durant les essais, le chauffage de la zone centrale est coupé, avec une circulation maximale du fluide de refroidissement (air). Seules les deux faces latérales assurent un maintien du point de consigne de température par un chauffage régulier <sup>66</sup>. Il est difficile d'obtenir des conditions isothermes.

A chaque vitesse de cisaillement correspond une température matière d'équilibre qui est plus ou moins longue à atteindre (figure 36) avec, en conséquence, un risque de modification chimique du matériau. L'écart de température entre les parois (point de consigne de température) et la température matière est un indicateur du gradient thermique.

figure 36: Courbe de malaxage de l'EVA 8 à la température de 180 °C et 50 rotations.mn<sup>-1</sup>

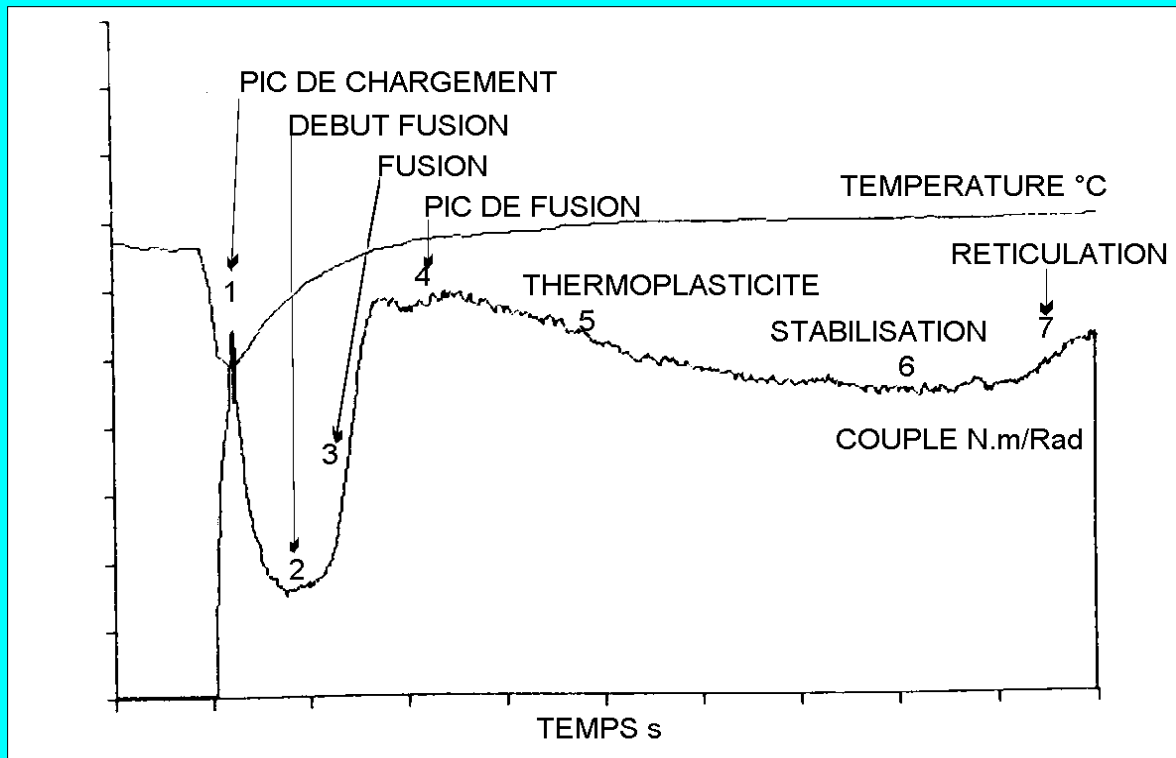


L'échantillon est soumis à un cisaillement constant tandis que le couple de rotation et la température matière sont enregistrés simultanément. Généralement, la vitesse est maintenue constante tandis que l'enregistrement suit l'évolution du couple en fonction du temps (figure 37). Le matériau (solide à 20 °C) est introduit au point – 1-, le malaxeur équivaut à ce stade à un broyeur. Le segment 2-4 correspond à la zone de fusion du matériau et il ne subsiste plus que du liquide au pic 4. La chute de couple –5- lorsque la température augmente caractérise le comportement thermoplastique du matériau. C'est à partir de ce segment qu'est calculée l'énergie d'activation en considérant la diminution des valeurs du couple moteur associée à l'augmentation de température.

Un malaxage prolongé peut provoquer une augmentation du couple en fonction du temps –7- après la phase de stabilisation –6-. Ce phénomène s'explique

par la réticulation du polymère comme l'ont montré Pravin <sup>67</sup>, Rothenpieler <sup>68</sup> et Mc Cabe <sup>69</sup>.

figure 37: Courbe classique de malaxage <sup>70</sup>



Cette augmentation de couple, caractéristique d'un thermodurcissable, traduit dans le cas de l'EVA 8 la modification chimique du matériau liée aux effets conjugués des contraintes mécaniques et thermiques <sup>71</sup>. Avec l'EVA 8, les pics de chargement et de fusion sont confondus (figure 36). En conséquence, nous étudierons uniquement les zones 5, 6 et 7 du diagramme.

En dépit de la simplicité du concept, l'interprétation des mesures en écoulement permanent lors d'un malaxage reste délicate. Les rotors ne présentent pas un rayon constant (figure 35) et la variation de l'entrefer par rapport à un point fixe de la paroi engendre une distribution des gradients de vitesse lors du mélange.

Ceci explique la complexité d'une mesure fiable de la viscosité. Le malaxeur peut être considéré comme deux rhéomètres rotatifs à cylindres coaxiaux contigus. Goodrich et Porter <sup>72</sup> ont partiellement réussi à étalonner l'appareil (rotors "roller") avec un liquide Newtonien :

$$\eta = \frac{\tau}{\dot{\gamma}} = \frac{k_1 C}{k_2 V} \quad [55]$$

V : vitesse de rotation

$K_1, K_2$  : constantes d'appareillage

tours.mn<sup>-1</sup>  
sans dimension

Les travaux de Blyler et Daane (rotors "roller") <sup>73</sup> ainsi que Lee et Purdon (rotors "Banbury") <sup>74</sup> présentent un intérêt dans la mesure où une expression similaire à la loi de puissance est obtenue <sup>75</sup> :

$$C = C_n K (V)^n \quad [56]$$

Cette relation relie les mesures traditionnelles de viscosité avec des valeurs expérimentales de malaxage. La constante  $C_n$  ( $s^{-n} \cdot \text{rotation}^{-n} \cdot \text{mn}^n$ ) dépend des caractéristiques géométriques du malaxeur. Elle est constante pour une température donnée (26) et **théoriquement indépendante du matériau** <sup>76, 77</sup>.

Le calcul de la contrainte reprend la formule [38] :

$$\tau = \frac{C}{2\pi H \left(1 + \frac{2}{3}\right) X^2} \quad [57]$$

Le rayon équivalent  $X$  (m) des rotors est introduit comme une constante expérimentale à déterminer. Cet artifice permet de contourner la géométrie complexe du rotor pour le calcul de la viscosité. La surface prise en compte intègre la somme des surfaces des deux cylindres intérieurs de longueur  $H$  et de rayon  $X$  tournant à des vitesses différentes dont le rapport est (3 : 2) pour le malaxeur utilisé.

Le calcul du gradient de vitesse reprend la formule [36] appliquée aux **matériaux non Newtoniens** :

$$\dot{\gamma} = \frac{2Y}{n \left[ 1 - \left( \frac{X}{R_2} \right)^{2/n} \right]} \times \left[ \frac{\pi V \left( 1 + \frac{2}{3} \right)}{60} \right] \quad [58]$$

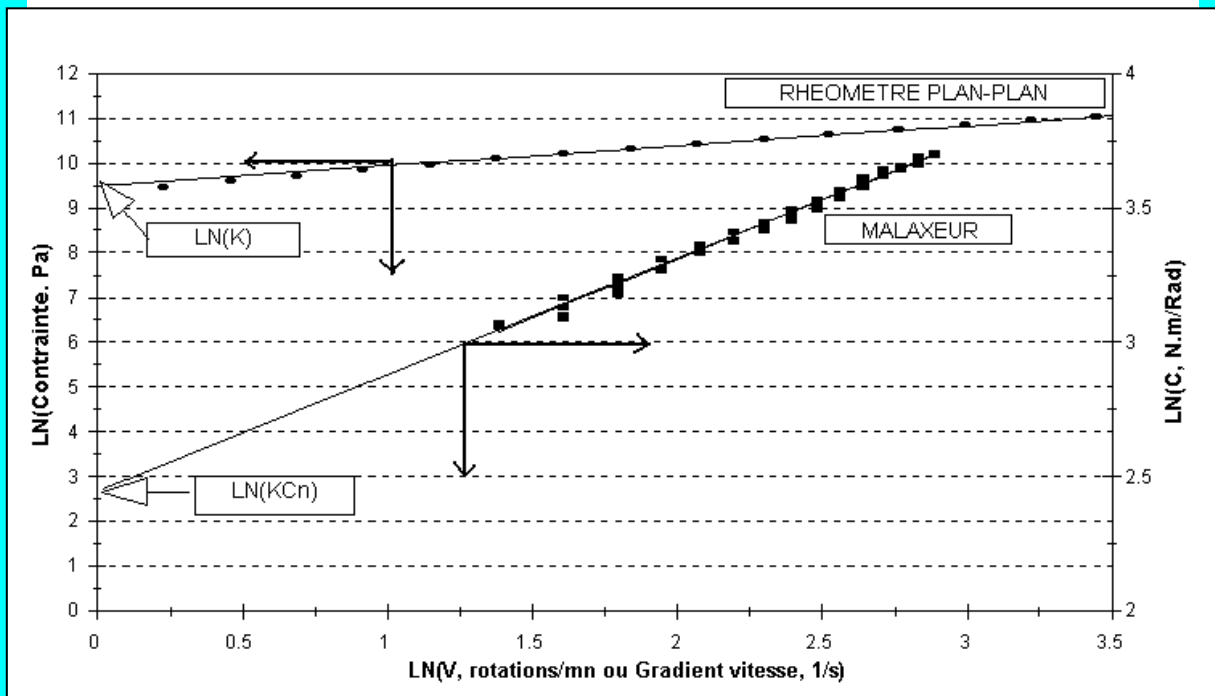
Le gradient de vitesse moyen intègre également le rapport des vitesses des rotors. Une constante expérimentale  $Y$  (sans dimension) qui corrige le gradient de vitesse doit être déterminée. En effet, les deux "rhéomètres" ne sont pas séparés, les cylindres extérieurs s'interpénétrant mutuellement. Cette constante doit être normalement plus élevée pour deux chambres indépendantes. La loi de puissance (formule [6]) peut être appliquée en remplaçant  $\tau$  et  $\dot{\gamma}$  respectivement par les expressions [57] et [58], l'expression [59], similaire à la loi de puissance est obtenue dans laquelle  $C_n$  est égale à :



$$C_n = 10.472 X^2 L \left[ \frac{0.1745Y}{n \left[ 1 - \left[ \frac{X}{R_2} \right]^{\frac{2}{n}} \right]} \right]^n \quad [59]$$

Les constantes X et Y sont calculées à partir de la valeur expérimentale de  $C_n$ . Goodrich et Porter <sup>72</sup> ont déterminé une valeur de X égale à 90.8 % de la valeur maximale de  $R_1$  tandis que Lee et Purdon <sup>74</sup> ont obtenu des valeurs de Y pour le polystyrène standard, polystyrène choc et polystyrène haute résistance au choc respectivement égales à 0.43, 0.57 et 1.07.

figure 38: variation du couple et de la contrainte en fonction du gradient de vitesse dans le cas de l'EVA 8 à 200 °C



Comme le montre la figure 38, les valeurs de K et n s'obtiennent aisément avec le rhéomètre à partir de la courbe  $\text{Ln}(\tau)$  en fonction de  $\text{Ln}(\dot{\gamma})$ .

Par analogie, les valeurs de  $KC_n$  et n sont déterminées à partir de la courbe  $\text{Ln}(C)$  en fonction de  $\text{Ln}(V)$  pour le malaxeur.

$C_n$  est déterminée à partir de K et  $KC_n$ . Il est ensuite possible de calculer X et Y par résolution de l'équation [59] avec deux séries de données n, K et  $C_n$  obtenues par exemple pour un même matériau à 2 températures de consignes différentes.

Les analogies rhéomètre-malaxeur méritent d'être discutées, en effet, les indices de pseudoplasticité obtenus avec les deux appareils doivent être identiques (26) de par la relation :

$$n = \frac{d \ln \tau}{d \ln(\dot{\gamma})} = \frac{d \ln(C)}{d \ln(V)} \quad [60]$$

En outre, les manipulations s'effectuant à vitesse de rotation constante, il est possible de calculer l'énergie d'activation  $E_{\dot{\gamma}}$  en utilisant la formule [9]. Goodrich et Porter <sup>72</sup> ont montré que la viscosité est proportionnelle au couple et à la vitesse de rotation par la relation [55] :  $C = K_3 \eta V$  ( $K_3$  : Constante d'appareillage sans dimension).

