



HAL
open science

Simulation et modélisation thermomécanique des opérations d'extrusion réactive

Françoise Berzin, Bruno Vergnes

► **To cite this version:**

Françoise Berzin, Bruno Vergnes. Simulation et modélisation thermomécanique des opérations d'extrusion réactive. Philippe Cassagnau; Véronique Bounor-Legaré. Extrusion réactive: des aspects fondamentaux aux développements industriels, Hermès Sciences, pp.89-116, 2019, Science et Ingénierie des Matériaux, 9782746248717. hal-04058091

HAL Id: hal-04058091

<https://hal.science/hal-04058091>

Submitted on 4 Apr 2023

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.

Chapitre 2

Contrôle du procédé : instrumentation et modélisation

1. Instrumentation (José A. Covas)

2. Simulation et modélisation thermomécanique des opérations

d'extrusion réactive (Françoise Berzin, Bruno Vergnes)

Dans une opération d'extrusion réactive interviennent de très nombreux couplages entre les paramètres de l'écoulement (taux de cisaillement, température, temps de séjour...), l'avancement de la réaction (qui dépend du temps, de la température, du mélange...) et le comportement rhéologique (qui dépend du taux de cisaillement, de la température et éventuellement du taux d'avancement de la réaction). Tout cela fait que, avec un procédé aussi complexe que l'extrusion baxis, il est très difficile de prévoir quel sera l'effet d'une modification d'un paramètre de contrôle (vitesse de rotation, débit...) et donc quasiment impossible d'optimiser le procédé sans passer par de nombreux essais et erreurs. Pour remédier à ce problème, la modélisation fondée sur la mécanique et la thermique des milieux continus est une solution intéressante. Dans ce chapitre, nous montrons comment elle peut être mise en place à partir de différents modules de calcul (écoulement, cinétique, rhéocinétique) et nous illustrons la démarche par un certain nombre de résultats, impliquant ou non le couplage chimie/rhéologie. Nous indiquons pour finir comment ce type de modélisation permet de résoudre rapidement des problèmes d'optimisation et de mise à l'échelle.

2.1. Introduction

Parmi les systèmes d'extrusion existants, les extrudeuses baxis co-rotatives sont les plus utilisées en extrusion réactive, en raison de leurs nombreux avantages (Berzin et Hu, 2004) :

- elles ont une géométrie modulaire, ce qui permet d'adapter le profil de la vis à la réaction à effectuer. Le profil peut être divisé en sections indépendantes successives, chacune ayant des fonctions spécifiques : alimentation et fusion du polymère, injection des réactifs, mélange, développement de la réaction, dévolatilisation et mise en pression ;
- elles ont un remplissage incomplet. Le taux de remplissage des éléments de vis n'est que partiel, ce qui permet d'introduire ou d'éliminer facilement différents ingrédients le long du fourreau, que ce soit sous forme liquide ou solide ;
- elles ont d'importantes capacités de mélange et les conditions de mélange (distributif ou dispersif) peuvent être facilement contrôlées en fonction de la géométrie des blocs d'éléments malaxeurs (nombre d'éléments, épaisseur, angle de décalage...) (Agassant *et al.*, 2017).

Toutes les modifications chimiques effectuées dans les réacteurs discontinus ne peuvent être transposées en extrusion réactive. Les applications les plus utilisées et développées industriellement concernent la polymérisation radicalaire, les modifications chimiques (comme le greffage de l'anhydride maléique sur des polyoléfinés), la dégradation contrôlée du polypropylène, le mélange réactif de polymères ou la vulcanisation dynamique (pour la production des élastomères thermoplastiques).

L'extrusion réactive est donc un procédé important pour modifier et développer de nouveaux systèmes polymères. Cependant, il s'agit d'un procédé complexe, qui implique de nombreux aspects, et dont l'optimisation pose de nombreuses questions, en raison du nombre élevé de variables opérationnelles et de leurs interactions pendant le processus. La figure 2.7, tirée des travaux de Jongbloed *et al.* (1995) sur la polymérisation en extrudeuse du polyméthylméthacrylate, illustre bien le problème : la modification d'un des paramètres de contrôle du procédé (débit, vitesse de rotation, température du fourreau) va entraîner la

modification de toutes les autres variables, sans qu'il soit toujours facile de déterminer l'importance et le sens de ces changements.

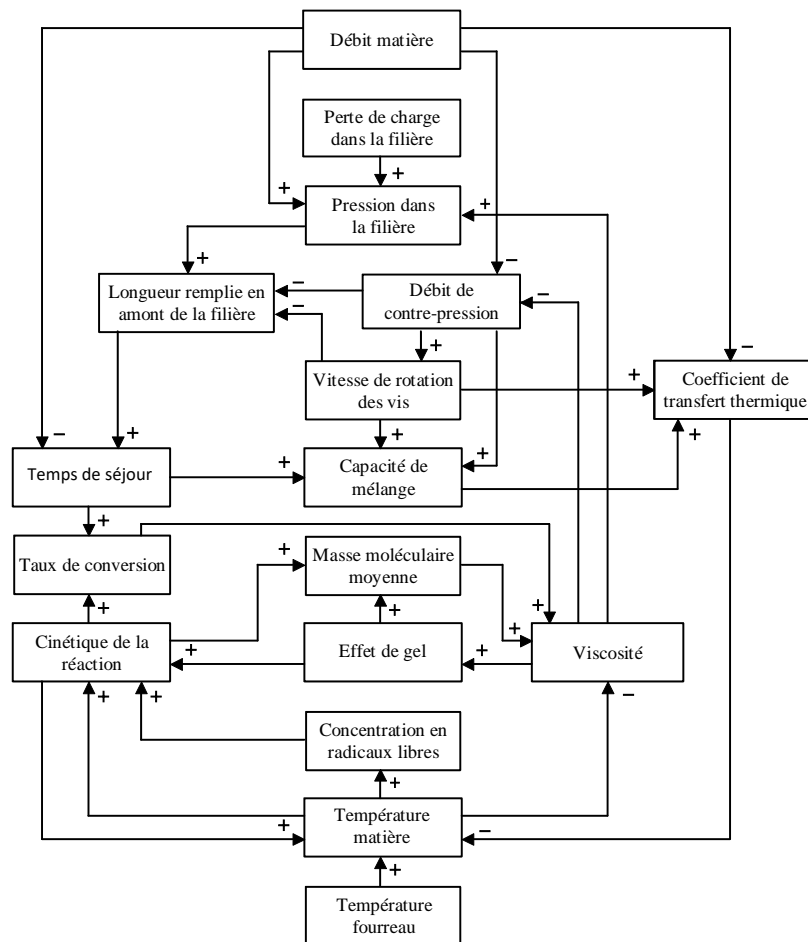


Figure 2.7

Couplage entre les différents paramètres dans le cas de la polymérisation des méthacrylates (d'après Jongbloed *et al.*, 1995)

De plus, la géométrie et la cinématique d'une extrudeuse bivi-vis peuvent être complexes par rapport à celles d'un réacteur discontinu. Par conséquent, il est important de développer des approches théoriques, afin de fournir des outils pour définir les meilleures conditions pour mener à bien une opération d'extrusion réactive et pour contrôler le procédé. C'est l'objectif que nous allons développer au cours de ce paragraphe.

2.2. Principes et défis de la modélisation des procédés d'extrusion réactive

La modélisation d'un procédé d'extrusion peut faire appel à différentes approches, que nous pouvons classer en gros dans deux catégories principales : les approches de type génie chimique et celles fondées sur la mécanique des milieux continus. Les premières consistent à considérer l'extrudeuse comme une série de réacteurs chimiques idéaux, généralement des réacteurs continus parfaitement agités (RCPA) et des réacteurs piston (RP) (Villiermaux, 1994). Selon sa géométrie, le profil de vis est décrit par un certain nombre de ces réacteurs, reliés par des écoulements directs et des retours possibles. Un bilan de masse global pour chaque réacteur permet de définir un ensemble d'équations, dont la résolution conduit à une approximation des conditions d'écoulement. De tels modèles ont été proposés par Ganzeveld *et al.* (1993) pour la polymérisation du n-butylméthacrylate, Kim et White (1994) pour la transestérification du copolymère EVA, ou Michaeli *et al.* (1995) pour la polymérisation du polystyrène et du polyamide. Cette approche, qui permet entre autres des applications en contrôle de procédé, est largement détaillée au paragraphe 3.

La deuxième approche est fondée sur la mécanique des milieux continus. Dans ce cas, les conditions d'écoulement sont calculées en résolvant les équations classiques de la mécanique (conservation de la masse et de la quantité de mouvement, bilan énergétique) en fonction de la géométrie locale, de la cinématique et des conditions aux limites. Comme le calcul est fondé sur les conditions réelles et non sur une représentation idéale, il n'est théoriquement pas nécessaire d'ajuster les paramètres et ces modèles peuvent être totalement prédictifs dès lors que les données physiques et chimiques sont connues. Par conséquent, ils peuvent être utilisés non seulement pour calculer une certaine configuration de procédé, mais aussi pour l'optimiser et pour prédire ce qu'il pourrait arriver lors du changement des conditions opératoires ou du profil de vis. Ces modèles sont plus flexibles et précis que les modèles de génie chimique, mais ils prennent aussi plus de temps et sont généralement peu appropriés pour le contrôle direct des procédés. Dans la bibliographie, cette approche a été utilisée par

Kye et White (1996) pour la polymérisation de l' ϵ -caprolactame, Kim et White (1997) pour le greffage de l'anhydride maléique sur le polypropylène, Fukuoka (2000) pour le greffage du vinylsilane sur le polyéthylène, Zagal *et al.* (2005) pour la polymérisation du méthacrylate de méthyle et Wu *et al.* (2007, 2008) pour la polymérisation de styrène et de copolymères styrène-butadiène.

Pour développer un modèle théorique d'extrusion réactive, différents modules sont nécessaires :

- un module pour la description des conditions d'écoulement dans la géométrie complexe d'une extrudeuse baxis ;
- un module pour la description de la réaction chimique, en fonction des valeurs locales du temps de séjour, de la température, des conditions de mélange, de la concentration des réactifs... ;
- un module pour la description des changements physiques et rhéologiques induits dans le matériau par le développement de la réaction.

Tous ces modules doivent ensuite être couplés afin de fournir les résultats souhaités.

2.2.1. Module d'écoulement dans l'extrudeuse baxis

Le premier ingrédient d'un modèle d'extrusion réactive est un outil permettant de calculer les conditions d'écoulement le long de l'extrudeuse baxis. Dans une telle machine, la géométrie et les conditions locales sont complexes : l'écoulement est instationnaire, non isotherme et tridimensionnel. Bien sûr, même si des simulations 3D sont maintenant possibles (Zhu *et al.*, 2005 ; Valette *et al.*, 2009), des simplifications sont nécessaires pour obtenir un logiciel rapide d'exécution et convivial. Nous avons développé il y a quelques années dans notre laboratoire le logiciel Ludovic[®] (Vergnes *et al.*, 1998). Ce logiciel commercialisé (SCC, Saint

Etienne, France) repose sur une approche unidimensionnelle (1D). Il permet de calculer les principaux paramètres thermomécaniques du procédé (pression, température, temps de séjour, taux de cisaillement, taux de remplissage...), de la trémie à la sortie de la filière, y compris le transport solide, la fusion et l'écoulement à l'état fondu.

Les éléments de vis sont divisés en sous-éléments correspondant aux chambres en forme de C. Le calcul des différents paramètres thermomécaniques est effectué séparément pour chaque type d'élément (élément de vis à pas direct, partiellement ou totalement rempli, élément de vis à pas inverse, bloc d'éléments malaxeurs) et pour la filière. L'écoulement dans les éléments de vis est calculé en résolvant les équations de Stokes dans la section du chenal perpendiculaire aux vis. Cette analyse peut être appliquée aux éléments à vis à pas direct ou inverse. L'écoulement dans un bloc d'éléments malaxeurs est modélisé en considérant uniquement l'écoulement périphérique autour d'un élément. En raison de la géométrie et de la vitesse relative du fourreau, cet écoulement est caractérisé par un pic de pression situé juste avant le sommet de l'élément. Comme les sommets de deux éléments adjacents sont décalés, les profils de pression sont également décalés, créant ainsi un gradient de pression axial, parallèle à l'axe des vis. Ce gradient de pression axial est déterminé en décalant les profils de pression adjacents et en ajustant le niveau de pression global pour obtenir le débit imposé dans la direction axiale (Lafleur et Vergnes, 2014).

Ces modèles élémentaires sont mis en série pour obtenir une description globale du champ d'écoulement le long de l'extrudeuse. Pour la fusion, l'utilisateur peut choisir un modèle de fusion spécifique (Vergnes *et al.*, 2001) ou supposer plus simplement que la fusion est instantanée et a lieu avant le premier élément restrictif du profil de vis. Par la suite, le matériau est considéré comme complètement fondu et peut remplir le chenal de vis, totalement ou partiellement selon la géométrie locale et les conditions d'écoulement.

L'extrusion bivis est un procédé fortement non-isotherme. Pour calculer la température moyenne sur la profondeur du chenal (seul choix compatible avec une approche mécanique 1D), on effectue un bilan thermique local, comprenant la puissance dissipée par déformation, le transfert de chaleur vers le fourreau et les vis et la chaleur de réaction.

Comme les vis ne sont pas totalement remplies, le taux de remplissage local n'est pas connu a priori. Ainsi, le calcul doit commencer à la sortie de la filière et remonter vers l'amont. Mais, comme la température finale du produit est inconnue, une procédure itérative doit être utilisée : à partir d'une valeur arbitraire de la température de sortie, le logiciel calcule les pressions et les températures successives dans chaque élément, jusqu'au premier élément restrictif où la fusion est supposée avoir lieu. La convergence est obtenue lorsque, à cet endroit, la température est égale à la température de fusion du produit. Sinon, la température de sortie est modifiée et le calcul est réitéré.