La vitesse de rotation  $V$  étant fixé, le couple est directement proportionnel à la viscosité. L'énergie d'activation s'obtient alors par une loi similaire à l'expression [9] :

$$C = C_{\dot{\gamma}} e^{E_{\dot{\gamma}}/RT} \quad [61]$$

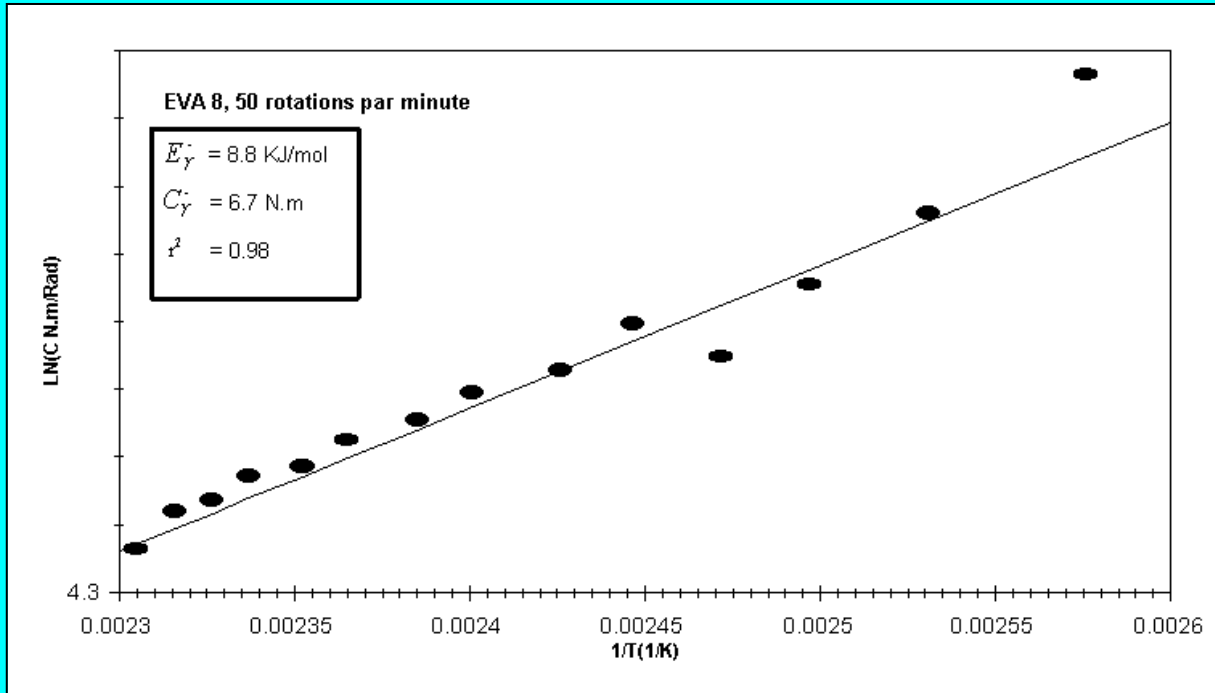
$C_{\dot{\gamma}}$  : constante

N.m.Rad<sup>-1</sup>

Comme le montre la figure 39, l'équation de la droite donnant la valeur de la pente ( $E_{\dot{\gamma}}/R$ ) et de l'ordonnée à l'origine  $\ln(C_{\dot{\gamma}})$  s'obtient à partir de la courbe  $\ln(C)$  en fonction de  $1/T$ .

Les énergies d'activation  $E_{\dot{\gamma}}$  sont calculées d'après la formule [61] avec une précision de 15 % <sup>78</sup>. En effet, les malaxeurs décrits dans la littérature sont calibrés en usine contrairement au modèle utilisé pour la réalisation des essais expérimentaux.

figure 39: variation du couple ne fonction de la température, EVA 8,  $T_c=180^\circ\text{C}$



## 2.1.2 LE MELANGE DES ECHANTILLONS : PARTIE EXPERIMENTALE

L'essai consiste à imposer à l'échantillon un gradient de vitesse isotherme. Les expérimentations sont menées sur l'EVA 8 aux températures de 160, 180, 200 et 230 °C suivant deux protocoles repris respectivement dans le tableau 2.

tableau 2 :Les protocoles de malaxage 1 et 2

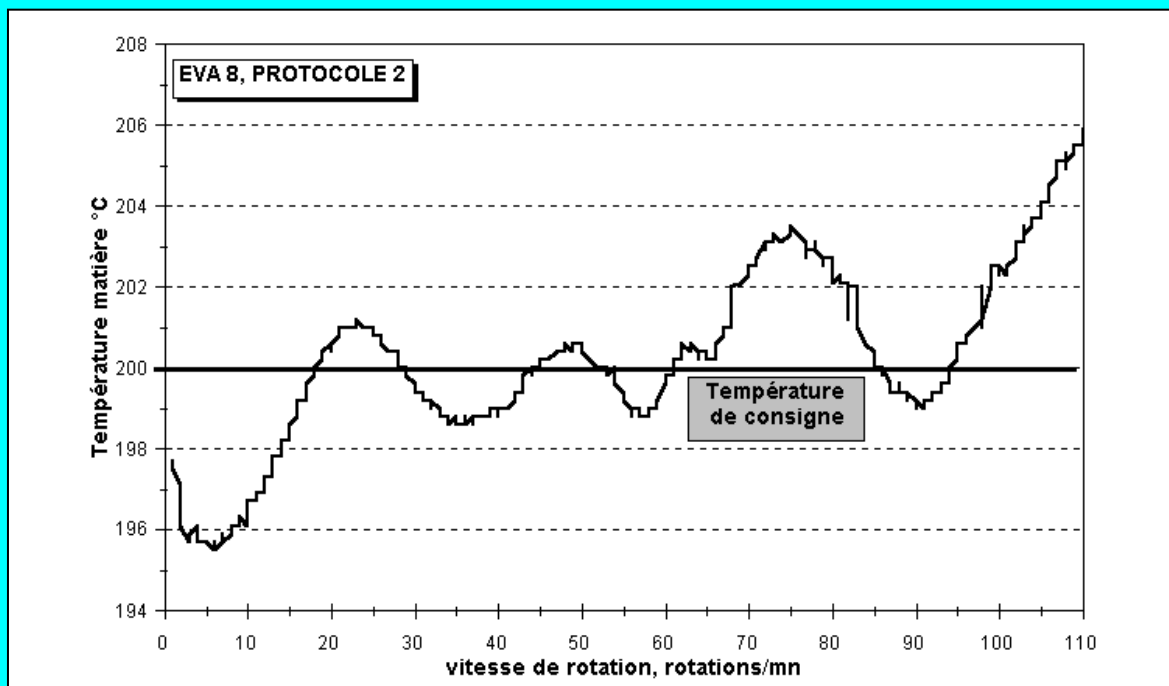
N° de protocole	1	2
Poids	230 g	230 g
I-Palier	20 mn, $V=5 \text{ tours.mn}^{-1}$	20 mn, $V=5 \text{ tours.mn}^{-1}$
II-Arrêt	non	20 mn, $V=0 \text{ tours.mn}^{-1}$
III-Gradient de vitesse	5-120 tours.mn <sup>-1</sup> pente de 4 tours.mn <sup>-1</sup>	0-120 tours.mn <sup>-1</sup> pente de 4 tours.mn <sup>-1</sup>

**Dans le cas du protocole 1**, le chargement du matériau est suivi d'un cisaillement de 20 mn (I) afin d'assurer une convection correcte pour fondre complètement le matériau. En effet, les polymères sont d'excellents isolants et les phénomènes de conduction sont négligeables. La vitesse de rotation est ensuite augmentée progressivement jusqu'à 120 tours.mn<sup>-1</sup> à raison de 4 tours.mn<sup>-1</sup> (III).

**Par contre, pour le protocole 2**, une phase supplémentaire de repos complet (II) est intercalée entre la phase de fusion (I) et le gradient de vitesse (III) afin d'évaluer l'influence de l'histoire rhéologique sur les résultats. Durant le gradient de vitesse, le cisaillement de plus en plus important provoque un échauffement du

matériau et la régulation de la température est faite en modifiant le point de consigne en cour d'expérience afin de moduler l'action du fluide de refroidissement.

**figure 40: Evolution de la température en fonction de la vitesse de rotation**



Comme le montre la figure 40, l'inertie de la régulation entraîne une variation relativement importante de la température par rapport à son point de consigne (inférieure ou égale à 3 % en relatif). Cependant, avant l'échauffement trop brutal qui apparaît aux vitesses de rotation élevées, la variation absolue de la température de  $\pm 4$  °C correspond à une variation relative inférieure à 1 % pour une température mesurée en degrés Kelvin. L'influence de cette variation de température est donc faible pour le calcul de l'énergie d'activation.

La température d'essai considérée correspondra à la moyenne des températures enregistrées pendant la manipulation. Les études sont généralement arrêtées avant d'atteindre la vitesse finale, la régulation de température devenant inopérante à partir de 100-110 rotations.mn<sup>-1</sup> avec une augmentation irréversible de la température. Six essais seront réalisés avec chaque protocole.

Les énergies d'activation  $E_k$  et  $E_{\dot{\gamma}}$  seront calculées respectivement d'après les expressions [7] et [10].

Le malaxage est une opération discontinue se décomposant en trois étapes successives : le chargement, l'expérimentation et le déchargement/nettoyage de l'appareil. La saisie des points expérimentaux coïncident avec le chargement du

malaxeur sous agitation. Un temps d'attente de 20 mn est nécessaire entre chaque essai afin de stabiliser la température à son point de consigne. Un thermocouple matière situé sous l'appareil mesure la température à la jonction des deux chambres cylindriques et aucun dispositif d'inertage n'est utilisé durant les essais.

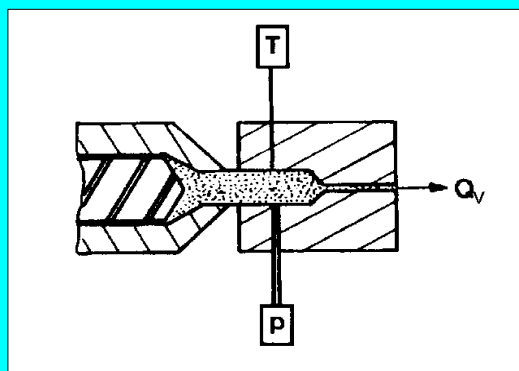
Le taux de remplissage du malaxeur a été optimisé afin d'assurer une répétabilité correcte des résultats. En effet, lors d'un remplissage optimum, la matière en fusion est en contact avec la pièce de fermeture du malaxeur, c'est à dire le piston. Lorsque celui-ci est soulevé durant la manipulation, la valeur du couple doit diminuer quasi-simultanément d'environ 10 à 20 %. Le poids optimal de matériau est fixé à 230 g.

## 2.2 LES MESURES RHEOLOGIQUES EN FILIERES CAPILLAIRES

### 2.2.1 PRESENTATION DE L'APPAREIL

Les essais consistent en une opération classique d'extrusion en monovis avec une filière capillaire positionnée à l'extrémité de l'extrudeuse (figure 41). Le principe du transport de matière en monovis est discuté dans l'annexe I. Le matériau est progressivement fondu lors de son transit dans l'extrudeuse constituée de quatre zones de chauffage.

*figure 41: Schéma de la filière capillaire (Brabender)*



### 2.2.2 PARTIE EXPERIMENTALE

Le principe consiste à imposer des vitesses de rotation différentes et successives avec une mesure du débit massique pour chaque palier de vitesse après stabilisation de la pression. Les essais sont menés sur l'EVA 8 à 160, 180, 200, 230, 235 °C.

La gamme de vitesse de rotation va de 2 à 120 tours.mn<sup>-1</sup> avec des paliers intermédiaires fonctions des plages de vitesses : pas de 1 pour des vitesses de rotation de 2 à 10 tours.mn<sup>-1</sup>, pas de 5 de 10 à 40 tours.mn<sup>-1</sup>, pas de 10 de 40 à 120

tours.mn<sup>-1</sup> (21 points expérimentaux). Les vitesses de rotation élevées provoquent un échauffement du matériau. La modification du point de consigne de la température permet de maintenir une variation maximale de température de  $\pm 2$  °C par rapport à celui-ci qui peut être estimée acceptable.

Les valeurs de consistance et d'indice de pseudoplasticité sont obtenues à partir de la courbe qui reprend la variation du débit volumique  $Q_v$  en fonction de la contrainte de cisaillement  $\tau$ .

Le débit volumique est accessible via la masse volumique  $\rho$  du polymère à la température de sortie de filière. La masse volumique des polymères solides varie fortement avec la température, par contre, la dilatométrie diminue une fois l'état liquide atteint c'est-à-dire au-dessus du point de fusion. **En conséquence, nous admettrons que la densité de l'EVA 8 est constante quelle que soit la température**<sup>79</sup>.

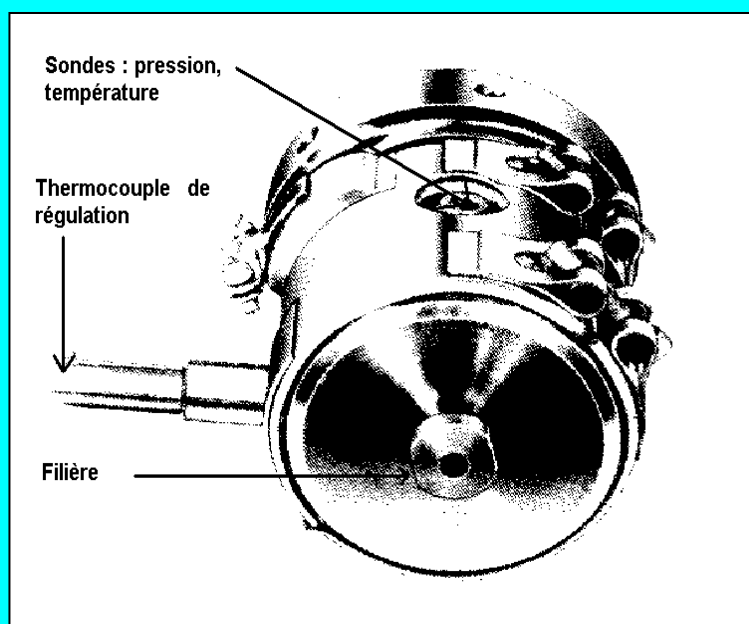
Les valeurs définitives de viscosité sont obtenues après avoir effectué les corrections de Bagley (formule [47]) et de Rabinowitsch (formule [44]). Les autres corrections proposées en rhéométrie capillaire classique seront négligées, ne pouvant être évaluées in situ durant les essais. Enfin, la précision sur les mesures est de 15 % et peut être améliorée avec un capteur travaillant sur une gamme inférieure de pression. En effet, les points sont mesurés dans les 10 premiers pourcent de l'échelle pour laquelle l'imprécision est importante.