Le logiciel Ludovic[®] a été évidemment validé par de nombreuses expériences (Carneiro *et al.*, 2000) et des comparaisons avec des simulations numériques plus développées (Durin *et al.*, 2014). Il a été largement utilisé depuis plus de quinze ans pour développer des approches spécifiques dans divers domaines de l'extrusion, comme par exemple la cuisson-extrusion de produits céréaliers (Della Valle *et al.*, 2011), la réalisation de mélanges de polymères (Delamare et Vergnes, 1996), la préparation de nanocomposites (Vergnes, 2018) et, plus récemment, la rupture de fibres de verre (Ville *et al.*, 2013) ou de fibres végétales (Berzin et Vergnes, 2017) lors du compoundage.

Comme il s'agit d'un modèle 1D, il ne fournit que des valeurs moyennes des températures et des temps de séjour locaux. Mais nous verrons plus tard que c'est largement suffisant pour prédire le développement d'une réaction le long des vis.

2.2.2. Module cinétique

D'un point de vue théorique, une réaction chimique est généralement décrite par une ou plusieurs équations cinétiques, contrôlées par des constantes de vitesse. Les équations de bilan écrites sur les différentes espèces chimiques permettent de définir un degré de conversion ou un taux d'avancement en fonction du temps et de la température. Selon les cas, le calcul de l'avancement de la réaction peut être plus ou moins complexe. Par exemple, pour la polymérisation de l' ϵ -caprolactone présentée au paragraphe 3 du chapitre 1, le taux de conversion est simplement obtenu à partir d'une fonction analytique (Gimenez *et al.*, 2000a). Par contre, dans le même paragraphe, on a montré que la dégradation contrôlée du polypropylène nécessitait de résoudre un système de huit équations différentielles partielles. Dans ce dernier cas, des résolutions numériques sont nécessaires à chaque étape du développement de la réaction le long des vis.

Pour ce module, le plus difficile est souvent de définir avec précision les différentes constantes de vitesse impliquées dans les équations cinétiques. Nous verrons au paragraphe 3.3 que, dans certains cas, une petite erreur dans les valeurs de ces constantes peut induire de grandes différences dans la simulation de l'ensemble du procédé.

2.2.3. Module rhéocinétique

Dans certains cas (par exemple, les réactions d'échange), les modifications induites par la réaction sur le comportement rhéologique du matériau sont négligeables. Les propriétés du polymère non modifié peuvent donc être utilisées pendant tout le procédé. Dans d'autres cas (dégradation contrôlée, polymérisation), ces changements sont dominants. Par exemple, dans un procédé de polymérisation, la viscosité peut augmenter de 10^{-3} Pa.s (monomère) à 10^3 Pa.s (polymère) entre la trémie et la sortie de la filière. Ces changements sont évidemment à

prendre en compte. Il est donc nécessaire de développer des modèles rhéocinétiques, qui décrivent la variation de la viscosité (et éventuellement d'autres paramètres matériau) en fonction de l'avancement de la réaction. Pour plus de détails, nous renvoyons le lecteur au paragraphe 3 du Chapitre 1 qui est consacré à ces modèles rhéocinétiques.

2.2.4. Couplages

Dans le cas le plus simple, lorsque le comportement rhéologique n'est pas modifié par la réaction chimique, il n'y a pas de couplage à mettre en place. Un seul calcul avec le logiciel Ludovic[®] fournit, entre autres, les évolutions locales du temps de séjour et de la température le long du profil de vis. A partir de cette information, on peut directement calculer l'évolution de la réaction en utilisant le module cinétique.

Par contre, si la réaction chimique modifie le comportement rhéologique, il est nécessaire de coupler les différents modules : la réaction se développe en fonction des valeurs locales de température et de temps de séjour, ce qui fait évoluer la viscosité du matériau qui, à son tour, affecte les conditions d'écoulement locales. Pour gérer ces couplages complexes, la procédure suivante est adoptée : une première simulation est effectuée sans prendre en compte la réaction, pour définir une première estimation des taux de remplissage, des temps de séjour et des températures. Ce calcul se fait comme d'habitude de l'aval vers l'amont. Ensuite, une deuxième simulation est lancée, cette fois de l'amont vers l'aval, en couplant pas à pas les conditions d'écoulement, le développement de la réaction et les changements de viscosité :

- le temps de séjour t_i et la température T_i sont connus dans l'élément i ;
- à partir de l'équation cinétique, l'incrément de conversion est calculé dans l'élément i ;
- à partir du nouveau taux de conversion, la viscosité correspondante est calculée à l'aide du module rhéocinétique ;
- avec la nouvelle viscosité, l'écoulement et donc les nouvelles valeurs de temps de séjour et de température sont calculés dans l'élément $i + 1$.

On progresse ainsi, élément par élément, le long de l'extrudeuse jusqu'à la sortie de la filière. Des informations détaillées sur cette méthode peuvent être trouvées par ailleurs (Berzin, 1998).

2.2.5. Problèmes et défis

Comme expliqué précédemment, la simulation proposée est fondée sur un certain nombre d'approximations et d'hypothèses. Nous verrons au paragraphe 3 que les résultats sont souvent satisfaisants, mais des questions importantes demeurent ouvertes à la discussion. Il reste des défis à relever pour développer ces modèles et restreindre les limitations qui en résultent pour s'approcher au mieux des situations réelles. Voici quelques exemples de ces questions :

- les équations cinétiques sont généralement établies dans des conditions statiques et isothermes, très loin des conditions réelles rencontrées dans l'extrudeuse. Les valeurs des constantes cinétiques mesurées en laboratoire sont-elles encore valables pour la simulation de l'extrusion? Comment serait-il possible de définir une cinétique précise dans des conditions réelles d'extrusion?
- le milieu réactif est supposé homogène dans le modèle. Les réactifs sont supposés être mélangés parfaitement et instantanément avec le polymère fondu. Il est clair que, dans certains cas, le mélange local devrait être évalué et introduit comme paramètre dans les équations cinétiques pour tenir compte de l'hétérogénéité du système réel (Tang *et al.*, 2016). C'est entre autre le cas lorsqu'une phase faiblement visqueuse (liquide) est dispersée dans un milieu très visqueux (Cassagnau *et al.*, 2005).
- la dégradation des réactifs, les réactions secondaires ou parasites induites par les températures élevées sont difficiles à prendre en compte, même si elles jouent un rôle dans le procédé réel. Ces effets sont généralement négligés, car il est difficile de calculer en même temps de nombreuses réactions différentes, ayant des effets complexes sur le matériau ;

- les exemples présentés au paragraphe 2.3 concernent les modifications chimiques de matériaux monophasés. Dans le cas de mélanges réactifs, par exemple, une nouvelle difficulté résulte de la morphologie du système. Selon les conditions d'écoulement et de réaction, la morphologie du mélange (phase dispersée ou co-continue, dimensions des gouttelettes ou des fibrilles...) pourra évoluer au cours du procédé. En effet, elle est en partie contrôlée par le rapport des viscosités entre la phase dispersée et la matrice. Il est donc nécessaire de tenir compte de cette évolution morphologique, ce qui pose de sérieux problèmes pour la modélisation. Si certains modèles existent pour calculer les changements morphologiques d'un mélange de polymères le long d'une extrudeuse baxis (Delamare et Vergnes, 1996), ils sont limités au cas d'une phase mineure dispersée dans une matrice. L'inversion de phase, rencontrée par exemple lors de la vulcanisation dynamique des élastomères thermoplastiques, est loin d'être modélisée, comme les changements correspondants du comportement rhéologique.

2.3. Exemples de modélisations

2.3.1. Transestérification d'un copolymère EVA

Ce premier exemple concerne la modification par une réaction de transestérification d'un copolymère éthylène-acétate de vinyle (EVA) par un alcool primaire aliphatique (octanol-1) (Berzin, 1998 ; Berzin et Vergnes, 1998). Cette réaction, catalysée par un composé organométallique (dilaurate de dibutyl étain, DBTDL), conduit à la substitution de certains groupes acétate de vinyle de l'EVA par les groupes hydroxyle de l'alcool (figure 2.8).

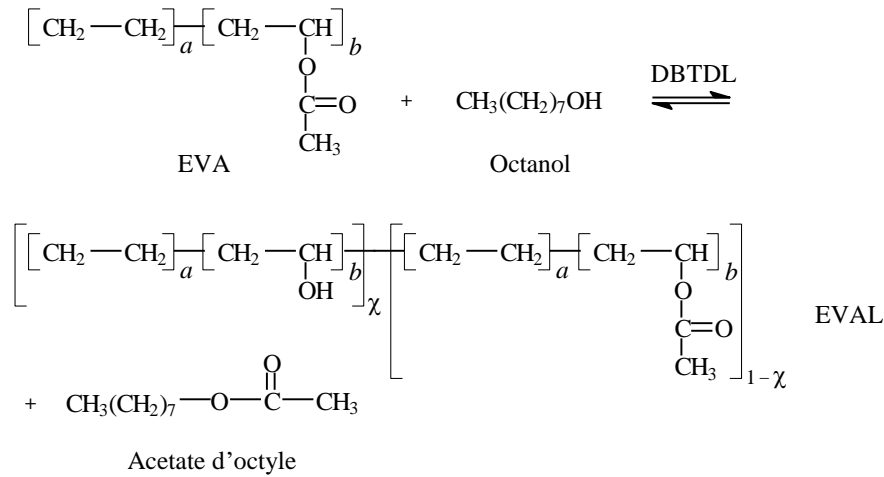


Figure 2.8

Réaction de transestérification d'un copolymère EVA

C'est une réaction équilibrée, avec un maximum de 65% de conversion à l'équilibre, dont la cinétique est bien connue et documentée (Bouilloux, 1985). Comme il n'y a pas de changement important dans la structure de l'EVA, la réaction n'influence pas la viscosité et un modèle rhéocinétique n'est pas nécessaire dans ce cas.

Le taux de conversion χ est calculé par :

$$\chi (\%) = \frac{[A]_0 - [A]_t}{[A]_0} \times 100 \quad (3)$$

où $[A]_t$ et $[A]_0$ sont les concentrations en EVA aux temps t et $t = 0$.

La concentration en EVA en fonction du temps et de la température est donnée par :

$$[A]_t = \frac{(C_2 + C_3) \exp[-C_3 k_1 (1 - 1/K_e) t] + (C_3 - C_2) C_4}{2C_4 - 2 \exp[-C_3 k_1 (1 - 1/K_e) t]} \quad (4)$$

avec:

$$C_1 = -\frac{[A]_0^2 + [A]_0 [C]_0 + [A]_0 [D]_0 + [C]_0 [D]_0}{K_e - 1} \quad (5)$$

$$C_2 = \frac{K_e}{K_e - 1} \left([B]_0 - [A]_0 + \frac{2[A]_0 + [C]_0 + [D]_0}{K_e} \right) \quad (6)$$

$$C_3 = \sqrt{C_2^2 - 4C_1} \quad (7)$$

$$C_4 = \frac{2 [A]_0 + C_2 + C_3}{2 [A]_0 + C_2 - C_3} \quad (8)$$

$[B]_0$, $[C]_0$, $[D]_0$, sont les concentrations initiales en octanol, EVA modifié et acétate d'octyle.

k_1 et k_2 sont les constantes de vitesse des réactions directe et inverse, qui dépendent de la température par une loi d'Arrhenius. K_e est le rapport de ces constantes : $K_e = k_1/k_2$.

Des essais de transestérification ont été effectués sur une extrudeuse Clextral BC45 (Firminy, France) avec les caractéristiques suivantes : entraxe 45 mm, diamètre de la vis 50 mm, longueur 1200 mm. La figure 2.9 présente le profil de vis. Il comprend deux éléments à pas inverse et un bloc de 12 éléments malaxeurs décalés à 60°, 6 à droite et 6 à gauche. Les réactifs (mélange liquide d'alcool et de DBTDL) sont injectés après la fusion de l'EVA, c'est-à-dire après le premier pas inverse.

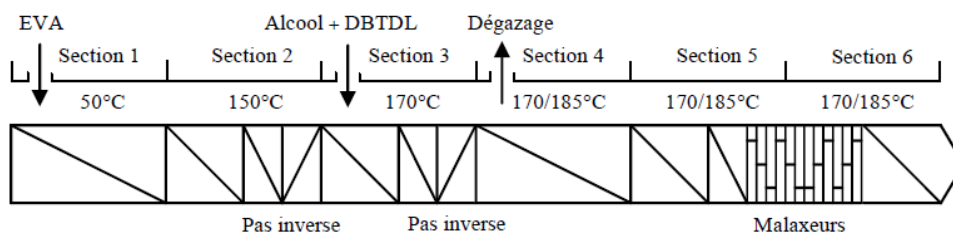


Figure 2.9

Profil de vis utilisé pour la transestérification de l'EVA

La figure 2.10 montre l'évolution le long des vis de la température locale, du temps de séjour cumulé et du taux de conversion, calculé à partir de ces deux paramètres (Eqs. (3) à (8)), pour les conditions suivantes : débit d'EVA : 10 kg/h, réactifs (alcool et DBTDL) : 2,35 kg/h, vitesse de vis : 150 tr/mn, température du fourreau : 185°C. On constate que l'avancement de la réaction suit l'évolution du temps de séjour cumulé. Il augmente principalement dans les sections remplies de l'extrudeuse, c'est-à-dire dans le deuxième élément à pas inverse et dans le bloc d'éléments malaxeurs. Ces zones sont également caractérisées par une augmentation locale de la température, due à la dissipation visqueuse, qui accélère la réaction. Le taux de

conversion final est de 38% dans les conditions choisies (il est au maximum de 65% à l'équilibre).

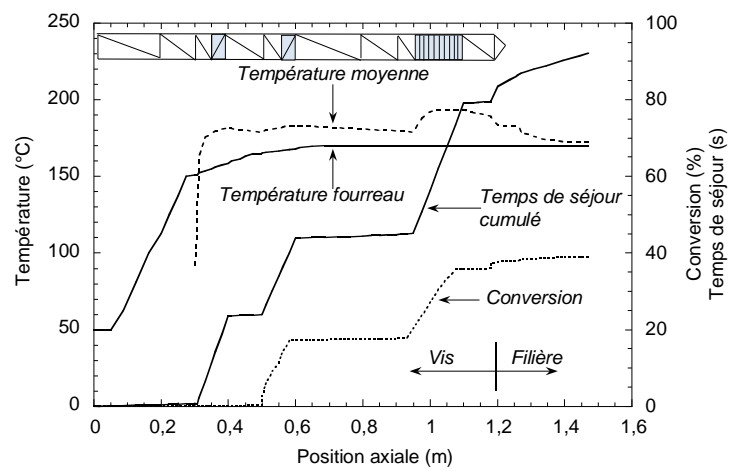


Figure 2.10

Transestérification de l'EVA. Evolution le long des vis de la température moyenne, du temps de séjour cumulé et du taux de conversion (d'après Berzin et Vergnes, 1998)

Pour tester l'influence du débit (1,9, 4,1 et 6,7 kg/h), la vitesse des vis a été fixée à 100 tr/min, la température du fourreau à 170°C et le rapport fonctionnel des espèces engagées (rapport molaire de l'alcool et de l'EVA) à 1. Au cours de ces essais, nous avons utilisé des vitesses de vis relativement faibles pour que le temps de séjour du système réactif dans l'extrudeuse soit suffisamment long et obtenir ainsi des taux de conversion significatifs. A vitesse constante, toute diminution du débit entraîne une baisse du taux de remplissage, une augmentation significative du temps de séjour et n'a presque aucune influence sur la température le long des vis (Lafleur et Vergnes, 2014). Par conséquent, l'avancement de la réaction est directement lié au temps de séjour et diminue donc lorsque le débit augmente (figure 2.11). Cependant, on peut observer que, même pour le débit le plus bas, l'équilibre réactionnel n'est pas atteint en une seule passe à travers l'extrudeuse. Nous pouvons également voir sur la figure 2.11 que la corrélation entre les prévisions du modèle et les résultats expérimentaux obtenus à partir de mesures infrarouges est satisfaisante.

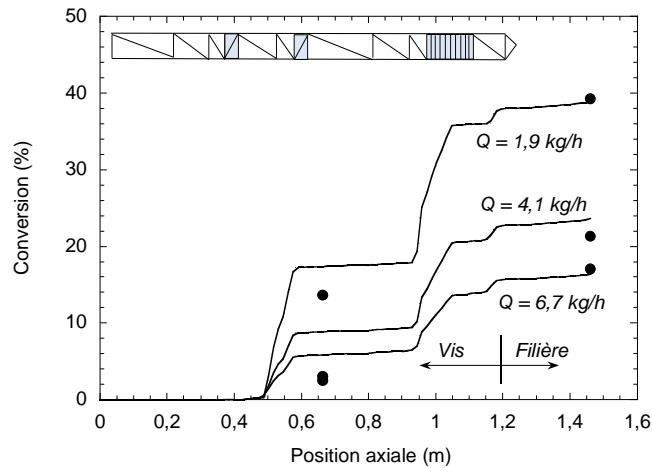


Figure 2.11

Transestérification de l'EVA. Evolution du taux de conversion le long des vis avec le débit. Symboles : points expérimentaux, lignes : modèle théorique (d'après Berzin et Vergnes, 1998).

La figure 2.12 montre l'influence de la vitesse des vis (50, 100 et 150 tr/min) pour un débit total de 4,1 kg/h (EVA : 3,45 kg/h, alcool + DBTDL : 0,65 kg/h) et une température de fourreau de 185°C. Une augmentation de la vitesse de rotation induit à la fois une diminution du temps de séjour et une augmentation de la température du produit par dissipation visqueuse (Lafleur et Vergnes, 2014). Ainsi, les deux principaux paramètres contrôlant la réaction varient dans des directions opposées et il est donc impossible de prévoir intuitivement quel sera le résultat final sur l'avancée de la réaction. Seul un modèle peut donner la réponse : on peut voir sur la figure 2.12 que la réaction progresse davantage à une vitesse de vis plus élevée. Une augmentation de la vitesse des vis de 50 à 150 tr/min permet d'augmenter le taux de conversion de 27 à 38%. Ainsi, dans ce cas, l'effet de la température prend le pas sur celui du temps de séjour, mais ce résultat ne peut en aucun cas être considéré comme une règle générale. On peut vérifier qu'il est effectivement dû à une température de produit plus élevée tout au long des vis, ce qui entraîne une accélération de la réaction malgré un temps de séjour plus court. Il est également confirmé sur la figure 2.12 que l'accord avec l'expérience est très satisfaisant, que ce soit à la sortie de la filière ou le long des vis.

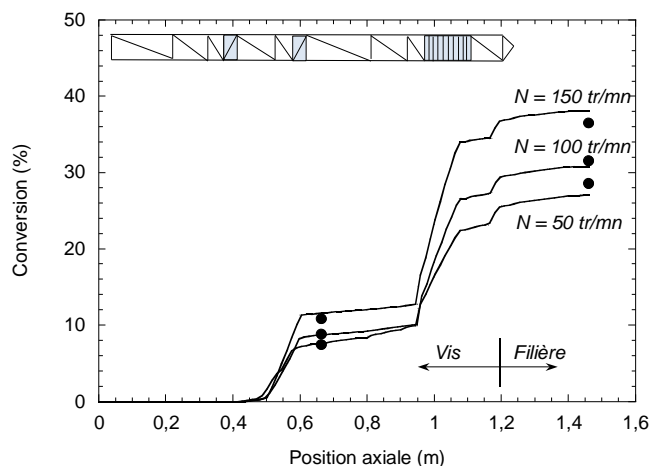


Figure 2.12

Transestérification de l'EVA. Evolution du taux de conversion le long des vis avec la vitesse de rotation.

Symboles : points expérimentaux, lignes : modèle théorique (d'après Berzin et Vergnes, 1998).

Nous avons également testé l'influence de la température du fourreau. Comme prévu, une température plus élevée conduit à une conversion plus importante, de 21 à 32% lorsque la température augmente de 170 à 185°C (à 100 tr/min et 3.9 kg/h).

Le modèle proposé a été validé pour différents débits d'alimentation, température du fourreau, stoechiométrie et taille de l'extrudeuse (diamètres de 30 et 50 mm). Dans tous les cas, la figure 2.13 montre que ce modèle, sans aucun paramètre ajustable, est très proche de la réalité.

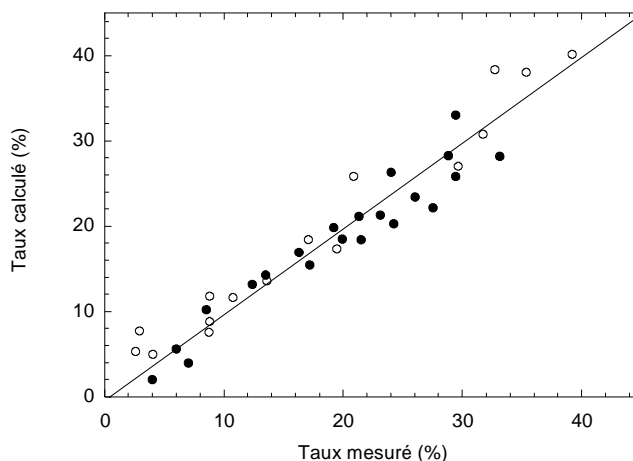


Figure 2.13

Transestérification de l'EVA. Comparaison entre résultats expérimentaux et modèle théorique, pour deux machines (○ Clextral BC45, ● Werner ZSK 30) et différentes conditions de procédé (d'après Berzin, 1998).

2.3.2. Dégradation contrôlée du polypropylène

La dégradation contrôlée par le peroxyde est utilisée pour ajuster le niveau de viscosité du polypropylène (PP) polymérisé à l'aide de la catalyse Ziegler-Natta. Les modèles cinétiques et rhéocinétiques correspondants ont été présentés aux paragraphes 3.2.2 et 3.4.2 du chapitre 1.

Des expériences ont été effectuées sur le profil de vis présenté sur la figure 2.14, dans différentes conditions de procédé : concentration en peroxyde de 0,025 à 0,4% en poids, débit d'alimentation de 2,5 à 20 kg/h, vitesse des vis de 150 à 300 t/min (Berzin, 1998 ; Berzin *et al.*, 2000).

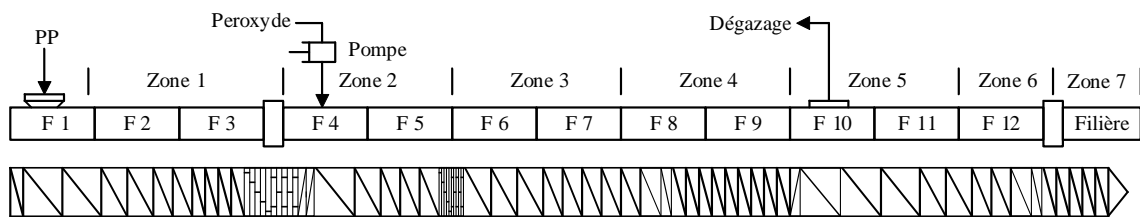


Figure 2.14

Dégradation contrôlée du PP. Profil de vis utilisé.

L'extrudeuse est une Werner ZSK 30 (entraxe : 26 mm, diamètre de vis : 30,85 mm, longueur : 1160 mm). Le peroxyde (du 2,5-diméthyle-2,5-di-t-butyle-peroxy hexane ou DHBP, Trigonox 101 de AKZO) est injecté avec une pompe après la fusion du PP. Le DHBP a été préalablement dilué dans du trichlorobenzène (solution à 15 ou 20%) pour avoir une bonne précision sur le débit de la pompe, même pour des concentrations inférieures à 1000 ppm (c'est-à-dire 0,1% en poids). La fusion du PP est assurée par un bloc d'éléments malaxeurs suivis d'éléments de vis à pas inverse. L'injection du DHBP se fait dans une zone partiellement remplie, juste après la zone de fusion. La zone de réaction comprend d'abord un bloc d'éléments malaxeurs, pour bien mélanger et homogénéiser le DHBP et le PP. Ensuite, on trouve plusieurs éléments de vis de convoyage avec des pas décroissants et, finalement, un

élément de vis à pas inverse, situé juste avant la zone de dévolatilisation (située au fourreau 10). A ce niveau, la réaction de dégradation du polypropylène est stoppée par l'élimination de tous les réactifs volatils résiduels par une pompe à vide.

Les calculs sont effectués selon la méthodologie présentée au paragraphe 2.2, avec un fort couplage entre l'écoulement, la réaction chimique et le comportement rhéologique. Un exemple de résultat est présenté à la figure 2.15, qui montre l'évolution le long des vis de la température, du temps de séjour cumulé et de la masse molaire moyenne en poids.

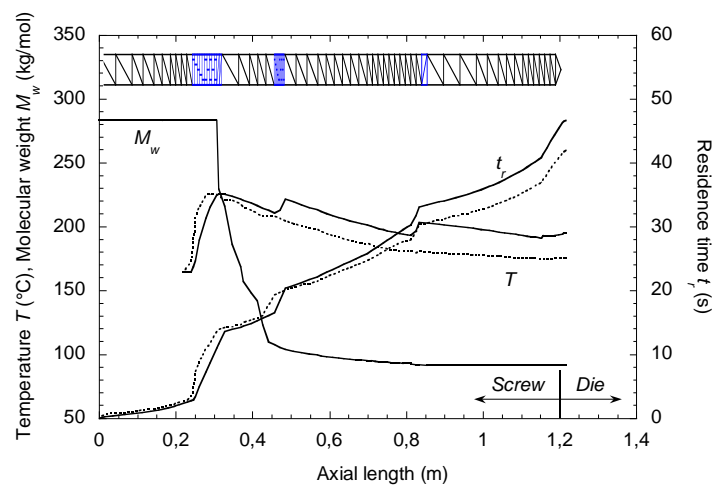


Figure 2.15

Dégradation contrôlée du PP. Exemple de résultats calculés : évolution de la masse moyenne en poids M_w , du temps de séjour cumulé t_r et de la température T le long des vis. Les traits pleins correspondent au premier calcul, les traits pointillés au résultat final, après couplage entre avancement de la réaction et viscosité (d'après Berzin *et al.*, 2000).

Comme déjà indiqué, le calcul de la réaction commence à l'endroit où le DHBP a été injecté et s'arrête au niveau de la zone de dévolatilisation. On peut voir que la température du matériau après la prise en compte de la réaction diminue par rapport à la température du PP vierge. Ceci est dû au fait que la puissance dissipée, et donc l'autoéchauffement, diminue si la viscosité diminue. À de fortes concentrations de peroxyde, la puissance dissipée devient rapidement très faible et la température moyenne dépend essentiellement du transfert de chaleur. La température matière est alors proche de la température de régulation du fourreau

(ici 170°C). Au contraire, en ce qui concerne le temps de séjour, aucune variation significative n'a été observée, car le temps de séjour est quasi indépendant de la viscosité du polymère (Lafleur et Vergnes, 2014). Enfin, en ce qui concerne la masse molaire, nous observons une diminution très rapide après le point d'injection, de 283 à 93 kg/mol, suivie d'une variation beaucoup plus lente jusqu'à l'orifice de l'évent.