Un capteur de pression et un thermocouple matière sont installés en vis à vis sur chaque zone de chauffe et sur la filière. Des capillaires différant par leurs caractéristiques géométriques sont adaptables sur la filière mais ceux-ci doivent toujours être démontés avant arrêt de la manipulation. En effet, les phénomènes de relaxation sont lents chez les polymères et génèrent des pressions résiduelles importantes qui faussent l'étalonnage des capteurs de pression. En conséquence, lors de la mise en chauffe de l'appareil en début de manipulation, une attente de 20 mn après atteinte du point de consigne est conseillée avant d'effectuer la calibration des capteurs à la suite de laquelle les capillaires étudiés peuvent être montés sur la filière. Cette calibration des capteurs s'effectue systématiquement à chaque démarrage de l'appareil.

La vis utilisée ne possède pas de zone de compression et effectue simplement le transport de matière. Deux types de filières ont été préalablement testés, la filière retenue n'a pas les caractéristiques d'une filière "rhéologique" mais

peut recevoir un thermocouple matière et un capteur de pression comme l'illustre la figure 42.

**figure 42: Bloc filière utilisée durant les essais**

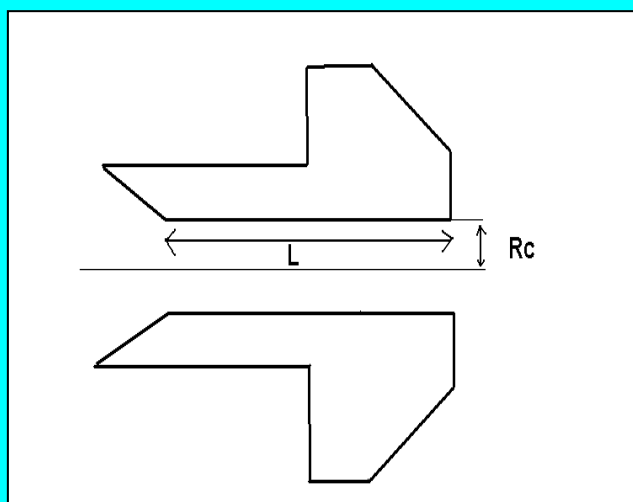


De plus, le thermocouple de régulation associé au collier chauffant permet une régulation précise de la température qui est un facteur déterminant pour la précision des mesures. Neuf filières capillaires ont été testées, les trois retenues (tableau 2) donnent des résultats comparables et possèdent une entrée en "trompette" qui diminue les effets de bouts (figure 43). La quantité de matériau requise est de 1 kg par filière testée.

**tableau 2: Descriptif des 3 filières capillaires retenues**

Filière 2	Brabender	L=0.01676 m R <sub>c</sub> =0.001505 m L/R <sub>c</sub> =11.13
Filière 3	Brabender	L=0.01787 m R <sub>c</sub> =0.00201 m L/R <sub>c</sub> =8.89
Filière 4	Brabender	L=0.01792 m R <sub>c</sub> =0.00245 m L/R <sub>c</sub> =7.31

figure 43: Coupe d'une filière capillaire



Les mesures de calibrage sont effectuées par comparaison avec trois rhéomètres : un rhéomètre rotatif plan plan, un rhéomètre capillaire associé à une filière plate et un rhéomètre capillaire associé à une filière capillaire. Les énergies d'activation relatives à la consistance ( $E_k$ ) et à la viscosité ( $E_\gamma$ ) sont calculées respectivement d'après les formules [7] et [10] pour les trois rhéomètres. Les critères de choix et le principe de fonctionnement des viscosimètres sont discutés dans l'annexe II.

### 3 RESULTATS

#### 3.1 EXPLOITATION DES RESULTATS

Comme le montrent les figures 44 et 45, **le matériau présente avec le protocole 1 une zone d'écoulement parfaitement définie** (droite de régression 1,  $r^2=0.99$ , probabilité  $\phi$  pour que l'hypothèse d'une variation linéaire soit nulle  $^{80} < 1/1000$ , figure 44) car il est partiellement déstructuré par le cisaillement sous faible contrainte (phase I du protocole).

Par contre, **l'EVA 8 présente avec le protocole 2 des zones d'écoulement parfaitement distinctes** qui sont représentées par les droites 1 et 2 de la figure 45 (zone 2 majoritaire). La phase de repos de 20 mn du protocole 2 (phase II) permet la formation d'un réseau de forces intermoléculaires qui doit d'abord être désorganisé par le cisaillement consécutif à l'augmentation du gradient de vitesse (droite de régression 1,  $r^2=0.97$ ,  $\phi < 1/1000$ , figure 45) avant d'atteindre un état d'écoulement stabilisé (droite de régression 2,  $r^2=0.97$ ,  $\phi < 1/1000$ , figure 45). **Seule la zone**



d'écoulement n°2 sera retenue pour l'exploitation des mesures avec le protocole 2.

figure 44: protocole 1,  $T_m=199.8\text{ }^\circ\text{C}$

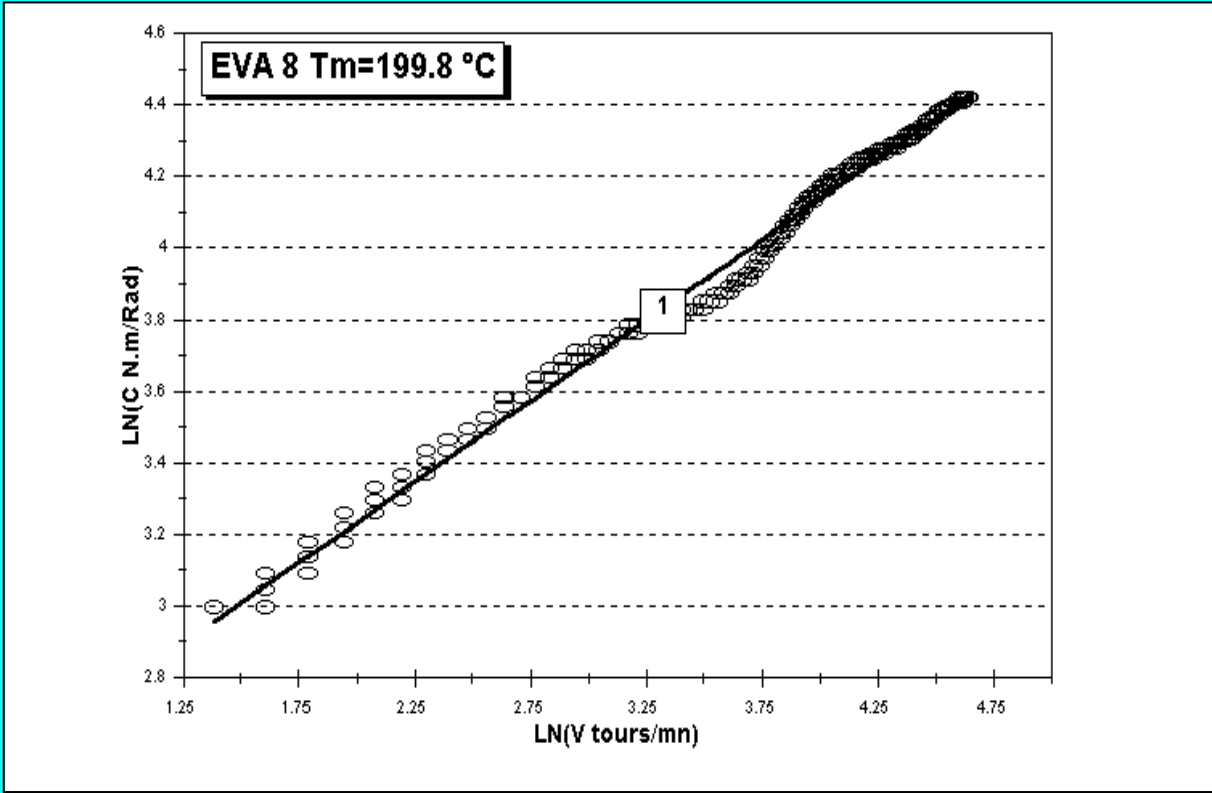
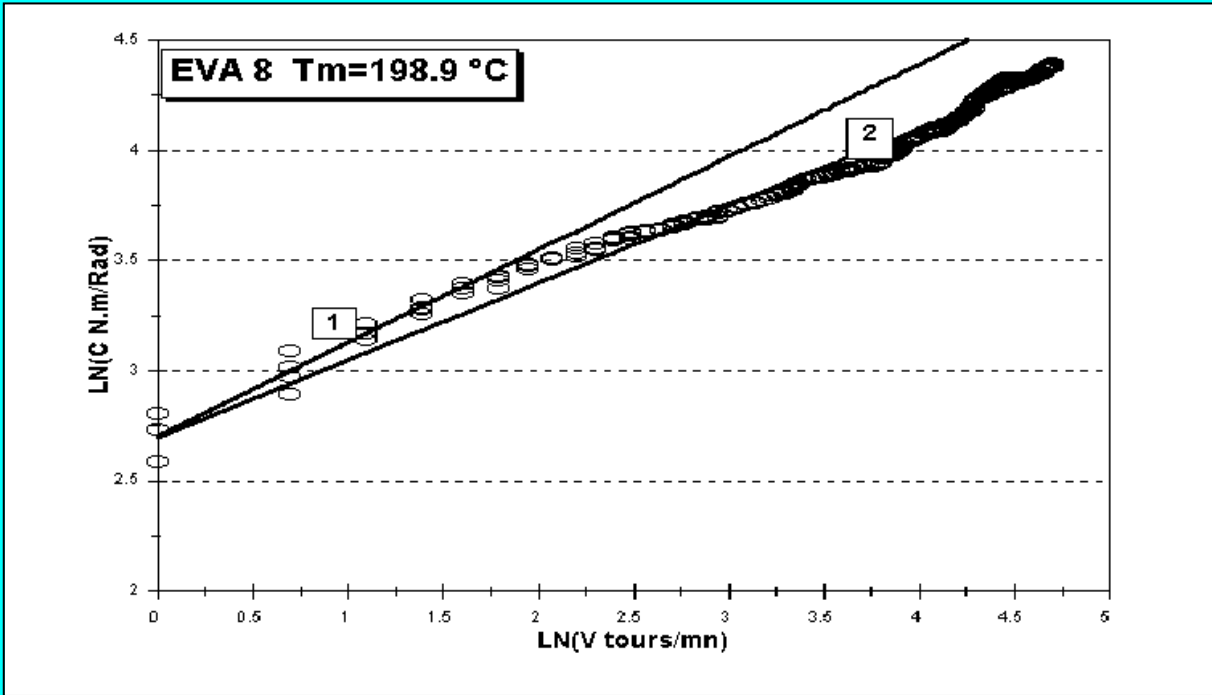


figure 45: Protocole 2,  $T_m=198.9\text{ }^\circ\text{C}$



Les résultats repris dans le tableau 3 rapportent **les indices de pseudoplasticité n** et **les constantes expérimentales  $C_n$**  obtenus à partir des relations [6] (rhéomètre plan plan) et [56] (malaxeur) suivant l'exemple de la figure 38.

**tableau 3: Exploitations des résultats**

Prot.	$T_m$ °C	n	$KC_n$ Pa..mn <sup>n</sup> .tours <sup>-n</sup>	$r^2$ $\phi < 1/1000$	K ( $T_m$ ) Rhéomètre plan plan Pa.s <sup>n</sup>	$C_n$ s <sup>-n</sup> .tours <sup>-n</sup> .mn <sup>n</sup>
1	162.2	0.38	17.51	0.99	25036	0.0007
1	182.5	0.38	15.5	0.99	18317	0.00085
1	199.4	0.43	11.35	0.99	14414	0.00079
1	199.8	0.45	10.3	0.99	14335	0.00072
1	200.8	0.4	12.1	0.98	14141	0.00086
1	229.1	0.4	11.1	0.98	9837	0.00113
2	160.6	0.38	20.158	0.99	25680	0.000785
2	180.2	0.36	15.89	0.98	18953	0.000838
2	180.5	0.32	17.79	0.98	18860	0.000943
2	180.7	0.36	15.73	0.97	18810	0.000836
2	198.9	0.34	15.27	0.97	14394	0.001061
2	225.1	0.37	12.04	0.98	10333	0.00116

Les analogies malaxeur-rhéomètre méritent d'être discutées. En effet, comme l'indique le tableau 3 ( $T_m$  : température moyenne de l'essai), **les indices de pseudoplasticité** sont comparables avec le protocole 1 à ceux obtenus par analyse rhéologique en utilisant le système plan plan avec un écart moyen de 6.9 %.

Par contre, un écart plus important de 19.7 % est observé avec le protocole 2 par rapport aux valeurs de référence. Les histoires rhéologiques et thermiques des matériaux, différentes pour chaque protocole, joue donc un rôle important sur le matériau en modifiant de façon significative ses propriétés d'écoulement.

L'indice de pseudoplasticité n intervient dans le calcul qui permet de convertir la vitesse de rotation V du malaxeur en gradient de vitesse (formule [58]). **Le protocole 1 est donc préférable pour la détermination de l'indice d'écoulement de par les similarités qu'il présente avec les valeurs obtenues au rhéomètre plan plan.**

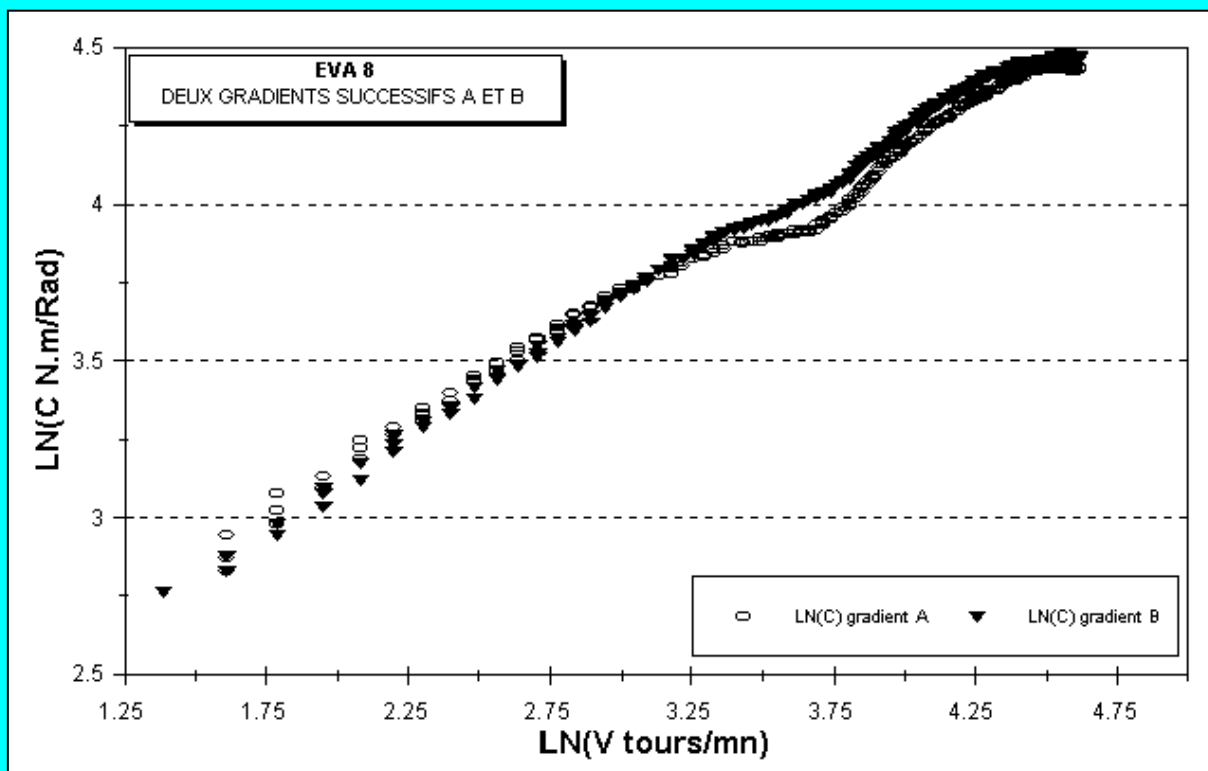
Les essais présentent des instabilités d'écoulement liées bien sur à l'inertie de la régulation de température et/ou une dégradation chimique irréversible du

matériau. Afin de confirmer ce dernier phénomène, un protocole expérimental se décomposant en 3 phases a été mis en œuvre sur un même échantillon :

- 1 un premier gradient de vitesse A à 5 tours.mn<sup>-1</sup> (T<sub>m</sub>=184.9 °C)
- 2 retour à une phase d'attente intermédiaire sous faible cisaillement (5 tours.mn<sup>-1</sup>, 17 mn)
- 3 un deuxième gradient de vitesse B à 5 tours.mn<sup>-1</sup> (T<sub>m</sub>=185.4 °C).

La figure 46 indique que ces instabilités n'ont pas de conséquence sur la stabilité chimique du matériau, les valeurs de couple, qui restent identiques pour les gradients de vitesses A et B, traduisent l'absence de réticulation ou de dégradation chimique. La température finale des deux gradients de vitesse est inférieure à 196 °C. Sur ce point, les résultats sont en accord avec l'analyse TG (figure 32) qui ne met en évidence une altération chimique du matériau qu'à partir de 230 °C.

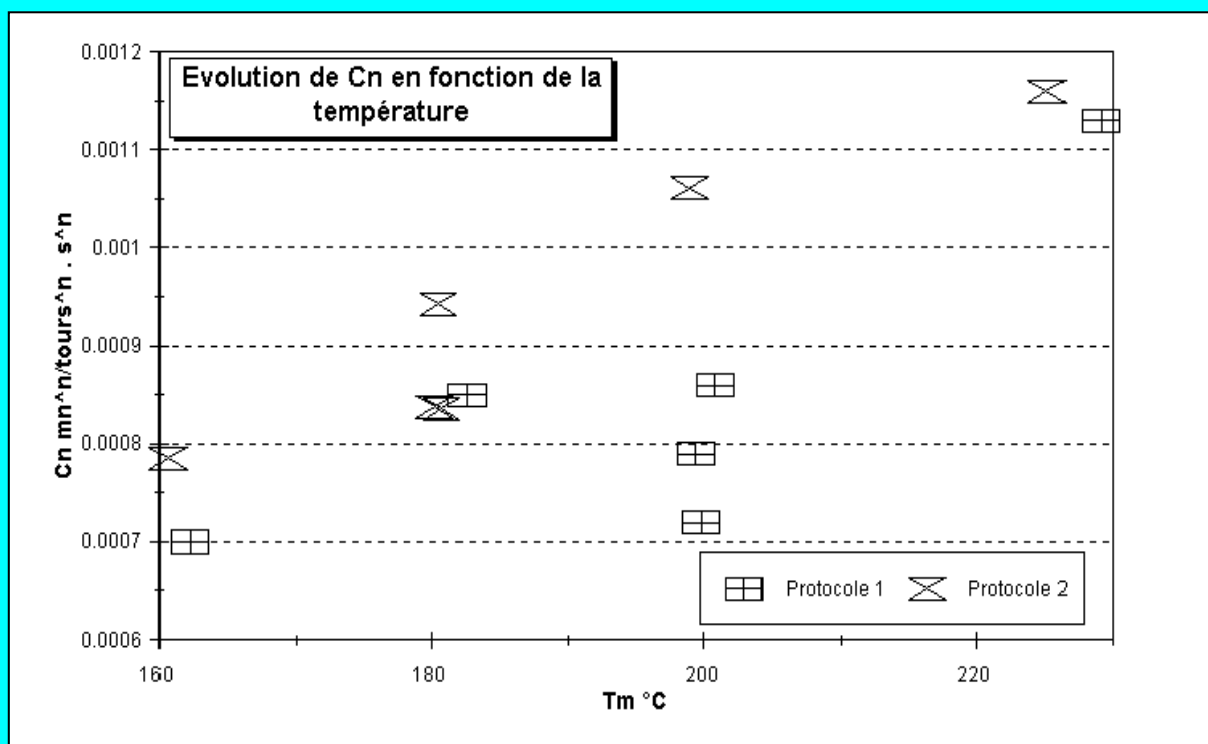
figure 46 : Application de deux gradients de vitesses successifs A et B à l'EVA 8



Cependant, les variations non linéaires du couple en fonction des vitesses de rotation (ce phénomène apparaît sur une gamme de vitesses de 33 à 55 tours.mn<sup>-1</sup>, figure 46) modifient de façon significative la pente des droites de régression correspondantes et génère une erreur importante sur la détermination précise de l'ordonnée à l'origine  $KC_n$ .

Le calcul de  $C_n$  présente une répétabilité acceptable ( $\pm 10\%$ ) compte tenu de la précision sur la mesure ( $\pm 15\%$  relatif) comme l'illustrent les résultats obtenus à  $200\text{ }^\circ\text{C}$  avec le protocole 1 et 2 (figure 47). **Le terme de constante pour qualifier  $C_n$  peut être considéré comme un abus de langage car celle-ci varie en fonction des traitements thermiques et mécaniques subis par le matériau** (valeurs généralement supérieures avec le protocole 2). Remarquons également que cette "constante" augmente de manière significative lorsque la température matière dépasse  $200\text{ }^\circ\text{C}$ .

figure 47: Evolution de  $C_n$  en fonction de la température



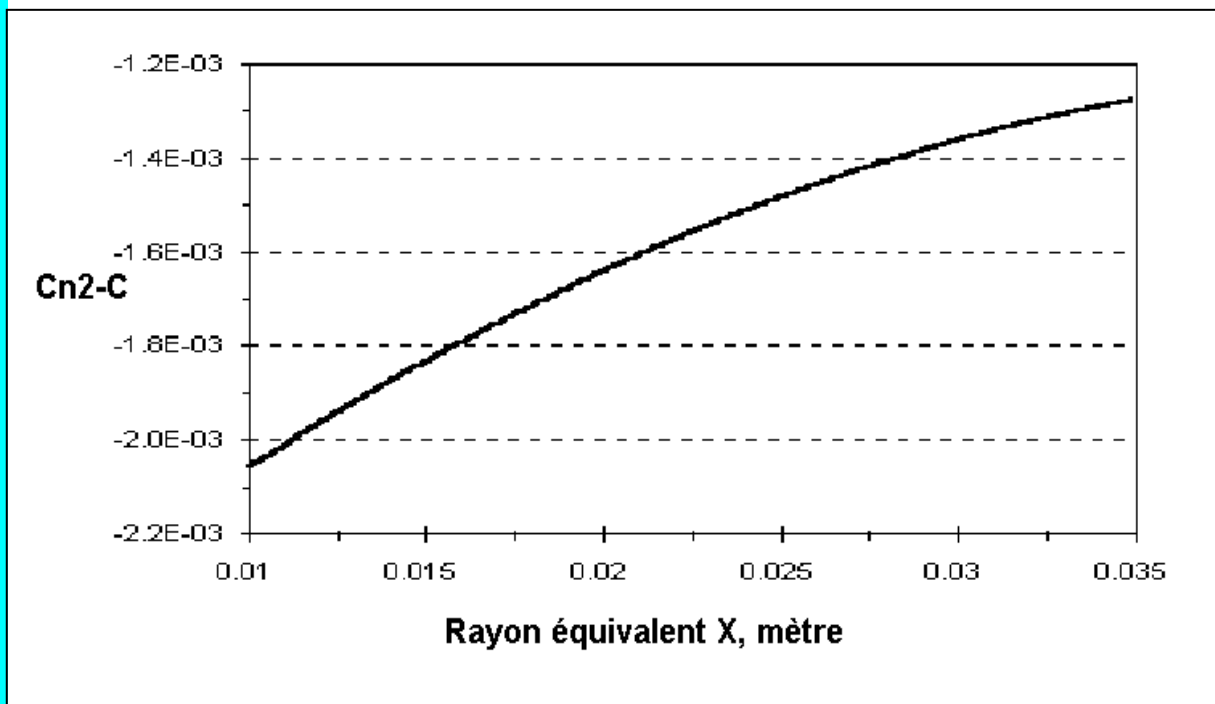
Le système d'équations à deux inconnus (formules 62 et 63) est ensuite résolu graphiquement. Une série de longueurs de  $X$  variant du rayon minimum au rayon maximum mesuré expérimentalement (tableau 1) est introduite dans l'équation [62]. **Une expression du type  $Y = A \times C_{n1} + B$**  ( $A$  et  $B$  constantes) est obtenue pour chaque valeur de  $X$ . Les valeurs de  $Y$  correspondantes sont ensuite utilisées dans l'équation 63 conduisant à une expression finale du type  $C_{n2}=C$  ( $C$  constante). Le système est résolu lorsque  $C_{n2}$  est égal à  $C$ .

$$C_{n1} = 10.472 X^2 L \left[ \frac{0.1745Y}{n \left[ 1 - \left[ \frac{X}{R_2} \right]^{\frac{2}{n1}} \right]} \right]^{n1} \quad [62]$$

$$C_{n2} = 10.472 X^2 L \left[ \frac{0.1745Y}{n \left[ 1 - \left[ \frac{X}{R_2} \right]^{\frac{2}{n2}} \right]} \right]^{n2} \quad [63]$$

Comme le montre la figure 48, la résolution graphique du système d'équation ne donne aucune solution, une valeur d'ordonnée égale à 0 ne correspondant à aucune mesure réelle de X quel que soit le protocole utilisé au malaxeur. La détermination des valeurs de X et Y nécessite en effet des valeurs de C<sub>n</sub> obtenues avec davantage de précision.

figure 48: Résolution graphique du système d'équations [62] et [63]



A l'instar de Lee et Purdon <sup>74</sup>, X est choisi arbitrairement. Dans notre cas, la valeur expérimentale calculée par Goodrich et Porter <sup>72</sup> (90.8 % de la valeur maximale de R<sub>1</sub>) sera prise en compte. Y est ensuite déterminé empiriquement par comparaison entre les courbes expérimentales et théoriques. On en déduit une

valeur de Y égale à 1 qui assure une cohésion suffisante entre les courbes de viscosité issues du rhéomètre plan plan et celles issues du malaxeur.

**Les valeurs de X et Y seront respectivement égales à 0.0309 m (90.8 % de la valeur maximale de R<sub>1</sub> selon Goodrich et Porter <sup>72</sup>) et à 1 sont retenues. Le protocole d'analyse au malaxeur n°1 sera systématiquement utilisé pour l'exploitation rhéologique des résultats.**

### 3.2 LES MESURES DE VISCOSITE

Le tableau 4 rapporte les facteurs de conversion de la vitesse de rotation V en gradient de vitesse  $\dot{\gamma}$  et du couple appliqué C en contrainte de cisaillement  $\tau$  (les facteurs K<sub>1</sub> et K<sub>2</sub> sont relatifs à l'équation [55])

**tableau 4: Facteurs de conversion pour le gradient de vitesse et la contrainte**

Protocole	T <sub>m</sub> °C	$\dot{\gamma}$ s <sup>-1</sup> K <sub>2</sub> × V	$\tau$ Pa K <sub>1</sub> × C	$\eta$ Pa.s K <sub>1</sub> /K <sub>2</sub> × C/V
1	162.2	0.95 × V	1165.05 × C	1226.46 × C/V
1	182.5	0.95 × V	1165.05 × C	1226.46 × C/V
1	199.4	0.92 × V	1165.05 × C	1269.44 × C/V
1	199.8	0.91 × V	1165.05 × C	1284.44 × C/V
1	200.8	0.94 × V	1165.05 × C	1244.69 × C/V
1	229.1	0.94 × V	1165.05 × C	1244.69 × C/V

En accord avec la littérature (40), la plage de gradient de vitesse atteinte par le malaxeur est relativement étroite, **une rotation par minute équivaut à un gradient de vitesse de 1 s<sup>-1</sup>.**

Les courbes expérimentales sont superposables aux courbes réalisées avec les rhéomètres capillaires –filière plate- ou –filière capillaire- et le rhéomètre plan plan comme le montrent les figures 49, 50, et 51. Sur ce point, les résultats sont tout à fait similaires à ceux présentés par Lee et Purdon <sup>74</sup> et la loi de puissance est suivie sur toute la gamme de gradient de vitesse tout au moins tant que la température reste inférieure à 200 °C.