Comme expliqué au paragraphe 3.2.2 du Chapitre 1, l'efficacité du peroxyde f est un paramètre inconnu du modèle. Dans la littérature, des valeurs entre 0,6 et 1 sont souvent utilisées, pour une concentration en peroxyde inférieure à 0,1% en poids (Tzoganakis *et al.*, 1988a, 1988b ; Ryu *et al.*, 1992). Dans ce travail, nous avons décidé de définir f en fonction de la concentration de peroxyde. Par conséquent, les valeurs d'efficacité ont été obtenues en ajustant le modèle pour obtenir à la sortie de la filière la masse molaire moyenne expérimentale, mesurée par chromatographie d'exclusion stérique, dans des conditions de procédé fixes (débit : 10 kg/h, vitesse des vis : 225 tr/min, température du fourreau : 170°C) (figure 2.16). Nous pouvons ensuite en déduire le changement d'efficacité avec la concentration en peroxyde (figure 2.17). On observe que f diminue avec la teneur en peroxyde (de 0,96 à 0,44 lorsque la teneur en peroxyde augmente de 280 à 3780 ppm), avec des valeurs en accord avec celles trouvées dans la littérature. Nous pouvons maintenant étudier l'influence des conditions opératoires, en supposant f constant et simplement défini en fonction de la quantité de peroxyde.

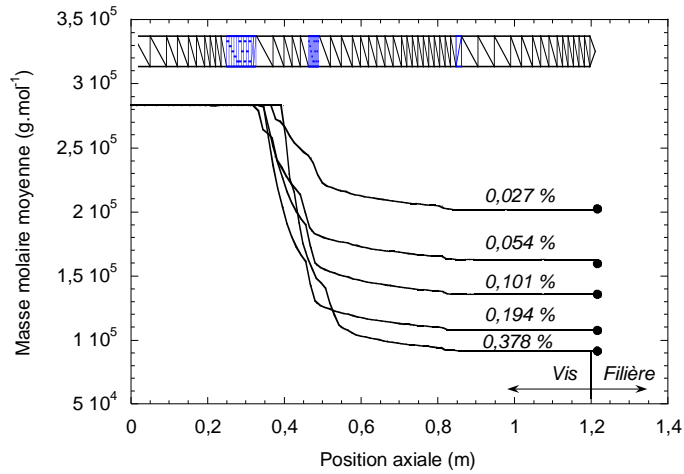


Figure 2.16

Dégradation contrôlée du PP. Evolution de la masse moyenne en poids le long des vis pour différentes teneurs en peroxyde (10 kg/h, 225 tr/min). Symboles : points expérimentaux, lignes : modèle théorique (d'après Berzin *et al.*, 2000).

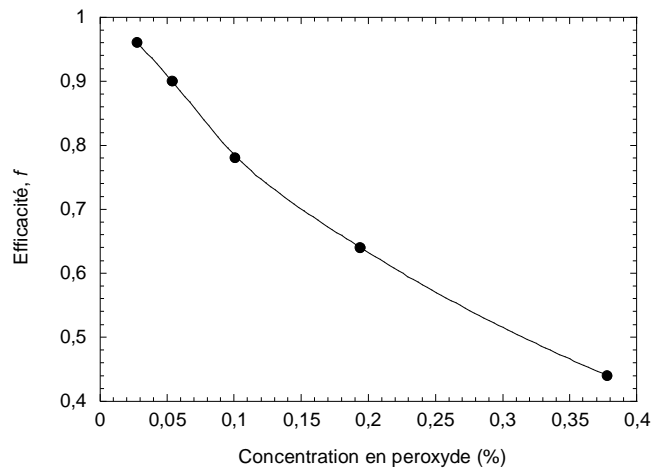


Figure 2.17

Dégradation contrôlée du PP. Evolution de l'efficacité du peroxyde en fonction de sa concentration (d'après Berzin *et al.*, 2000).

La figure 2.18 montre l'influence du débit d'alimentation (2,5, 10 et 20 kg/h) à une vitesse de vis constante de 225 tr/min, pour une teneur en peroxyde de 1000 ppm (0,1% en poids). Nous observons que la dégradation est plus importante à faible débit d'alimentation, ce qui s'explique directement par l'augmentation du temps de séjour. L'accord avec les points expérimentaux à la sortie de la filière est très satisfaisant.

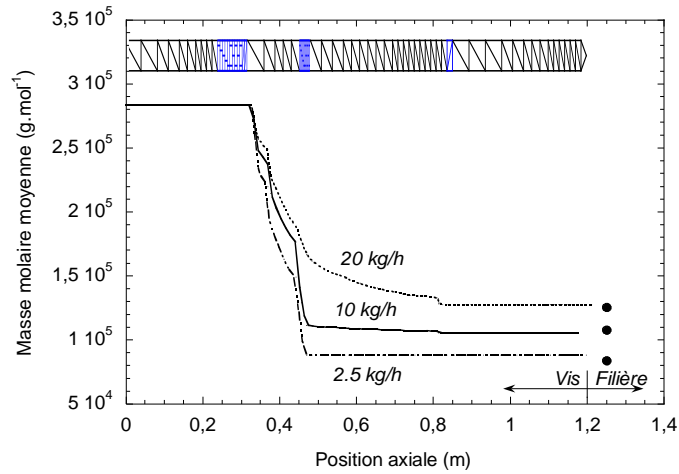


Figure 2.18

Dégradation contrôlée du PP. Evolution de la masse moyenne en poids le long des vis pour différents débits (225 tr/min, 170°C). Symboles : points expérimentaux, lignes : modèle théorique (d'après Berzin *et al.*, 2000).

Comme on l'a vu dans le cas de la transestérification de l'EVA, l'influence de la vitesse des vis à débit d'alimentation constant est plus difficile à prévoir, car la vitesse a un effet opposé sur les deux paramètres contrôlant la réaction. Comme le montre la figure 2.19, malgré une réduction du temps de séjour de 65 à 40 s lorsque la vitesse augmente de 150 à 300 tr/min, le PP est plus dégradé à vitesse de rotation élevée.

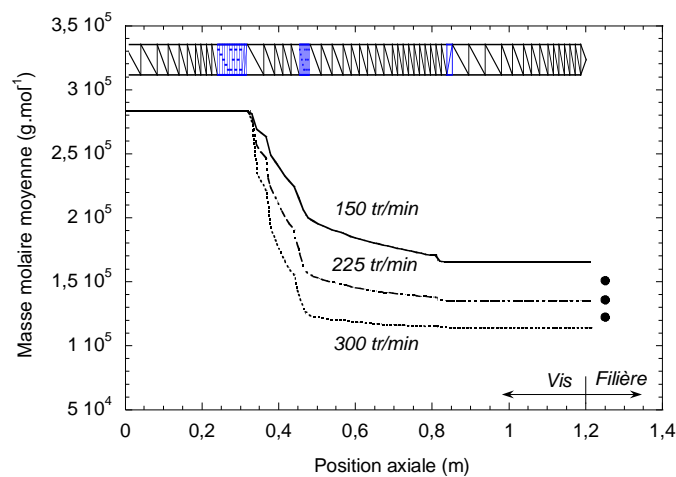
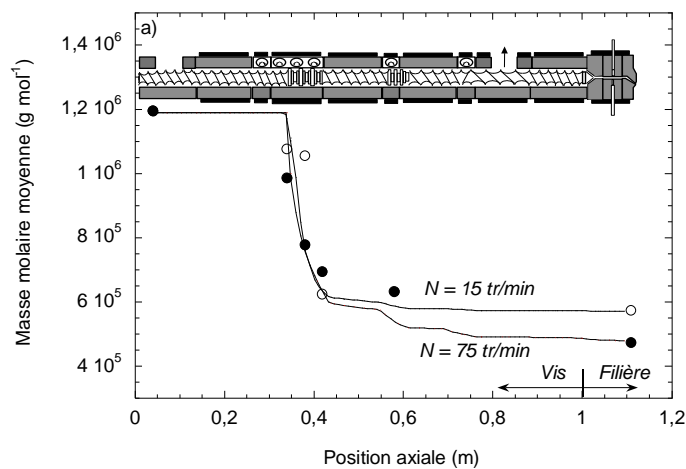


Figure 2.19

Dégradation contrôlée du PP. Evolution de la masse moyenne en poids le long des vis pour différentes vitesses de rotation (10 kg/h, 170°C). Symboles : points expérimentaux, lignes : modèle théorique (d'après Berzin *et al.*, 2000).

Ceci est dû au fait que, tout au long des vis, les températures sont plus élevées à une vitesse supérieure de la vis. Encore une fois, les prévisions du modèle sont confirmées par les mesures par chromatographie effectuées à la sortie de la filière.

D'autres essais ont été effectués pour vérifier la validité du modèle théorique, en utilisant une extrudeuse plus grande (Werner & Pfleiderer ZSK 58, avec un diamètre de vis de 58 mm et une longueur de 2552 mm) et un autre polymère (copolymère éthylène-propylène). Dans tous les cas, l'accord entre les masses molaires calculées et celles mesurées était correct (Berzin, 1998). Il a également été vérifié que les résultats restent valables pour des échantillons prélevés le long des vis. À cette fin, nous avons utilisé une extrudeuse de laboratoire (Leistritz LSM 30-34, avec un diamètre de vis de 34 mm et une longueur de 986 mm) de l'université du Minho (Portugal), équipée de dispositifs d'échantillonnage spécifiques (Machado *et al.*, 1999). Les échantillons ont été rapidement collectés le long de l'axe de l'extrudeuse, sans arrêter la machine, et immédiatement trempés dans de l'azote liquide, afin d'éviter toute réaction ultérieure. On voit sur la figure 2.20 que la forte diminution prévue par le modèle après l'injection de peroxyde est également observée dans toutes les expériences (Berzin *et al.*, 2006). L'accord lors de la variation d'autres paramètres (vitesse de la vis, température du fourreau) s'est avéré également satisfaisant.



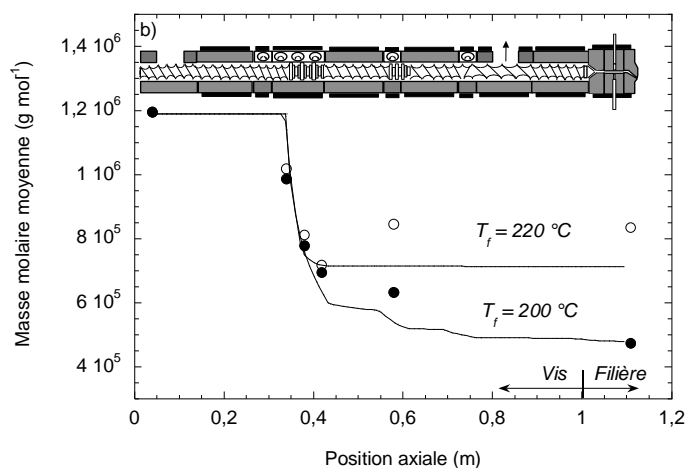


Figure 2.20

Dégradation contrôlée du PP. Evolution de la masse moyenne en poids le long des vis pour (a) différentes vitesses de rotation, (b) différentes températures de fourreau. Symboles : points expérimentaux, lignes : modèle théorique (d'après Berzin *et al.*, 2006).

2.3.3 Polymérisation de l' ϵ -caprolactone

La polycaprolactone est un polymère synthétique à la fois biodégradable et biocompatible. Il est principalement utilisé dans le domaine médical pour des applications comme la peau artificielle, les prothèses résorbables et les systèmes à libération contrôlée pour les médicaments. Elle est obtenue à partir de la polymérisation de l' ϵ -caprolactone, initiée par des composés organométalliques, tels que des alcoxydes métalliques et des carboxylates. Pour cet exemple aussi, les modèles cinétiques et rhéocinétiques ont été présentés aux paragraphes 3.2.1 et 3.4.1 du Chapitre 1.

Des essais de polymérisation ont été effectués à l'Institut de Matériaux Polymères (Université Claude Bernard, Lyon 1) dans une extrudeuse bavis de laboratoire (Leistritz LSM 30-34, diamètre de vis : 34 mm, longueur : 1200 mm), équipé d'une filière plate (Gimenez *et al.*, 2000b). Le profil de vis est composé d'éléments de convoyage et de trois blocs d'éléments malaxeurs, décalés à 30°. Le mélange réactif (monomères d' ϵ -caprolactone et initiateur (tétrapropoxyde de titane)) est injecté avec une pompe dans le fourreau, juste avant le premier

bloc d'éléments malaxeurs. Les deux autres blocs en aval permettent le mélange et l'homogénéisation du matériau en cours de polymérisation.

L'équation cinétique globale a été déterminée par Gimenez *et al.* (2000a ; 2000b). La conversion du monomère $C(t)$ est définie comme suit :

$$C(t) = \frac{[M]_0 - [M]_t}{[M]_0} \quad (9)$$

où $[M]_0$ est la concentration initiale en monomère et $[M]_t$ la concentration au temps t . La variation de la conversion du monomère avec le temps dans des conditions isothermes peut être décrite par :

$$C(t) = 1 - \exp(-K t) \quad (10)$$

où la constante cinétique K est exprimée par :

$$K = k [I]_0^{\alpha_c} \exp\left(-\frac{E_a}{RT}\right) \quad (11)$$

où k est une constante, $[I]_0$ la concentration initiale de l'initiateur, α_c l'ordre partiel relatif à l'initiateur, E_a l'énergie d'activation et R la constante des gaz parfaits. Le taux de conversion est donc fonction du temps, de la température, de l'ordre partiel relatif à l'initiateur et du rapport $[M]_0/[I]_0$.