figure 49: Comparaison des mesures rhéologiques réalisées avec l'EVA 8 à 160 °C

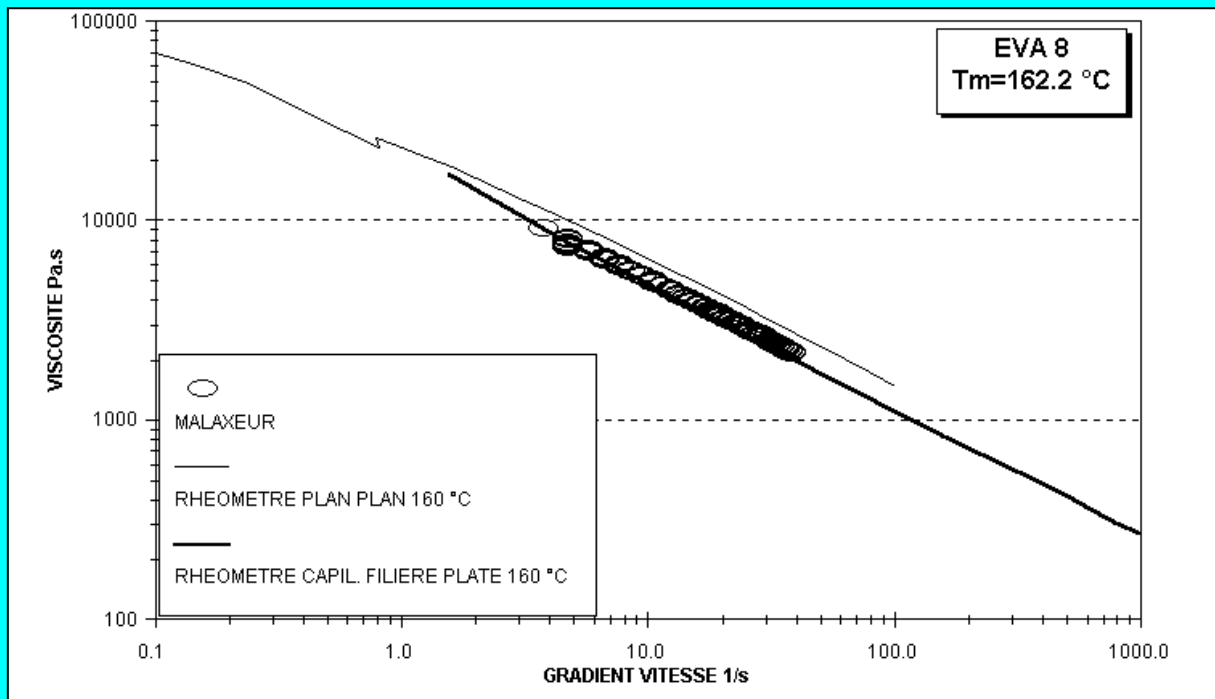


figure 50: Comparaison des mesures rhéologiques réalisées avec l'EVA 8 à 180 °C

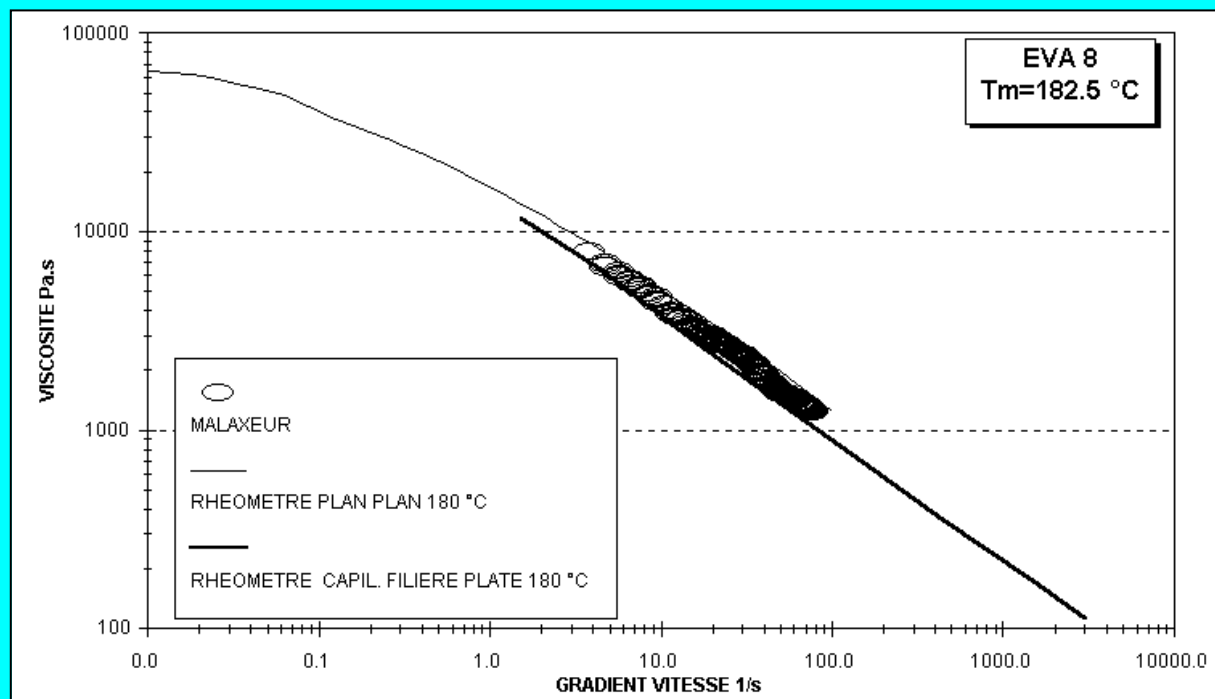
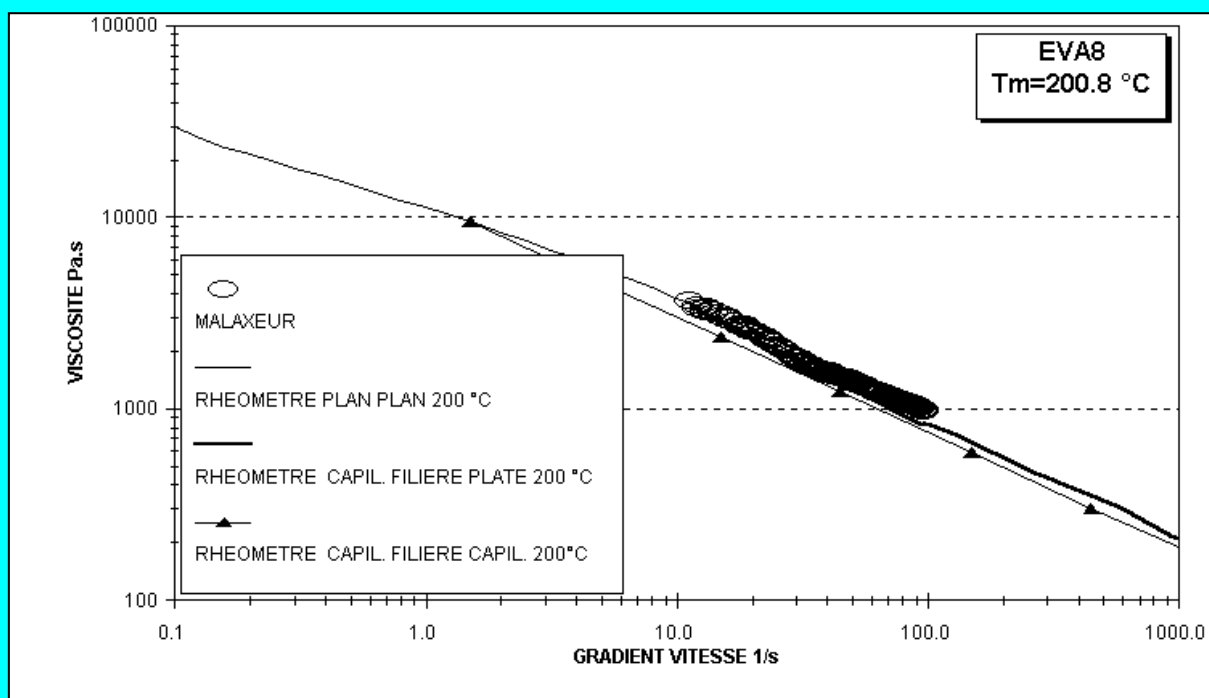


figure 51: Comparaison des mesures rhéologiques réalisées avec l'EVA 8 à 200 °C



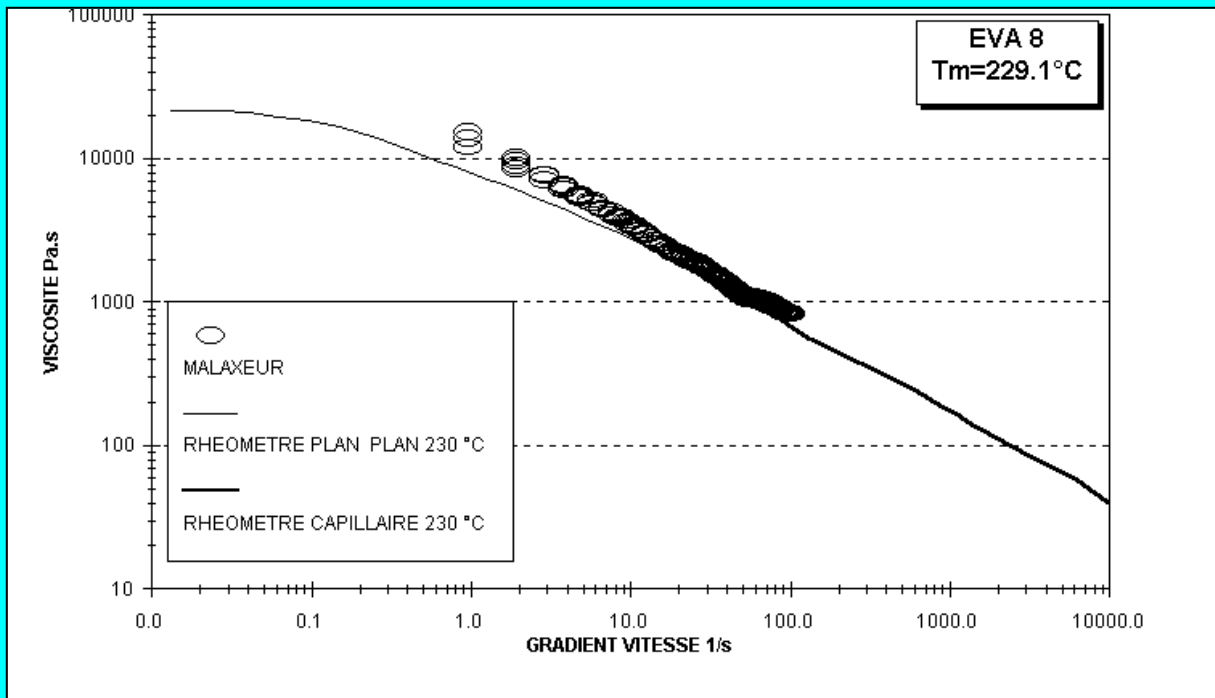
En effet, lorsque la température matière dépasse 200 °c, la loi de puissance est suivie seulement à partir de 30 s<sup>-1</sup> comme l'illustre la figure 52. La courbe réalisée avec le rhéomètre plan plan se dissocie progressivement de la courbe expérimentale (malaxeur) lorsque le gradient de vitesse diminue et caractérise pour le matériau une transition depuis la zone pseudoplastique vers le plateau Newtonien qui n'est pas observée avec le malaxeur.

Cet artefact de mesure est du au fait que l'indice de pseudoplasticité  $n$  (intervient dans l'expression du gradient de vitesse [58]) est considéré constant sur toute la gamme de gradient de vitesse (calculé sur la zone pseudoplastique d'écoulement) alors que celui-ci tend progressivement vers 1 pour les mesures réalisées avec le rhéomètre plan plan lorsque le gradient de vitesse diminue.

La méthode est donc valide pour des plages de gradients de vitesse comprises entre de 10 et 100 s<sup>-1</sup> pour des températures inférieures à 200 °C. Aux températures supérieures, la gamme de gradients de vitesse sur laquelle la viscosité peut être approximée se limite de 30 à 100 s<sup>-1</sup>.



figure 52: Comparaison des mesures rhéologiques réalisées avec l'EVA 8 à 229.1 °C



L'étude montre que l'utilisation du malaxeur entant qu'outil rhéologique donne des résultats satisfaisants à deux conditions. Premièrement, disposer de courbes rhéologiques de référence précises. Deuxièmement, connaître précisément les caractéristiques du matériau étudié et notamment sa stabilité thermique.

Pour conclure, cette étude met en évidence l'influence du traitement thermique sur les propriétés d'écoulement de l'EVA 8.

## 3.2 LES MESURES DE VISCOSITE AVEC LA FILIERE CAPILLAIRE

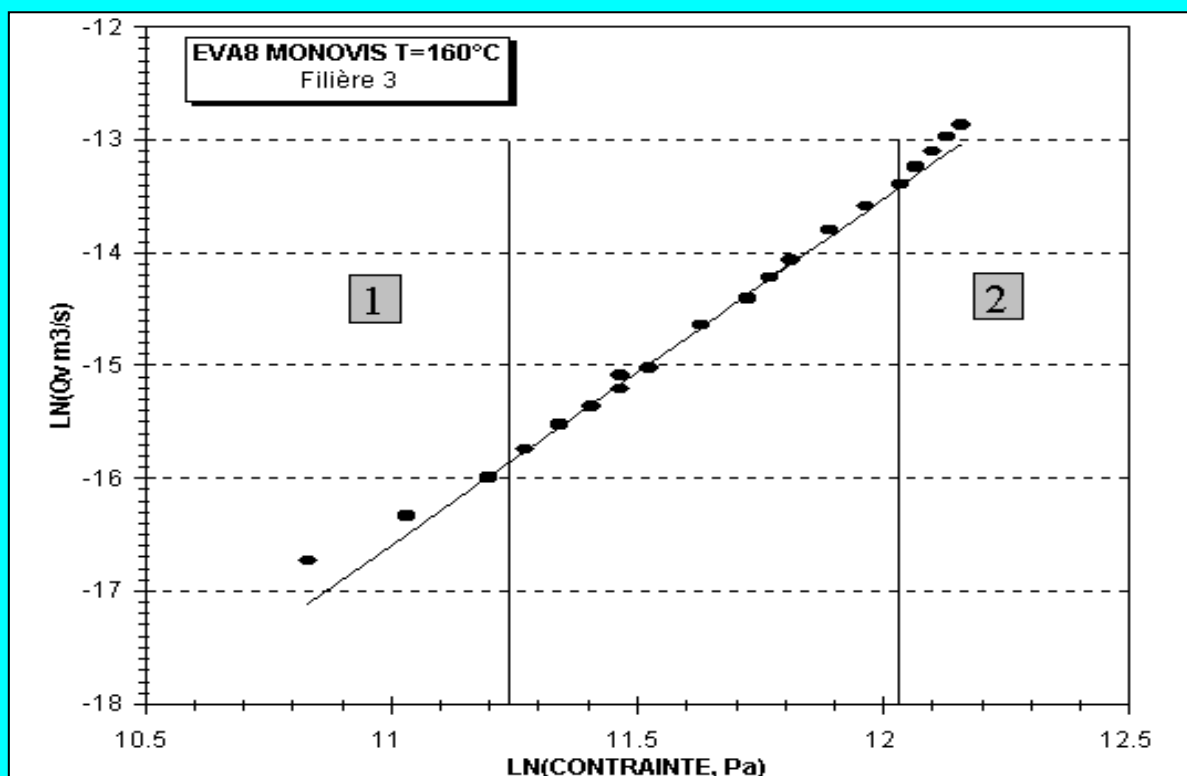
### 3.2.1 DISCUSSION DES CONDITIONS LIMITES

La courbe qui reprend la variation du débit volumique  $Q_v$  ne fonction de la contrainte de cisaillement  $\tau$  met en évidence 2 zones (zones n°1 et n°2 de la figure 53) qui présentent des points aberrants dans la mesure où ils s'écartent de la linéarité.

**Les premiers points (zone n°1 de la figure 53)** sont liés à la précision du capteur de pression car les mesures enregistrées correspondent à sa limite de sensibilité.

Par contre, la **dérive des derniers points (zone n°2 de la figure 53)** ne peut être rattachée à l'imprécision de l'appareillage et est due, soit à une évolution rhéologique du matériau pour des gradients de vitesse élevés (diminution de  $n$ ), soit à une perte d'adhésion du matériau sur la paroi bien que les observations macroscopiques du jonc extrudé correspondant ne montre pas de défauts d'extrusion. Ces points ne seront pas retenus pour l'exploitation des résultats.

*figure 53: Variation du débit volumique  $Q_v$  en fonction de la contrainte  $\tau$  pour l'EVA 8 à la température de 160 °C*



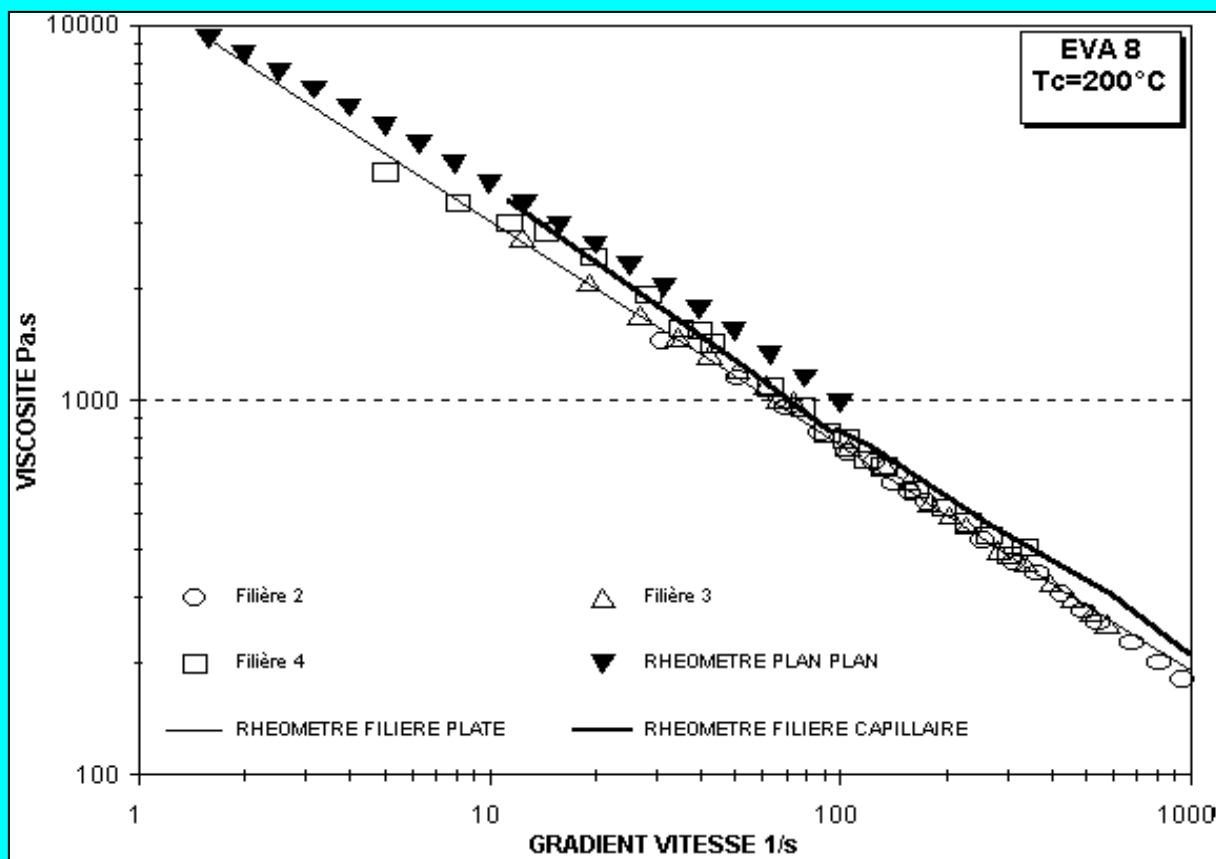
### 3.2.2 LES MESURES DE VISCOSITE

Les résultats obtenus avec les trois filières sont complémentaires avec une gamme de gradient de vitesse qui s'étend de 5 à 1000  $s^{-1}$  (figure 54).

Elle correspond pour chaque filière aux gradients suivants : filière 2 : 30 à 1100  $s^{-1}$ , filière 3 : 12 à 500  $s^{-1}$ , filière 4 : 7 à 300  $s^{-1}$ .

**Il apparaît donc judicieux de mesurer la viscosité uniquement avec la filière 2 qui couvre l'ensemble de la gamme de gradient de vitesse** et dont la courbe est superposable à celles obtenues avec le rhéomètre rotatif plan plan, capillaire à filière capillaire et capillaire à filière plate.

figure 54: Rhéogramme de l'EVA 8 à 200 °C



Comme le montre le tableau 5, de nombreuses similitudes apparaissent avec les mesures effectuées avec le rhéomètre rotatif plan plan, capillaire à filière capillaire et capillaire à filière plate reprises dans l'annexe II.

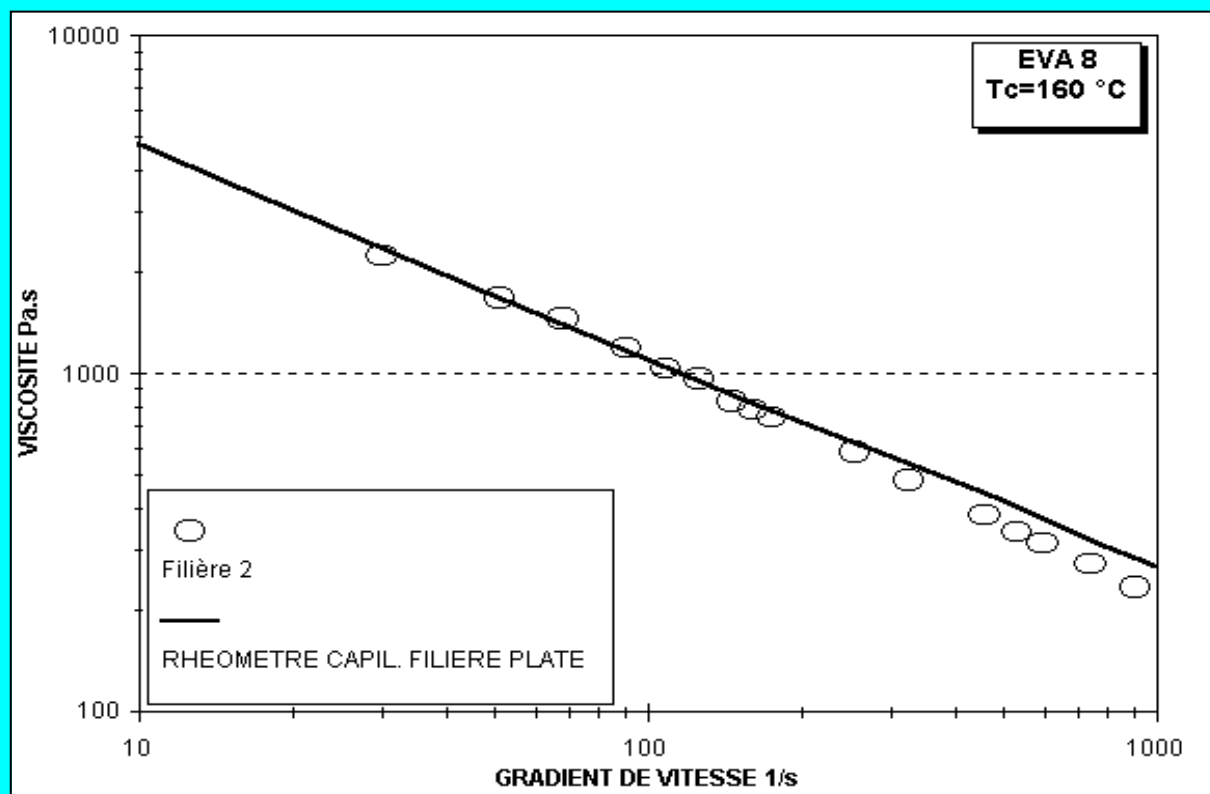
Les indices de pseudoplasticité  $n$  et les valeurs de consistance  $K$  sont similaires à celles obtenues avec les 3 rhéomètres de laboratoire.  $n$  augmente également avec la température et la loi de puissance (dont les coefficients de corrélations linéaires  $r^2$  tendent vers 1) caractéristique de la zone d'écoulement thermoplastique est parfaitement suivie

tableau 5: analyse rhéologique de l'EVA 8 avec les filières capillaires n°1, 2 et 3

T °C	Filière 2 $\phi < 1/1000$			Filière 3 $\phi < 1/1000$			Filière 4 $\phi < 1/1000$			Moyenne $\phi < 1/1000$	
	K Pa.s <sup>n</sup>	n	r <sup>2</sup>	K Pa.s <sup>n</sup>	n	r <sup>2</sup>	K Pa.s <sup>n</sup>	n	r <sup>2</sup>	K Pa.s <sup>n</sup>	n
160	29111	0.29	1	25014	0.32	1	26050	0.32	0.99	<b>26725</b>	<b>0.31</b>
180	19648	0.33	0.99	15870	0.38	0.99	19170	0.34	1	<b>18229</b>	<b>0.35</b>
200	13720	0.37	0.99	13262	0.38	0.99	16854	0.34	0.99	<b>14612</b>	<b>0.36</b>
200	12401	0.38	0.99								
200	13685	0.36	0.99								
230	9772	0.39	0.99				10609	0.4	1	<b>10190</b>	<b>0.39</b>
235	9374	0.38	1				6173	0.48	0.99	<b>7773</b>	<b>0.43</b>

Les figures 55, 56 et 57 reprennent les mesures comparatives pour l'EVA 8 à 160, 180 et 230 °C et confirment la correspondance entre les résultats.