A partir du taux de conversion, la masse molaire moyenne en poids peut être calculée par :

$$M_w(t) = (0.39 [M]_0 / [I]_0 + 79) C(t) + \bar{M}_0 \quad (12)$$

où \bar{M}_0 est la masse molaire du monomère. La réaction de polymérisation induit une grande variation de viscosité. Par conséquent, la définition d'une viscosité évolutive est nécessaire. Comme indiqué au paragraphe 3.4.1 du Chapitre 1, Gimenez *et al.* (2000c) ont montré qu'il fallait tenir compte de deux régimes, avec un effet de dilution :

- au-dessous d'une masse critique, il existe un régime de Rouse, avec un comportement newtonien :

$$\eta = K_0 a_T M_w^{1.2} C \quad (13)$$

où K_0 est un paramètre, a_T le facteur de glissement en température et C la conversion définie par l'équation (10) ;

- au-dessus de cette masse critique, il existe un régime enchevêtré avec une viscosité décrite par une loi de Carreau-Yasuda, où la viscosité limite η_0 et le temps caractéristique τ sont fonctions de la masse molaire moyenne en poids :

$$\eta = \eta_0 \left[1 + (\tau \dot{\gamma})^a \right]^{(m-1)/a} \quad (14)$$

$$\eta_0 = A \exp \left[\frac{E_v}{R} \left(\frac{1}{T} - \frac{1}{T_0} \right) \right] M_w^{\alpha_v} C^4 \alpha_c \quad (15)$$

$$\lambda = B \exp \left[\frac{E_v}{R} \left(\frac{1}{T} - \frac{1}{T_0} \right) \right] M_w^{\alpha_t} C^{1.75} \alpha_c \quad (16)$$

où A , B , E_v , α_v et α_t sont des constantes définies expérimentalement par Gimenez *et al.* (2000c).

Ces différents modèles ont été introduits dans le logiciel Ludovic[®] pour calculer l'évolution de la conversion des monomères le long des vis (Poulesquen *et al.*, 2001). Un exemple de résultat est présenté à la figure 2.21. Il correspond aux conditions opératoires suivantes : débit : 4 kg/h, vitesse de vis : 100 tr/min, température du fourreau : 160°C, $[M]_0/[I]_0 = 1000$.

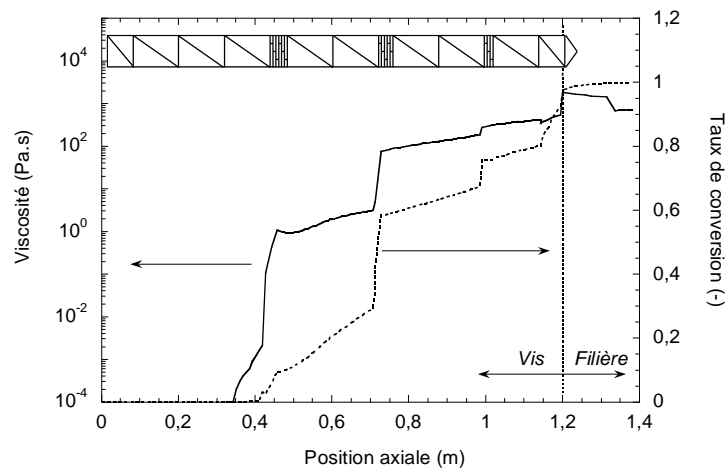


Figure 2.21

Polymérisation de l' ϵ -caprolactone. Evolution du taux de conversion (--) et de la viscosité (—) le long des vis (d'après Poulesquen *et al.*, 2001).

La polymérisation commence au point d'injection, avec une viscosité très faible (10^{-4} Pa.s), et augmente principalement dans les blocs d'éléments malaxeurs, en raison des temps de séjour importants. La polymérisation est terminée juste avant la sortie de la filière, où la viscosité atteint une valeur de 900 Pa.s.

Pour une température inférieure du fourreau (105°C), la figure 2.22, montre l'influence du débit d'alimentation à vitesse de vis constante. Dans ces conditions, la polymérisation n'est que partielle et est inférieure lorsque le débit est élevé, en raison d'un temps de séjour plus court. Les mesures expérimentales du taux de conversion par RMN confirment ces résultats.

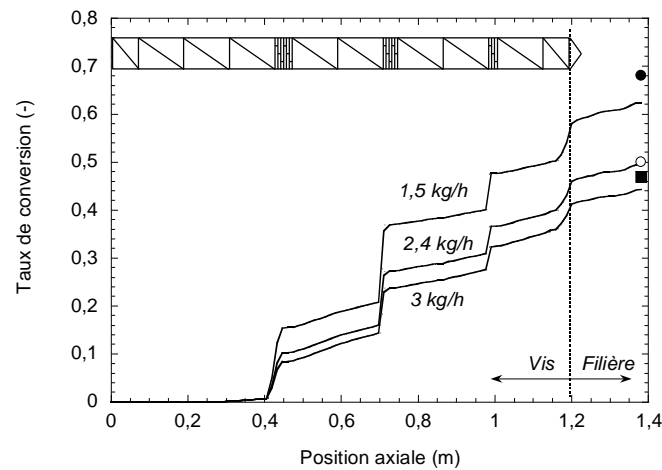


Figure 2.22

Polymérisation de l' ϵ -caprolactone. Influence du débit sur le taux de conversion à vitesse de vis constante.

Symboles : points expérimentaux mesurés par RMN (● : 1,5 kg/h; ○ : 2,4 kg/h; ■ : 3 kg/h) ; lignes : modèle théorique (d'après Poulesquen *et al.*, 2001).

Une comparaison générale entre résultats expérimentaux et théoriques est proposée à la figure 2.23, pour différentes conditions de vitesse de vis, de température du fourreau et de rapport $[M]_0/[I]_0$. Quelles que soient les conditions, l'accord est assez bon et valide à la fois la simulation et les données cinétiques. Cependant, il faut dire que la qualité de la prédiction dépend fortement de la précision des données cinétiques. Pour les cas à basse température du fourreau, le calcul avec un ordre partiel α_c de 3, mesuré expérimentalement, a conduit à une sous-estimation de la conversion par un facteur deux. Les résultats corrects n'ont été obtenus

qu'en changeant pour une valeur de 2,74, indiquant la grande sensibilité du modèle à ce paramètre.

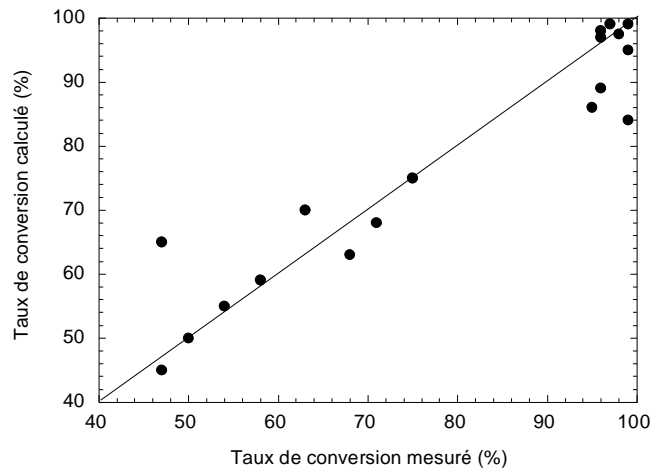


Figure 2.23

Polymérisation de l' ϵ -caprolactone. Comparaison générale entre taux de conversion calculé et mesurés (d'après Poulesquen *et al.*, 2001).

2.3.4 Optimisation et mise à l'échelle

Dans des problèmes aussi complexes que ceux que nous venons de présenter, la modélisation est d'un grand secours pour comprendre ce qu'il se passe pendant le procédé et essayer de l'améliorer. Un autre problème récurrent dans les applications industrielles est la mise à l'échelle, c'est-à-dire le passage d'un test de laboratoire (débit de quelques kg/h) à des conditions industrielles (plusieurs tonnes/h, sur une machine avec un diamètre dix fois plus grand). Cela peut se faire bien entendu sur une base d'essai et erreur, mais cela coûte très cher en termes de temps d'immobilisation des machines et de personnel, et de consommation de matières premières. Encore une fois, l'utilisation d'une approche de modélisation peut être largement bénéfique. Dans ce dernier paragraphe, nous verrons, sans entrer dans les détails, comment l'utilisation d'un logiciel comme Ludovic[®] peut aider à résoudre ce type de problème.

Bien sûr, comme nous le verrons plus loin, nous pouvons utiliser directement le logiciel pour optimiser un procédé par essai et erreur, tout comme nous pourrions le faire

expérimentalement (mais bien plus vite et beaucoup moins cher!). Mais il est également possible, si la résolution numérique est assez rapide, de mettre en œuvre des techniques d'optimisation plus sophistiquées. Nous avons utilisé des algorithmes génétiques pour optimiser les conditions d'extrusion dans le cas d'un profil de vis fixé (Gaspar-Cunha *et al.*, 2002). Ces algorithmes imitent les processus d'évolution naturelle dans lesquels une population initiale évolue sur des générations successives par différentes opérations (sélection, croisement, mutation...). La procédure d'optimisation comporte alors trois modules:

- une fonction objectif qui quantifie la performance de chaque individu (c'est-à-dire ici chaque cas d'extrusion calculé) par rapport à la performance visée ;
- un module de calcul, ici Ludovic[®], qui calcule la valeur de la fonction objectif pour chaque individu ;
- un algorithme d'optimisation, qui contrôle l'évolution de la population vers l'objectif. La population initiale est choisie au hasard (par exemple en faisant varier la vitesse des vis, le débit et la température du fourreau). A chaque nouvelle génération, l'algorithme sélectionne les meilleurs individus et en génère de nouveaux.

Nous pouvons définir une fonction objectif globale F_o , comprenant plusieurs cibles différentes, éventuellement contradictoires, avec des poids associés :

$$F_o = \sum_i w_i f_i \quad (17)$$

où w_i sont les poids ($\sum_i w_i = 1$) et f_i des fonctions spécifiques, définies pour maximiser, minimiser ou garder un paramètre dans un intervalle fixe. Si l'on considère le cas de la polymérisation de l' ϵ -caprolactone présentée au paragraphe 3.3, nous pouvons définir les objectifs suivants : on cherche à obtenir le débit maximal, avec une conversion complète, une température maximale du matériau le long des vis inférieure à 220°C et une puissance consommée inférieure à 9,2 kW. La figure 2.24 montre le taux de conversion obtenu à 150

tr/min, en fonction des valeurs de Q/Q_{max} et T_b/T_{bmax} (débit maximal $Q_{max} = 30$ kg/h, température maximale du fourreau $T_{bmax} = 210^\circ\text{C}$). On constate qu'il existe un plateau de conversion à 100%, pour des températures élevées et des débits faibles. Cela montre que plusieurs combinaisons possibles de débit et de température conduisent au même résultat. Sur l'ensemble des conditions testées, la meilleure valeur de la fonction objectif a été obtenue à 200 tr/min et 26 kg/h, avec une consommation de 6,4 kW et un temps de séjour de 32 s.

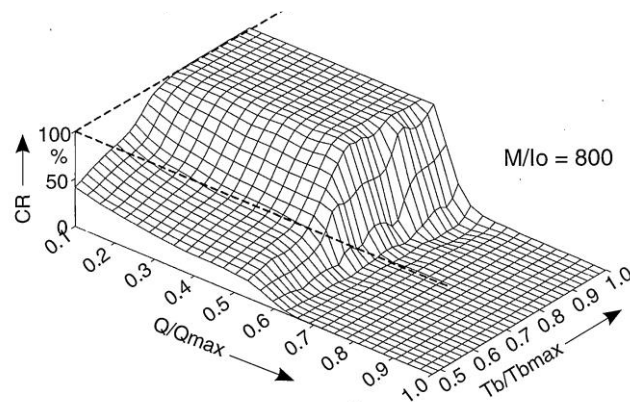


Figure 2.24

Polymérisation de l' ϵ -caprolactone. Evolution du taux de conversion (CR) avec le débit et la température du fourreau (d'après Gaspar-Cunha *et al.*, 2002).

Avec des techniques d'optimisation plus avancées (algorithmes évolutionnaires multi-objectifs), nous avons ensuite étudié le problème de l'optimisation du profil de vis (Gaspar-Cunha *et al.*, 2005 ; Teixeira *et al.*, 2011). Les optimisations réalisées conduisent souvent à de nombreuses solutions, plus ou moins équivalentes, parmi lesquelles il est souvent difficile de discerner la meilleure. Il est possible que le logiciel Ludovic[®] soit parfois trop simplifié pour tirer le meilleur parti de ces techniques. Dans ce cas, nous pouvons revenir à une optimisation "manuelle", en utilisant simplement le code sur une base d'essai et erreur.

A titre d'exemple, nous allons revenir sur la transestérification d'un copolymère EVA présentée au paragraphe 2.3.1. Dans un premier temps, pour le profil de vis présenté à la figure 2.9, nous allons optimiser les conditions opératoires pour obtenir une conversion maximale (65%) au débit le plus élevé possible. On se fixe comme critère une température

matière inférieure à 210°C pour éviter l'évaporation des réactifs. Pour limiter cette température, on choisit de réguler le fourreau à 170°C. On effectue alors un certain nombre de simulations dans lesquelles on fait varier la vitesse de rotation (de 100 à 250 tr/min) et le débit de l'EVA (de 4 à 20 kg/h) pour un rapport fonctionnel ($[B]_0/[A]_0$) égal à 1. Les résultats sont présentés figure 2.25, où nous avons tracé des isovaleurs de taux de conversion et de température en fonction des conditions opératoires.