**figure 55: Rhéogramme de l'EVA 8 à 160 °C**



**figure 56: Rhéogramme de l'EVA 8 à 180 °C**

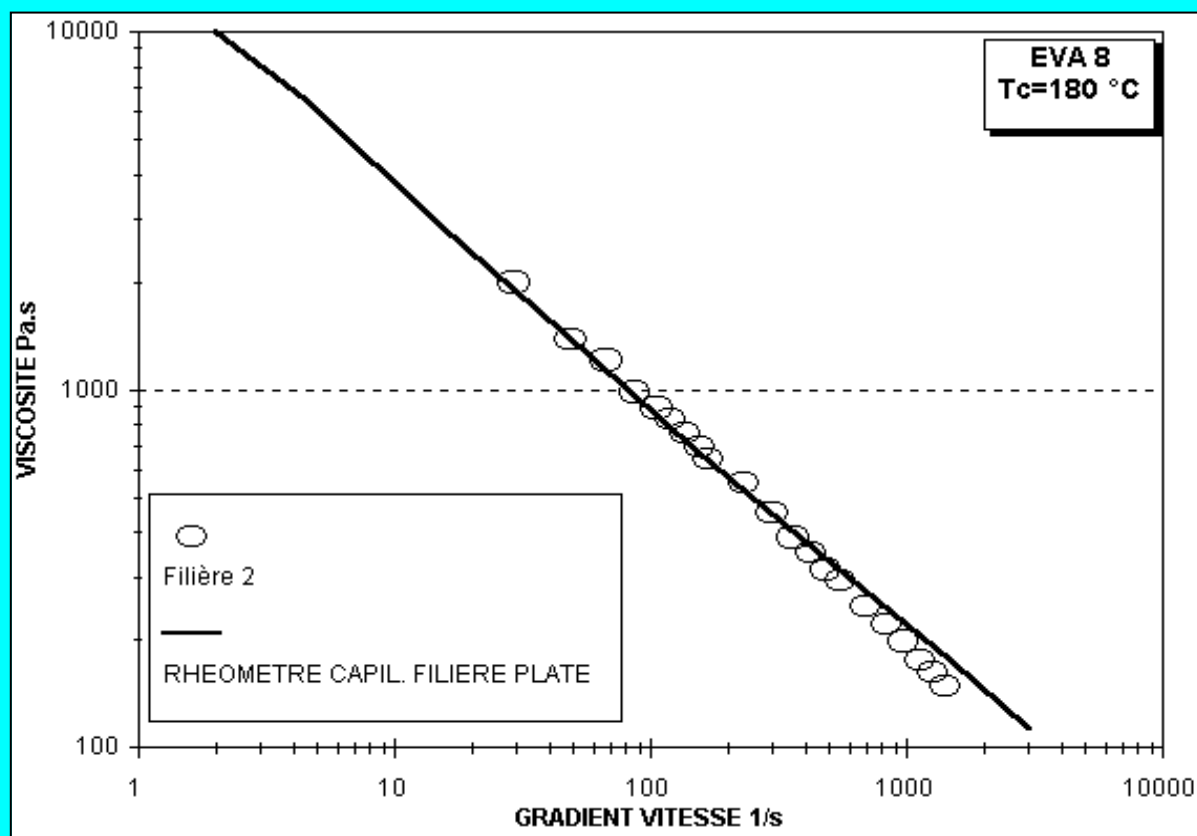
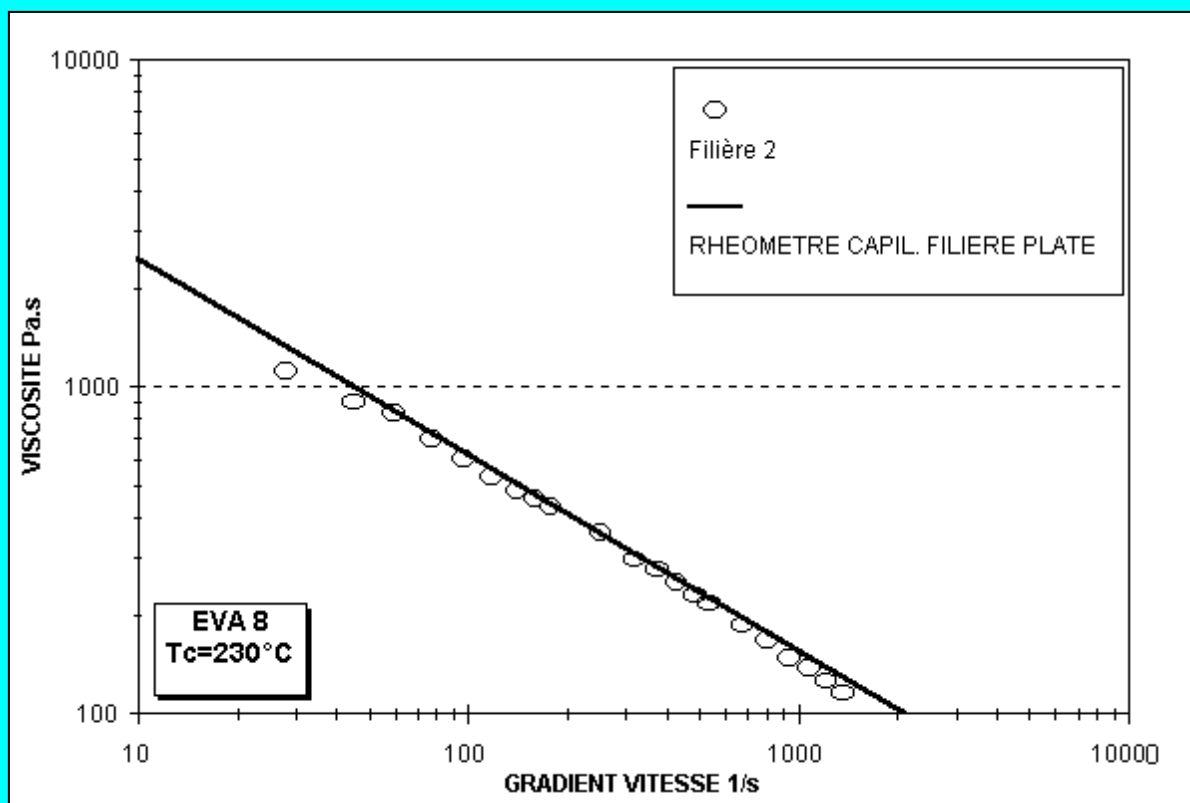


figure 57: Rhéogramme de l'EVA 8 à 230 °C

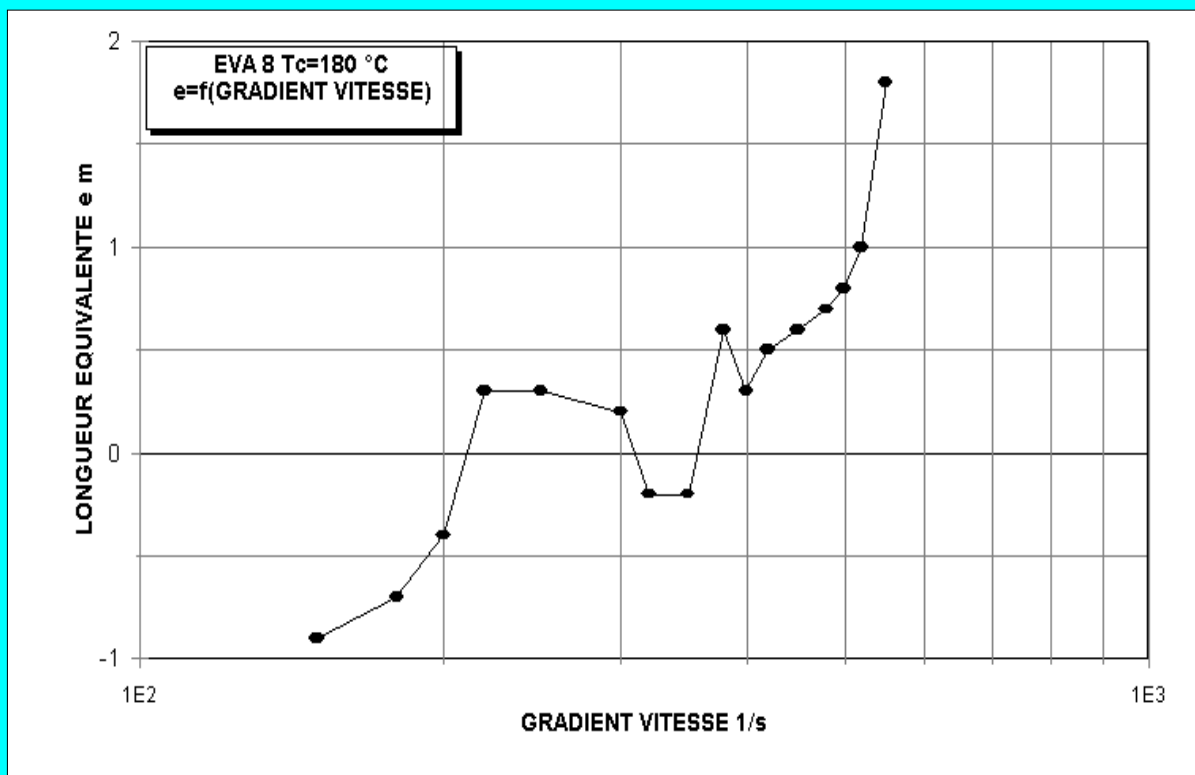


A la différence de mesures de viscosité effectuées avec le malaxeur, les 2 courbes restent parfaitement superposables à la température de 230 °C (figure 57). Le rhéomètre capillaire à filière plate et la filière n°2 mesurent des viscosités correspondant à la zone pseudoplastique uniquement ce qui explique la parfaite concordance des courbes.

Ces mesures ne font pas appel à la correction de Bagley car la longueur équivalente  $e$  ne varie pas linéairement par rapport au gradient de vitesse (figure 58). Cette correction décrite dans la littérature nécessite 3 capillaires de longueurs variables mais avec des diamètres de dimensions communes. **Dans notre cas, les longueurs sont équivalentes et les capillaires ne sont différenciés que par leurs diamètres respectifs.**

L'absence de correction doit entraîner l'augmentation de la contrainte de cisaillement (formule [47]) et génère ainsi un écart plus important entre les courbes expérimentales et théoriques.

figure 58: Longueur équivalente e fonction du gradient de vitesse pour l'EVA 8 à 180 °C



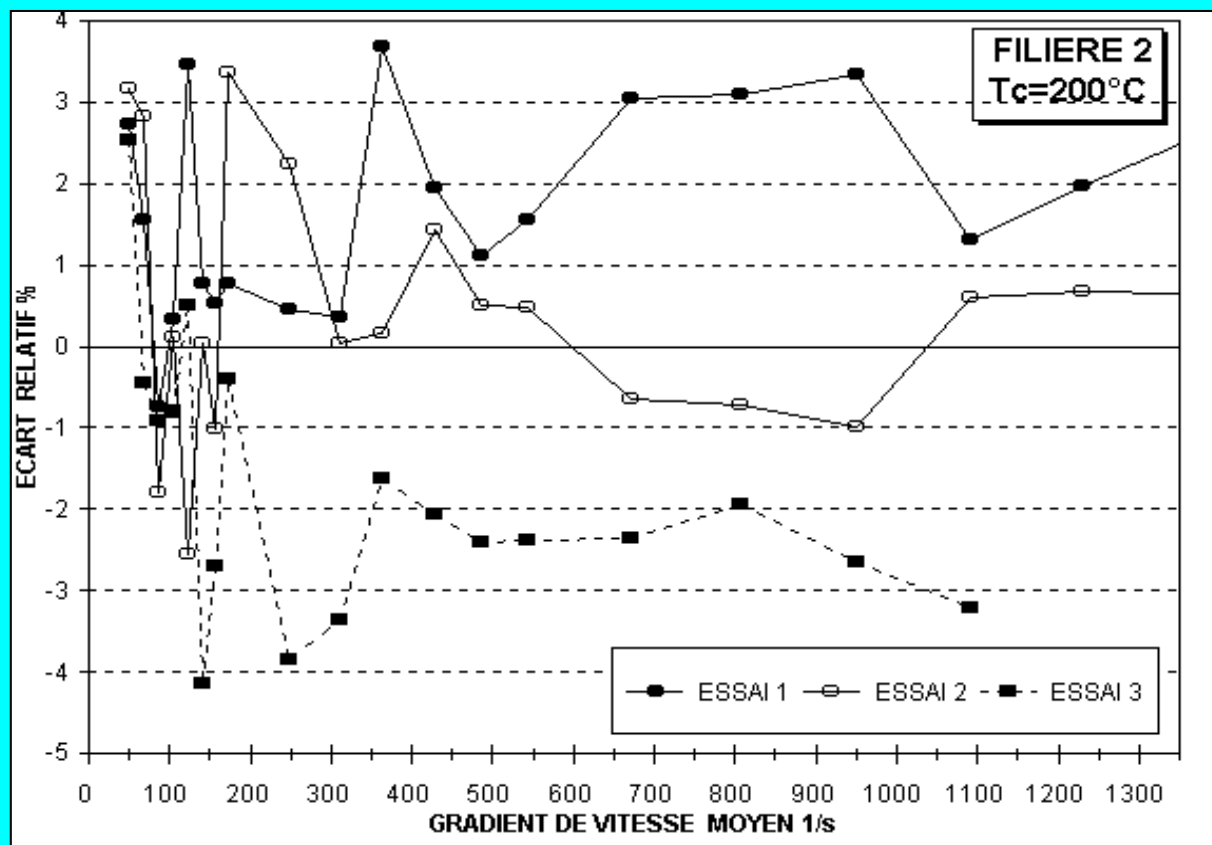
Une validation de la méthode (précision et répétabilité) indique une dispersion importante des résultats aux faibles valeurs de gradients de vitesse qui s'explique par une erreur plus importante de la mesure de pression avec le capteur (tableau 1) pour les faibles pressions. L'erreur absolue de  $\pm 3.5$  Bar devient en effet importante pour les mesures de pression qui correspondent aux faibles gradients de vitesses.

Des études comparatives menées dans ce sens montrent que la précision varie pour l'EVA 8 à 200 °C de 15 à 10 % relatif depuis les faibles ( $15 s^{-1}$ ) aux hautes valeurs ( $1100 s^{-1}$ ) de gradients de vitesse. **A noter que la précision est inférieure à 10 % relatif dès  $50 s^{-1}$ .**

**L'étude de répétabilité a été menée avec la filière 2 à la température de 200 °C.** Une valeur moyenne de viscosité a été calculée sur trois essais successifs tandis que l'écart par rapport à la moyenne a été déterminé pour chaque expérimentation.

La figure 59 montre que la répétabilité est constante sur l'ensemble du gradient de vitesse avec une valeur de  $\pm 4$  % relatif maximum sur la mesure de viscosité.

figure 59: Répétabilité de la mesure de la viscosité en fonction du gradient de vitesse



La méthode de mesure avec la filière capillaire n°2 sera donc validée sur une plage qui s'étend de 50 à 1100 s<sup>-1</sup>, ceci afin de limiter l'erreur induite par la mesure de pression aux bas gradients de vitesse.

Comme le montre cette étude, le développement d'un rhéomètre capillaire en sortie d'extrudeuse conduit à des résultats comparables aux outils rhéologiques classiques. **A la différence du malaxeur, l'exploitation des résultats ne nécessite pas de courbes rhéologiques de référence.**

Enfin, le système développé au laboratoire (mesure "on line" de la viscosité) tient compte de l'histoire rhéologique du matériau consécutive aux traitements thermomécaniques imposés à celui-ci durant son transit dans l'extrudeuse.