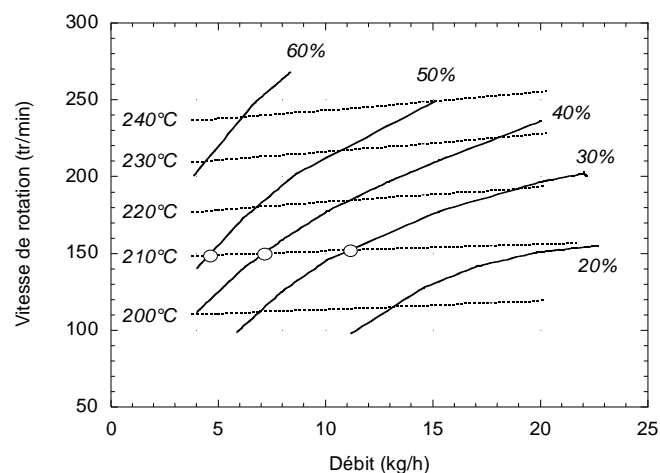


Figure 2.25

Fenêtre de processabilité pour la transestérification de l'EVA sur une extrudeuse Clextral BC45. Les symboles représentent les conditions optimales.

On constate que le taux de conversion est maximal à faible débit et forte vitesse de rotation, mais que la température matière est le facteur limitant. Les points se situant sur l'isotherme 210°C représentent les conditions optimales. Il n'y a donc pas un, mais des optimaux. C'est ce que l'on appelle un front de Pareto (Gaspar-Cunha *et al.*, 2002), dont une représentation est donnée figure 2.26. Suivant les priorités de l'utilisateur, celui-ci pourra choisir de privilégier le taux de conversion à faible débit ou le débit à taux de conversion moindre.

Ce premier résultat indique qu'il est difficile avec le profil de vis choisi d'obtenir des taux de conversion intéressants. On va donc le modifier pour tenter d'améliorer les résultats. Pour cela, il faut augmenter le temps de séjour, donc le taux de remplissage de l'extrudeuse. On va

donc rajouter des éléments de mélange (blocs malaxeurs décalés à -30°), tout en décalant les deux pas inverses vers l'amont. Le nouveau profil est indiqué figure 2.27.

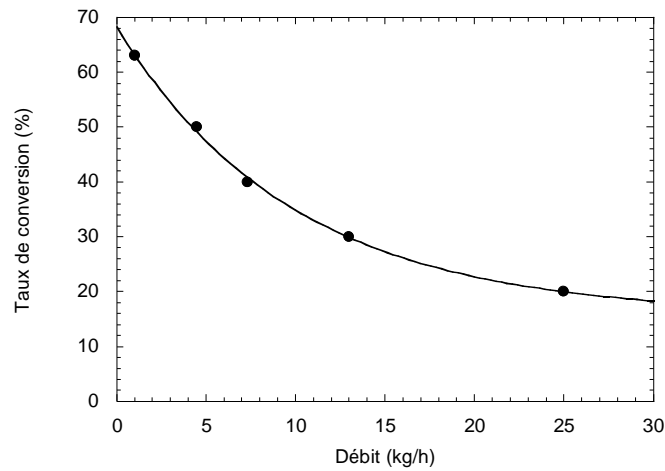


Figure 2.26

Conditions optimales pour la transestérification de l'EVA sur une extrudeuse Clextral BC45.

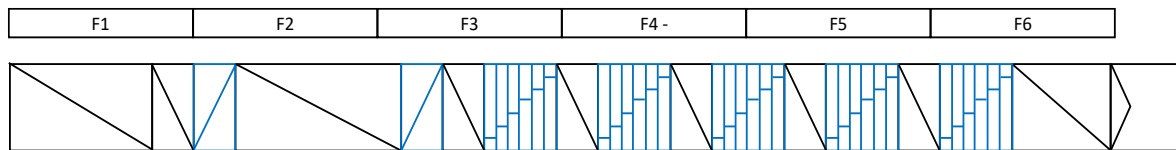


Figure 2.27

Profil de vis modifié (extrudeuse Clextral BC45).

Avec ce nouveau profil, on réitère l'opération précédente, c'est-à-dire la simulation d'un nombre important de cas, afin d'obtenir une fenêtre de processabilité et des conditions optimales. La figure 2.28 montre que ce changement de géométrie entraîne un gain important au niveau des performances de la machine : pour un taux de conversion de 40% par exemple, on peut passer de 7 à 14 kg/h, soit un facteur 2.

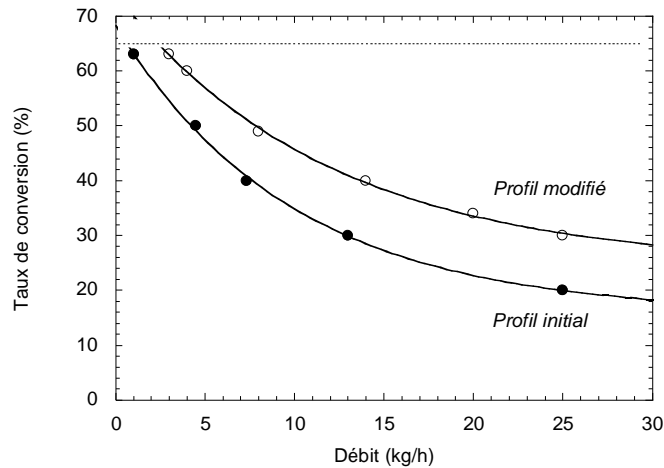


Figure 2.28

Conditions optimales pour la transestérification de l'EVA. Comparaison des deux profils de vis.

Maintenant que le procédé est au point sur cette taille de machine, on voudrait savoir quels résultats pourraient être obtenus sur une machine de taille supérieure, par exemple une Clextral Evolum 88, de diamètre 88 mm. Dans les cas d'extrusion simples, il existe une règle basique d'extrapolation fondée sur une approche volumique, qui s'exprime par :

$$\frac{Q_1}{Q_2} = \left(\frac{D_1}{D_2} \right)^3 \quad (18)$$

où Q_1 et D_1 sont les débits et diamètres de la machine de grande taille et Q_2 et D_2 ceux de la machine de petite taille. En extrusion réactive, nous allons voir que les choses sont plus complexes.

En premier lieu, il faut définir le profil de vis. On le choisit similaire à celui de la BC45 (figure 2.27), c'est-à-dire avec le même nombre et le même type d'éléments restrictifs (pas inverses, blocs malaxeurs), situés en des endroits homothétiques par rapport à la longueur de la machine. On effectue ensuite des simulations à différentes vitesses de rotation (de 100 à 300 tr/min) et débits (de 20 à 100 kg/h, estimés à partir de la relation (18)), pour une température de régulation de 185°C. Les résultats sont indiqués figure 2.29. Par rapport à la BC45, on peut utiliser des vitesses beaucoup plus importantes, mais les débits atteints avec des taux de conversion élevés restent faibles.

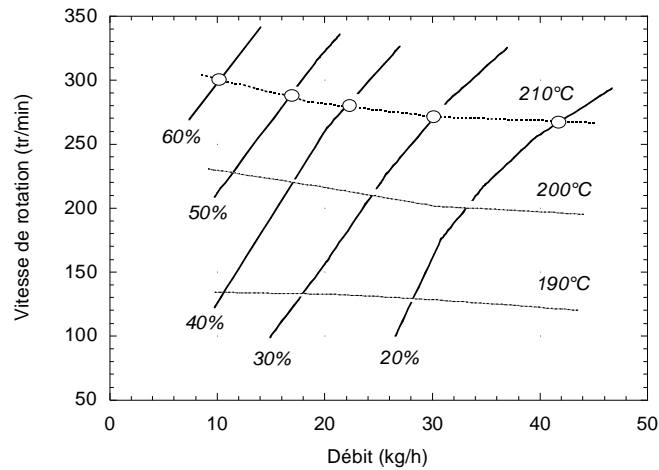


Figure 2.29

Fenêtre de processabilité pour la transestérification de l'EVA sur une extrudeuse Clextral Evolum 88. Les symboles représentent les conditions optimales.

Pour pallier cet inconvénient, une solution est de rallonger l'extrudeuse : en passant de $L/D = 24$ à $L/D = 36$ (c'est-à-dire de 6 à 9 éléments de fourreau), on peut rajouter plus d'éléments restrictifs et rallonger significativement le temps de séjour. La figure 2.30 présente le nouveau profil : sur les 6 premiers fourreaux, il est identique au précédent. Sur les trois derniers, on a rajouté quatre nouveaux blocs malaxeurs à 90° .

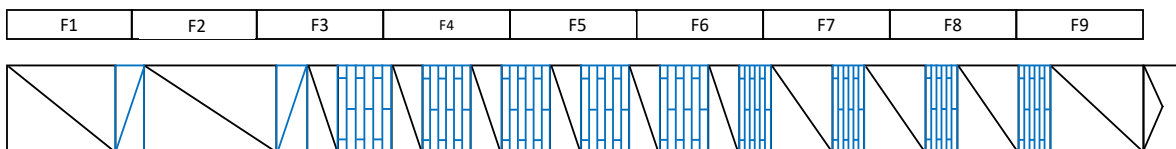


Figure 2.30

Profil de vis rallongé (extrudeuse Clextral Evolum 88).

Avec cette nouvelle configuration, la même méthodologie de calcul permet d'obtenir de nouvelles conditions optimales, qui sont reportées sur la figure 2.31. On constate cette fois une nette amélioration et des conditions nettement plus favorables que sur la BC45. On a aussi indiqué sur la figure ce que l'on aurait prédit si l'on avait utilisé la relation (18). On voit que cette équation est très optimiste et surestime largement le calcul avec Ludovic[®]. Cela montre que, lorsqu'un procédé aussi complexe que l'extrusion réactive est en jeu, les règles

simples ne sont plus applicables et la simulation devient un outil nécessaire pour obtenir des résultats fiables.

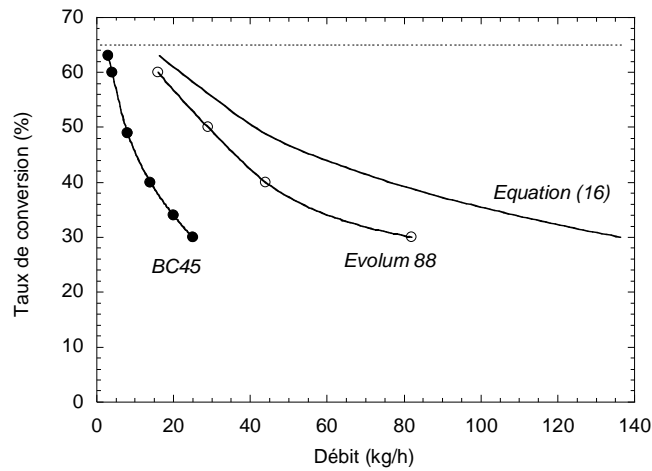


Figure 2.31

Conditions optimales pour la transestérification de l'EVA. Comparaison des deux extrudeuses.

2.4. Conclusion

Nous avons montré dans ce paragraphe qu'il est possible de modéliser avec une bonne précision des opérations d'extrusion réactive. Les différents exemples présentés sous forme d'illustrations (sur différents systèmes, différents types de réaction et différentes machines) montrent clairement la polyvalence de la méthode. À cette fin, il est nécessaire d'avoir des données cinétiques précises et, si c'est le cas, des lois rhéocinétiques. En fonction de la réaction envisagée, des modèles prédictifs sans paramètre ajustable peuvent être développés, comme dans le cas de la transestérification de l'EVA. Ces modèles sont très utiles pour comprendre les conditions du procédé et pour l'optimiser, par exemple en modifiant le profil de vis et/ou les conditions opératoires. En outre, les difficiles problèmes de mise à l'échelle peuvent être plus facilement abordés à l'aide de ces modèles. Dans d'autres cas, des paramètres ajustables demeurent dans les équations cinétiques, qui, avant toute application, doivent être estimés à travers des expériences. Même si ces modèles peuvent présenter des

imperfections, ils apparaissent comme des outils efficaces quand on s'intéresse à de tels systèmes complexes, par rapport aux procédures d'essai et erreur systématiques.

Outre les exemples que nous venons de passer en revue, des résultats sur la cationisation de l'amidon sont présentés au paragraphe 1.2.1 du chapitre 3. Nous avons également appliqué avec succès cette approche de modélisation à d'autres réactions, telles que le mélange réactif de deux polymères (De Loor *et al.*, 1996), l'extension des chaînes de polyamide 12 avec un agent de couplage (Chalamet *et al.*, 2002) et la synthèse de nanoparticules in situ dans une matrice PP avec une méthode sol-gel (Bahloul *et al.*, 2011). En considérant les mécanismes de rupture et d'érosion des charges solides comme des équations cinétiques, il a même été possible d'aborder le mélange dispersif de particules lors du compoundage, en utilisant ces modèles d'extrusion réactive (Berzin *et al.*, 2002).

3. Modélisation dynamique et commande (Françoise Couenne, Christian Jallut)

Le développement d'un système de commande d'un procédé industriel nécessite de disposer d'un ou plusieurs modèles dynamiques de ce procédé pour divers objectifs. On doit pouvoir réaliser des simulations numériques pour tester les lois de commande envisagées. Un modèle du système peut le cas échéant être utilisé pour l'application en temps réel d'une loi de commande. Enfin, un modèle plus simple, de nature locale (valable sur une gamme opératoire réduite par exemple) et parfois purement empirique, peut être utilisé pour concevoir et calculer une loi de commande : en automatique, cette opération s'appelle la synthèse d'une loi de commande.

Dans tous les cas, le modèle dynamique du procédé considéré doit représenter son comportement d'ensemble, c'est-à-dire les relations dynamiques entre les variables de commande et les variables que l'on désire contrôler et qui sont mesurées. Les modèles

développés dans ce contexte, lorsqu'ils sont issus de l'application de principes physiques premiers (modèles dits de connaissance), sont spatialement moins résolus que des modèles d'études plus détaillés comme les modèles d'écoulement par exemple car ils doivent représenter plus de phénomènes et leurs couplages et ceci à une plus grande échelle.

Dans ce chapitre seront décrits les principaux modèles dynamiques développés dans le cas de l'extrusion en général et réactive en particulier. Nous insisterons plus particulièrement sur les modèles de connaissance. Les problèmes de commande généralement adressés et les techniques utilisées seront ensuite décrits. On insistera sur les méthodes de commande plutôt que sur l'instrumentation. Pour rendre la lecture de cette partie plus aisée, un exposé préliminaire concernant la problématique de la commande des systèmes est proposé.

3.1. Situation du sujet : la problématique de l'automatique continue

L'automatique continue concerne la conception et la mise en œuvre de moyens physiques ou logiciels permettant de maîtriser le comportement des procédés au cours du temps suivant des spécifications données. Un procédé est affecté par des entrées. Parmi les **variables d'entrée**, on distingue :

- les entrées de commande sur lesquelles on peut agir ;
- les entrées sur lesquelles il n'existe aucun moyen d'action. Dans cette deuxième classe d'entrées, l'automaticien est particulièrement vigilant aux perturbations, mesurées ou non, et à leur effet sur le comportement dynamique du procédé. Un des objectifs de la commande sera, par exemple dans le cas de la **régulation**, de rendre certaines variables les plus insensibles possibles à ces perturbations. L'effet des entrées sur le procédé est visible par les mesures obtenues par le biais de capteurs. On appellera ces mesures **variables de sortie**.

La détermination des commandes à appliquer à un procédé, de telle sorte que les variables de sortie satisfassent un comportement précisé par le cahier des charges, nécessite le choix d'un

modèle du procédé. Cette étape de modélisation sera accompagnée, si nécessaire, d'une campagne d'estimation de paramètres à partir de données expérimentales. Pour ces modèles, on appelle **variable d'état** une variable pour laquelle une équation différentielle ou aux dérivées partielles en temps est définie. Dans le premier cas, on parle de **système localisé** et de **système réparti** dans le second.

Il faut, à ce niveau, faire la distinction entre un modèle dynamique de simulation, qui va décrire finement le procédé et qui peut être très coûteux en temps de calcul, et un modèle dynamique pour la commande, qui sera plus simple afin de pouvoir effectuer en ligne le calcul de la loi de commande.

Si le modèle de connaissance issu des différents bilans d'énergie, de matière, de quantité de mouvement est de faible complexité, il est parfaitement compatible pour la synthèse de commande. Cependant, ces modèles de connaissance peuvent s'avérer trop complexes et des modèles simplifiés sont nécessaires. Les modèles de commande peuvent être des modèles simplifiés issus d'un modèle de connaissance, comme par exemple :

- des modèles linéarisés autour d'un point de fonctionnement qui représentent le comportement du procédé autour de conditions opératoires données ;
- des modèles dynamiques simplifiés : par exemple, le modèle de commande ne représente que des dynamiques lentes qui ont un effet à long terme pour un système comportant aussi des dynamiques rapides qui se stabilisent rapidement.

A défaut d'un modèle de connaissance basé sur des principes physiques, on peut utiliser des modèles de type « boîte noire » qui représentent empiriquement le comportement entrée-sortie du procédé sur une gamme opératoire donnée (McAfee et Thompson, 2007 ; Liu *et al.*, 2012). Dans ce cas, le sens physique des variables d'état est partiellement ou totalement perdu. Ces modèles sont obtenus à partir de données expérimentales couvrant la gamme opératoire choisie et d'une étape d'identification.

Il existe de très nombreuses techniques pour calculer une loi de commande. On appelle **correcteur** l'entité physique ou logicielle qui transmet au procédé la commande adéquate par le biais de l'actionneur. La technique industrielle la plus largement utilisée est le correcteur **PID**, utilisé pour la régulation autour d'un point de fonctionnement (Ogata, 2010). Cette technique permet de satisfaire la régulation de la plupart des procédés industriels. Le correcteur PID est calculé sur la base d'un modèle décrit par des équations différentielles linéaires. Cependant, nous verrons que, dans le cas des extrudeuses, le correcteur PID n'est pas satisfaisant. Nous développerons dans la section 3 les principales approches de commande utilisées pour les extrudeuses.

3.2. Modélisation dynamique des procédés d'extrusion

3.2.1. Introduction

Dans le cas d'un procédé d'extrusion, la situation peut être résumée par la figure 2.32. Un modèle dynamique dédié à la synthèse d'une loi de commande doit pouvoir représenter l'effet des variables d'entrée du système, à savoir la vitesse de rotation de la vis, le débit et les caractéristiques du flux de matière en entrée et le profil des flux de chauffage/refroidissement le long du fourreau, sur l'ensemble des variables d'état et de sortie de l'extrudeuse. Parmi les variables d'entrée, certaines sont des variables de commande, comme la vitesse de rotation de la vis ou le profil de chauffage/refroidissement, tandis que d'autres sont des grandeurs subies par le système, comme les propriétés de la matière en entrée.

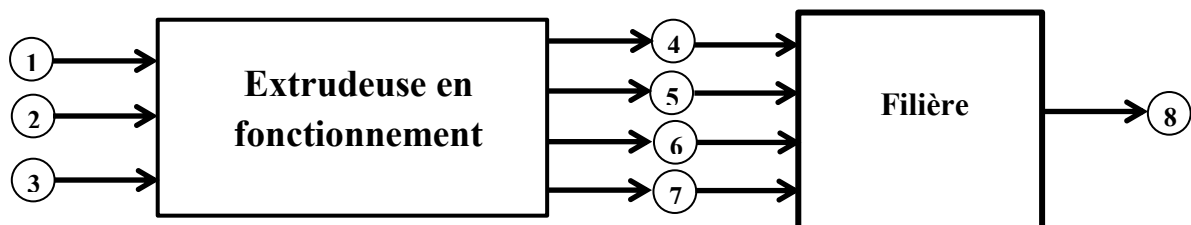


Figure 2.32

Structure globale d'un modèle dynamique pour une opération d'extrusion. 1 : vitesse de rotation de la vis. 2 : débit d'entrée et ses caractéristiques (nature, composition température). 3 : profil des flux de chauffage/refroidissement. 4 : profil de remplissage. 5 : profil de pression. 6 : profil de température. 7 : profil de composition. 8 : débit et caractéristiques du flux de sortie de la filière

Dans le contexte de la mise au point d'une loi de commande, un modèle dynamique d'une extrudeuse doit inclure tous les phénomènes se produisant dans la matière en écoulement (transferts de chaleur, réactions chimiques, évolutions des propriétés), le fourreau (transferts de chaleur) et la filière (écoulement). Son niveau de résolution spatiale est donc inévitablement plus grossier qu'un modèle détaillé utilisé pour l'étude fine de l'écoulement par exemple (voir le paragraphe 2) : on parle dans ce cas d'une modélisation de type système. Compte tenu de la complexité de la situation, les modèles dynamiques rencontrés dans le domaine de l'extrusion s'appuient sur une représentation simplifiée des écoulements au profit d'une description de l'ensemble des autres phénomènes et de leurs couplages. Cette représentation simplifiée s'est au départ développée en Génie de la Réaction Chimique, via la notion de **distribution des temps de séjour (DTS)** (Villermaux, 1999), mais a depuis été utilisée dans bon nombre d'autres situations. L'obtention de cette représentation simplifiée s'appuie sur la mise en œuvre d'une expérience de traçage qui est une expérience de nature transitoire dont l'exploitation s'appuie sur une modélisation dynamique du processus de transport du traceur. Dans un premier temps, nous décrivons rapidement la technique de traçage et son exploitation, avant de donner quelques exemples de son utilisation dans le domaine de l'extrusion. Nous pourrons ensuite montrer la continuité qui existe entre cette démarche expérimentale dynamique et les hypothèses généralement adoptées pour la modélisation dynamique des opérations d'extrusion.

3.2.2. La technique de traçage : une expérience dynamique

3.2.2.1. Principe de l'expérience

Une expérience de traçage a pour but de caractériser l'écoulement en régime stationnaire dans un procédé continu. Le **traceur** doit être inerte vis-à-vis de l'écoulement, c'est-à-dire que les trajectoires des particules ou molécules utilisées comme traceur doivent être représentatives de celles des particules du milieu tracé. De plus, sa concentration doit être facilement mesurable. Le principe de l'expérience est résumé figure 2.33 dans le cas d'un procédé continu à une entrée et une sortie de matière.

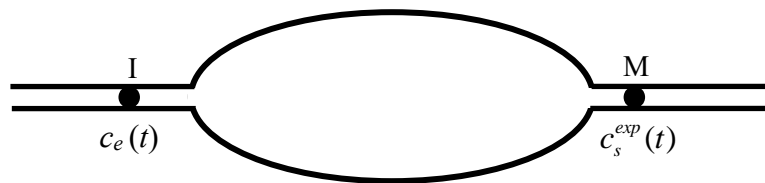


Figure 2.33

Principe d'une expérience de traçage

On fait varier la concentration de traceur à l'entrée du procédé (point d'injection I) selon une fonction $c_e(t)$ choisie et maîtrisée et l'on mesure la concentration de sortie du traceur $c_s^{exp}(t)$ (point de mesure M). Si le traceur est inerte, cette expérience est par nature linéaire. Trois fonctions d'entrée sont principalement utilisées en pratique :

- partant d'une condition initiale où la concentration de traceur dans le procédé est nulle, on fait varier sa concentration d'entrée de 0 à c_{max} . Si cette variation est assez rapide, elle pourra être assimilée à un échelon positif ;
- partant d'un état initial où la concentration de traceur dans le procédé est égale à c_{max} , on fait varier le plus rapidement possible sa concentration d'entrée de c_{max} à 0. Si cette variation est assez rapide, elle pourra être assimilée à un échelon négatif ;
- partant d'une condition initiale où la concentration de traceur dans le procédé est nulle, on injecte en un temps aussi court que possible une quantité N_0 de traceur. Si la

durée de l'injection est faible vis-à-vis du temps de réponse de l'écoulement tracé, l'injection pourra être assimilée à une impulsion de Dirac.

3.2.2.2. Exploitation des résultats : obtention d'un modèle simplifié d'écoulement en régime stationnaire

Le modèle simplifié d'écoulement recherché est constitué d'un réseau d'éléments simples (ou réacteurs idéaux), dont le comportement est connu, et reliés par des flux de matière. Le réseau permettant de représenter l'écoulement réel est celui qui présentera une réponse en concentration de traceur en sortie calculée $c_s^{mod}(t)$ aussi proche que possible de la mesure $c_s^{exp}(t)$, et ceci pour la même concentration d'entrée $c_e(t)$. La figure 2.34 est un exemple de réseau constitué des deux éléments simples principalement utilisés :

- le RPAC ou Réacteur Parfaitement Agité Continu ;
- le REP ou Réacteur à Ecoulement Piston.

L'emploi du terme « réacteur » est purement historique et lié au fait que cette approche a au départ été développée pour la modélisation des réacteurs chimiques.

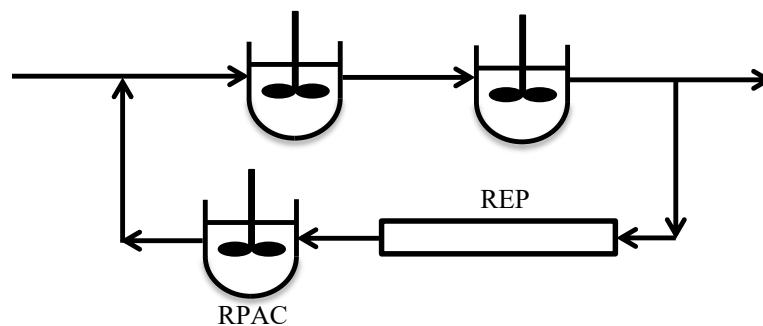


Figure 2.34

Un exemple de réseau pour la représentation simplifiée d'un écoulement.

Les comportements dynamiques du RPAC et du REP vis-à-vis du transport d'un traceur inerte s'obtiennent à partir des bilans de ce traceur. Dans le cas d'un écoulement stationnaire incompressible, on obtient les équations suivantes pour la concentration du traceur :

- RPAC : $c_e(t) = c_s(t) + \frac{V_{RPAC}}{q_{RPAC}} \frac{dc_s}{dt}$ où V_{RPAC} est le volume de matière contenu dans le

RPAC et q_{RPAC} le débit volumique. L'hypothèse associée à la définition du RPAC est que la concentration du traceur est uniforme dans le volume (notion d'agitation parfaite) ;

- REP : $\frac{\partial c}{\partial t} + w_{REP} \frac{\partial c}{\partial z} = 0$ où w_{REP} est la vitesse supposée uniforme dans une section

droite du REP et z la coordonnée axiale. Les concentrations d'entrée et de sortie du REP sont reliées aux conditions limites : $c(z=0, t) = c_e(t)$ et $c_s(t) = c(z=L_{REP}, t)$, où

L_{REP} est la longueur du REP.