### 3.3 COMPARAISON DES ENERGIES D'ACTIVATION

**Les valeurs expérimentales de E<sub>k</sub>** (formule [7]) calculées en utilisant la filière capillaire et le malaxeur sont proches de celles obtenues avec les rhéomètres capillaire à filière plate et plan plan (tableau 6). Une dispersion importante apparaît avec les points expérimentaux issus du malaxage. En effet, l'inertie de régulation de température de l'appareil conduit à la prise en compte d'une température moyenne d'essai qui augmente la dispersion comme l'indique le facteur de corrélation r<sup>2</sup> égal à

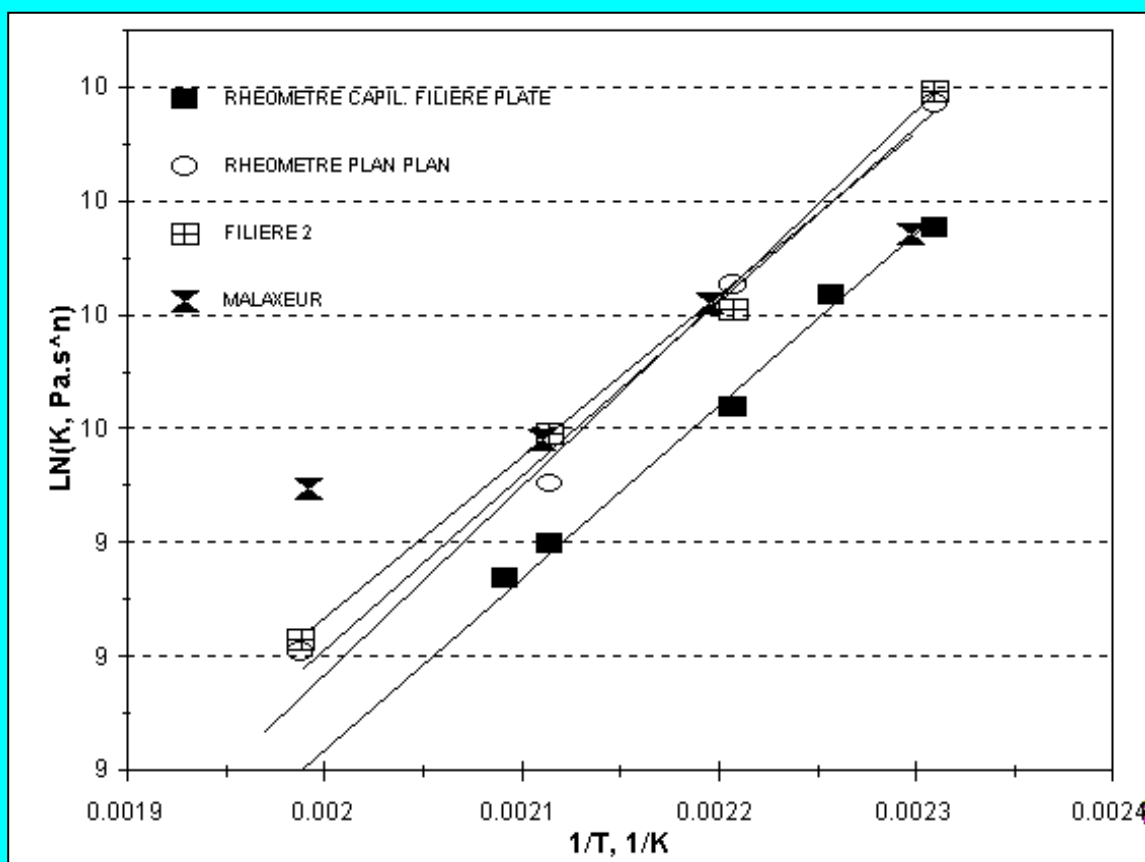
0.94 associé à une probabilité  $\phi$  pour que l'hypothèse d'une variation linéaire soit nulle importante

**tableau 6: Comparaison entre la valeur expérimentale et les valeurs théoriques**

	Filière capillaire $\phi < 1/1000$	Malaxeur $\phi < 2/100$	Rhéomètre plan plan $\phi < 1/1000$	Rhéomètre filière plate $\phi < 1/1000$
$E_k \text{ J.mol}^{-1}$	27381	23590	25325	25107
$K_0 \text{ Pa.s}^n$	13.18	36.2	22.57	19.93
$r^2$	0.99	0.94	0.99	0.99

La thermodépendance de la consistance correspond effectivement à une loi de type Arrhenius comme l'illustre la figure 60.

**figure 60: Evolution de la consistance  $K$  en fonction de la température**



Le calcul des énergies d'activations à gradient de vitesse constant  $E_{\dot{\gamma}}$  (formule [10]) conduit à des résultats similaires entre le malaxeur et la filière capillaire associée à l'extrudeuse. L'énergie d'activation  $E_{\dot{\gamma}}$  qui diminue lorsque le gradient de vitesse augmente montre à l'évidence qu'une régulation précise de la température se justifie particulièrement pour tous les processus mettant en jeu des gradients de vitesses peu élevés.



Lorsque que le mouvement laminaire de cisaillement augmente, la diminution de viscosité est davantage corrélée à une déstructuration du matériau plutôt qu'à l'augmentation de température ce qui explique la diminution importante de  $E_{\dot{\gamma}}$  (figures 61) jusqu'à 60 s<sup>-1</sup> qui tend ensuite à se stabiliser vers un minimum (15 kJ/mol).

figure 61: Comparaison de  $E_{\dot{\gamma}}$  en fonction du gradient de vitesse sur une plage de température de 180 à 200 °C.

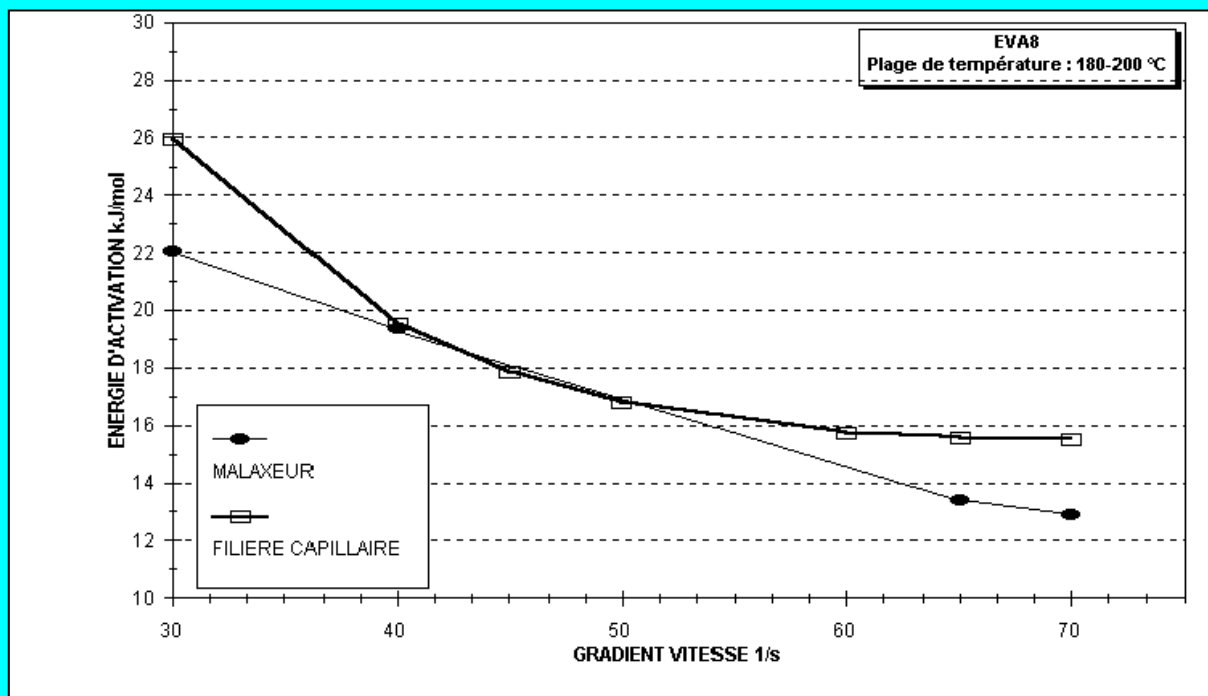
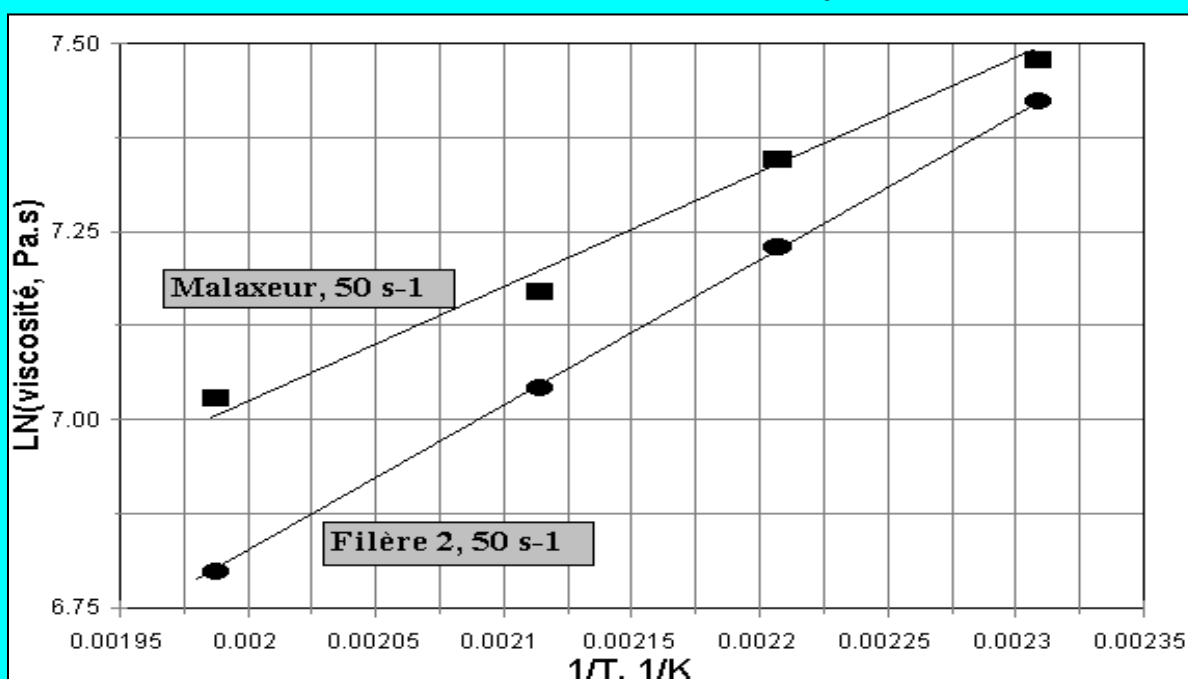


figure 62: Variation de la viscosité en fonction de la température avec l'EVA 8 au gradient de vitesse de 50 s<sup>-1</sup> avec le malaxeur et la filière capillaire n°2



Les énergies d'activation  $E_{\dot{\gamma}}$  calculées à partir des données rhéologiques issues des 2 outils de laboratoires et des rhéomètres plan plan, capillaire à filière plate et capillaire à filière capillaire ne sont pas comparables. Certaines similitudes apparaissent et de façon aléatoire entre les différents appareils mais ne peuvent être généralisées comme l'indique le tableau 7.

**tableau 7: Compilation des énergies  $E_{\dot{\gamma}}$  en  $\text{kJ.mol}^{-1}$  obtenues avec le rhéomètre capillaire à filière plate et la filière capillaire n°2**

Gradient $\text{s}^{-1}$	Energie d'activation $E_{\dot{\gamma}}$ en $\text{kJ.mol}^{-1}$							
	Température 160- 180 °C		Température 180- 200 °C		Température 200- 235 °C		Température 160- 200 °C	
45	16.2	<b>16.5</b>	13.8	<b>17.9</b>	14.9	<b>27.8</b>	15.1	<b>17.2</b>
150	16.1	<b>13</b>	12.1	<b>16.8</b>	13.7	<b>18.9</b>	14.2	<b>14.8</b>
450	18.6	<b>10.3</b>	12.4	<b>12.6</b>	12.9	<b>17.7</b>	15.7	<b>11.4</b>
1500	14.2	<b>10</b>	13.3	<b>5.8</b>	ND	<b>13.6</b>	13.8	<b>8</b>

valeurs obtenues aux températures sus nommées avec le rhéomètre capillaire à filière plate  
**valeurs obtenues avec la filière capillaire n°2**

Le protocole de mesure utilisé avec le rhéomètre capillaire provoque dans un premier temps une déstructuration du matériau lorsque les gradients de vitesses sont élevés. Cette déstructuration conduit à une viscosité inférieure du matériau pour un gradient de vitesse équivalent à celui de la filière n°2.

## CONCLUSION

**Le malaxeur**, outil aisé à mettre en œuvre nécessite de faibles quantités de matériau et permet une détermination rapide de la loi de puissance qui régit l'écoulement du matériau à condition de disposer de mesures réalisées à la même température avec un rhéomètre. Il permet en outre de s'assurer que les traitements thermomécaniques subit par le matériau n'engendre pas de dégradation chimique irréversible.

Néanmoins, l'exploitation des résultats obtenus avec le malaxeur présente de nombreuses anomalies (inertie de la régulation de température, cisaillement du matériau qui provoque un échauffement important) qu'il convient d'analyser judicieusement. La dispersion des points expérimentaux est acceptable et se situe dans la fourchette de précision de mesure ( $\pm 15$  % relatif) avec un risque statistique associé qui est plus important que pour les mesures effectuées avec les autres appareils.

Enfin, la mesure de viscosité correspond à des gradients de vitesses maximums de  $100 \text{ s}^{-1}$  sans rapport avec ceux rencontrés couramment dans la transformation des matières plastiques (de  $1000$  à  $7000 \text{ s}^{-1}$ ).

**La filière capillaire** associée à l'ensemble d'extrusion vis-fourreau est un outil complexe à mettre œuvre qui consomme des quantités importantes de matériau.

Par contre, l'exploitation des points expérimentaux ne nécessite aucun outil rhéologique complémentaire et permet de mesurer avec une bonne répétabilité ( $\pm 4$  % relatif) la viscosité et les énergies d'activation sur de larges gammes de gradients de vitesses (de  $50$  à  $1100 \text{ s}^{-1}$ ). De plus, l'exploitation des résultats est aisée de par la faible dispersion des points.

**Le malaxeur est donc un outil indispensable pour cerner rapidement le comportement rhéologique d'un matériau. Cependant, la filière capillaire est mieux adaptée pour une mesure fiable de la viscosité et une caractérisation des propriétés rhéologiques du matériau.**

La filière capillaire associée à l'ensemble d'extrusion vis-fourreau va être utilisée dans le chapitre suivant pour la mesure de viscosité de formulations complexes d'EVA 8 associées à des adjuvants.