L'expérience de traçage étant linéaire, le modèle dynamique du transport du traceur dans un réseau tel que celui de la figure 2.34 peut aussi être représenté par une **fonction de transfert**, calculée à partir de la fonction de transfert de chaque élément du réseau selon une technique utilisée pour calculer la fonction de transfert de systèmes bouclés en automatique linéaire (Ogata, 2010). Les fonctions de transfert des deux éléments simples principaux sont :

$$\text{- RPAC : } G_{RPAC}(s) = \frac{1}{1 + \tau_{RPAC} s} \text{ avec } \tau_{RPAC} = \frac{V_{RPAC}}{q_{RPAC}} \text{ (système linéaire d'ordre 1)} \quad (19)$$

$$\text{- REP : } G_{REP}(s) = \exp(-T_{REP} s) \text{ avec } T_{REP} = \frac{L_{REP}}{w_{REP}} \text{ (retard pur)} \quad (20)$$

où s est la variable de Laplace. D'autres modèles élémentaires sont utilisés pour la représentation simplifiée des écoulements, en particulier dans le domaine de l'extrusion (Piaux *et al.*, 2000). Notons, par exemple, le RPAC avec zone stagnante (Ye et Jaw, 1998 ; Nikitine *et al.*, 2009) ou l'écoulement piston avec **dispersion axiale** (Komolpraset et Ofoli, 1991 ; Piaux *et al.*, 2006). Dans ce dernier cas, le bilan de traceur inclut une correction par rapport au comportement de l'écoulement piston :

$$\frac{\partial c}{\partial t} + w \frac{\partial c}{\partial z} = D_{ax} \frac{\partial^2 c}{\partial z^2} \quad (21)$$

où w est la vitesse moyenne sur une section droite. Pour prendre en compte une possible non uniformité de la vitesse de façon simplifiée, on utilise le coefficient de dispersion axiale D_{ax} permettant d'exprimer une densité de flux de dispersion analogue au modèle de diffusion moléculaire de Fick. Diverses conditions aux limites peuvent être associées à l'équation de bilan (3) (Villermaux, 1999). Dans le cas le plus courant de dispositifs d'entrée et de sortie de petits diamètres par rapport au système, on peut supposer que la dispersion n'est présente qu'au sein du système. L'expression de la continuité des flux de traceur à l'entrée et à la sortie aboutit aux conditions limites dites de Danckwerts, où L est la longueur du dispositif modélisé :

$$wc_e(t) = \left(wc(z=0^+, t) - D_{Ax} \frac{\partial c_i}{\partial z}(z=0^+, t) \right) \quad (22)$$

$$\frac{\partial c}{\partial z}(z=L^-, t) = 0 \quad (23)$$

3.2.2.3. Notion de distribution des temps de séjour

La distribution des temps de séjour $E(t_s)$ dans un volume donné est en fait une densité de probabilité relative au temps de séjour considéré comme une variable aléatoire (Chen et Hu, 1993 ; Villermaux, 1999). Elle est définie comme suit :

$$\text{Prob}(t_s < t < t_s + dt_s) = E(t_s) dt_s \quad (24)$$

C'est aussi la fraction du débit volumique de sortie contenant des particules ayant eu un temps de séjour compris entre t_s et $t_s + dt_s$. L'expérience de traçage pour un signal de concentration d'entrée assimilable à une impulsion unitaire de Dirac donne accès à la DTS si le traceur satisfait la condition qu'une fois entré dans le volume tracé au point d'injection I (cf. Figure 4.2), il n'en ressort définitivement qu'au point de mesure M (Villermaux, 1999 ; Nauman, 2008). Dans ce cas, le modèle d'écoulement tel qu'on peut l'obtenir selon la démarche décrite

paragraphes 3.2.2.1. et 3.2.2.2. est aussi un modèle de représentation de la DTS et les deux notions sont confondues. D'un point de vue pratique, cela signifie que le transport du traceur dans les dispositifs d'entrée et de sortie de matière du système doit être purement convectif : on dit que le système est fermé à la dispersion. Cette condition est satisfaite lorsque les diamètres des dispositifs d'entrée et de sortie sont petits par rapport à la taille du volume tracé.

3.2.2.4. Quelques exemples dans le domaine de l'extrusion

Les techniques utilisées dans le domaine de l'extrusion pour la mise en œuvre d'expérience de traçage sont résumées dans l'article de Carneiro *et al.* (2004). L'objectif ici n'est pas de réaliser un état de l'art complet du sujet mais de citer quelques travaux caractéristiques.

Les représentations simplifiées d'écoulements qui sont proposées dans le cadre des études sur l'opération d'extrusion sont, comme dans les autres domaines d'application de la méthode, issues de l'ajustement d'un modèle constitué d'un réseau d'éléments simples sur des mesures de traçage. La structure de ce réseau peut le cas échéant être issue d'une analyse qualitative préalable des écoulements (Piaux *et al.*, 2000). Une analyse quantitative au niveau local peut de plus conférer à ces modèles un caractère prédictif (Chen *et al.*, 1993). De nombreux travaux sont par exemple basés sur l'utilisation du modèle stationnaire d'écoulement 1D simplifié obtenu en considérant le fourreau comme mobile autour des vis immobiles et en déroulant leur chenal (Vergnes et Chapet, 2001 ; Vergnes et Puissant, 2002). Par exemple, de Graaf *et al.* (1997) modélisent une extrudeuse baxis co-rotative par un réseau de RPAC assez dense dont les débits d'interconnexion sont calculés en utilisant une analyse locale. On sait en particulier que, dans le cas d'une extrudeuse baxis co-rotative, la situation dépend du fait que la zone considérée est pleine ou partiellement remplie. Le modèle 1D simplifié évoqué ci-dessus permet de calculer le profil de remplissage d'une extrudeuse baxis en régime stationnaire. L'idée est alors de disposer chacune de ces zones en série dans un schéma

d'écoulement et d'ainsi en déduire la DTS globale. Poulesquen *et al.* (2003a,b) ont par exemple développé cette approche et l'ont validée dans le cas de l'extrusion du polypropylène. Ils ont utilisé le RPAC, le REP et certains éléments dédiés aux fluides non-newtoniens pour construire leurs schémas d'écoulement. Dans le cadre d'études sur l'extraction d'alginate d'algues brunes dans une extrudeuse baxis co-rotative, Baron *et al.* (2010) utilisent un réseau en série de modèles « écoulement piston avec dispersion axiale », dont les paramètres dépendent du fait que l'élément du réseau est dans une zone partiellement ou totalement remplie.

Modélisation simplifiée des performances en régime stationnaire d'une extrudeuse utilisée comme réacteur chimique ou biologique

Connaissant l'expression de la DTS et un modèle cinétique pour le processus chimique ou biologique considéré, on calcule le **taux de conversion** d'un réactif principal en sortie de l'extrudeuse en régime stationnaire X_s à partir de $X_f(t)$, le taux de conversion en fonction du temps tel qu'on l'obtiendrait dans un réacteur fermé parfaitement agité. Le point de vue Lagrangien que l'on utilise est que le temps d'horloge dans le réacteur fermé devient le temps de séjour dans l'extrudeuse. Le taux de conversion en sortie est donné par une moyenne (Michaeli *et al.*, 1995 ; Villiermaux, 1999) :

$$X_s = \int_0^{\infty} X_f(t_s) E(t_s) dt_s \quad (25)$$

Cette relation est rigoureuse dans le cas d'un processus d'ordre un. Sinon, elle suppose une ségrégation totale (ou mélange au plus tard) de l'écoulement. Par exemple, Liu *et al.* (2010) ont appliqué cette approche à une réaction d'imidisation mise en œuvre dans une extrudeuse baxis co-rotative. Notons qu'il existe un modèle qui permet de calculer la conversion dans la situation extrême inverse du mélange au plus tôt (Villiermaux, 1999).

Une autre méthode consiste à utiliser explicitement le modèle d'écoulement issu d'expériences de traçage. Par exemple, Komolprasert et Ofoli (1991) et Puaux *et al.* (2006) ont utilisé le modèle piston avec dispersion axiale pour représenter respectivement la conversion d'une opération de liquéfaction d'amidon et celle de la synthèse du polyuréthane dans une extrudeuse baxis co-rotative. Si c_A est la concentration du réactif principal, ν_A son coefficient stœchiométrique et r_v la vitesse de la réaction, le bilan en réactif principal en régime stationnaire s'écrit dans le cadre du modèle piston avec dispersion axiale :

$$w \frac{dc_A}{dz} = D_{ax} \frac{d^2c}{dz^2} + \nu_A r_v \quad (26)$$

que l'on peut associer aux conditions limites (22) et (23).

Sutanto *et al.* (2006) appliquent cette démarche à une extrudeuse baxis co-rotative utilisée pour une opération de dévulcanisation, en considérant l'écoulement comme une cascade de RPAC et de REP. Enfin, notons l'étude de Zhang *et al.* (2009) au cours de laquelle une courbe d'émulsification en système fermé est reconstituée à partir d'expériences de traçage sur une extrudeuse baxis co-rotative dans le cadre d'études de mélanges de polymères par utilisation d'émulsifiants.

Les deux approches décrites ci-dessus sont fondamentalement équivalentes et sont extrêmement simplifiées car elles supposent que toutes les variables dont dépendent les vitesses des processus envisagés sont uniformes dans le réacteur, en particulier la température.

Etude d'écoulements

Ces études ont généralement pour objectif d'utiliser les informations issues des expériences de traçage pour faire le lien entre l'écoulement, le déroulement des processus physiques ou chimiques et les conditions opératoires. Nous donnons ici quelques exemples de telles études.

Il existe de nombreuses circonstances dans lesquelles l'extrudeuse est le siège d'écoulements multiphasiques. Dans ce cas, la modélisation détaillée des écoulements est rendue d'autant

plus difficile et l'utilisation des méthodes de traçage reste un outil très utile. Ainsi, Nikitine *et al.* (2009) et Larochette *et al.* (2009) ont mesuré et modélisé la DTS dans des extrudeuses monovis utilisées pour la fabrication de mousses. Cassagnau *et al.* (2005) ont étudié l'efficacité d'une extrudeuse bavis co-rotative pour réaliser le mélange entre un additif peu visqueux, miscible ou non avec un polymère fondu, en mesurant la DTS de chaque phase. Prat *et al.* (1999) ont mesuré et modélisé la DTS de chaque phase dans le cas d'une extrudeuse bavis co-rotative utilisée pour une opération d'extraction de l'hémicellulose de copeaux de bois de peuplier par solubilisation alcaline.

L'étude systématique et la modélisation des DTS dans les extrudeuses peut conduire à des conclusions assez générales alors qu'il s'agit au départ d'une approche assez souvent empirique. Ainsi, en comparant plusieurs modèles ajustés sur des DTS expérimentales obtenues sur une extrudeuse bavis co-rotative utilisée pour des polymères, Puaux *et al.* (2000) ont mis en évidence l'importance du rétro-mélange et la supériorité des modèles qui le prennent en compte. Hu *et al.* (1999) et Gao *et al.* (2000) ont mis en évidence l'importance du rapport Q/N où Q est le débit massique et N la vitesse de rotation comme paramètre explicatif des conditions opératoires des extrudeuses bavis co-rotatives utilisées pour des polymères.

3.2.3. Revue de quelques modèles dynamiques développés dans le domaine de l'extrusion

Compte-tenu des contraintes liées à la problématique de l'automatisation des procédés et plus généralement à celle de la modélisation dynamique de type système, les modèles dynamiques utilisés sont logiquement basés sur des modèles d'écoulement simplifiés, tels que ceux décrits précédemment. Cette simplification de la représentation des écoulements permet de prendre en compte l'ensemble des processus chimiques, biologiques et de transfert et leurs couplages, en utilisant les équations de bilan de matière, d'énergie et de quantité de mouvement. On trouve dans la littérature du domaine des modèles basés sur des équations différentielles ordinaires (modèles localisés) ou des équations aux dérivées partielles (modèles répartis,

essentiellement à une dimension spatiale). Ces deux catégories renvoient évidemment aux modèles d'écoulement à bases de réseaux de RPAC (modèle localisés) ou d'éléments tels que le REP ou l'écoulement piston avec dispersion axiale (modèle répartis). Nous allons donner quelques exemples de ces deux catégories de modèle utilisés pour représenter des procédés d'extrusion en régime transitoire. Le lecteur intéressé peut se reporter à une revue récente sur le sujet (Grimard *et al.*, 2016). Notons que la plupart des travaux recensés concernent les extrudeuses baxis co-rotatives. La particularité de ces extrudeuses est qu'elles présentent des zones partiellement remplies et des zones entièrement remplies qui se développent à partir d'éléments restrictifs (filière, vis à pas inverses, malaxeurs), dans la direction opposée à l'écoulement. Dans ces zones entièrement remplies se forme un gradient de pression. Notons aussi que la zone de fusion, dans le cas de l'extrusion d'un polymère initialement solide, n'est que très rarement prise en compte.

3.2.3.1. Modèles dynamiques répartis

Deux questions ont en particulier été abordées en utilisant ces types de modèles : la représentation des phases de démarrage et l'étude de phénomènes d'instabilités, parfois observés dans les extrudeuses. Kim et White (2000a,b) ont proposé un modèle pour la simulation du démarrage d'une extrudeuse baxis co-rotative autonettoyante, à partir d'une situation initiale où celle-ci est vide. Le modèle utilisé est mixte. L'écoulement est représenté par deux REP séparés par une **frontière mobile**. Le bilan de matière global relatif au deuxième REP, représentant une zone entièrement remplie à partir de la filière, permet de calculer l'évolution de la position de cette frontière comme solution d'une équation différentielle ordinaire. La continuité du débit total dans la zone entièrement remplie permet de calculer le profil de pression, alors que la zone partiellement remplie est à la pression ambiante. Un bilan d'énergie couplé au bilan matière permet de calculer l'évolution de la température de la matière le long de l'extrudeuse. Le modèle isotherme (Kim et White, 2000a) a été utilisé pour

l'étude de la réponse d'une extrudeuse à diverses perturbations des variables d'entrée (débit d'alimentation, vitesse de rotation des vis) et il a été étendu à des situations où plusieurs zones remplies se développent (Kim et White, 2002).

Des phénomènes d'instabilités et d'états stationnaires multiples, en particulier dans les extrudeuses bivis utilisées en polymérisation, ont été décrits et analysés qualitativement (Janssen, 1998 ; Mudalamane et Bigio, 2003). Ces phénomènes sont bien décrits dans le cas des réacteurs chimiques classiques (Villermaux, 1999) et sont dus à des couplages liés à la dépendance des vitesses des réactions chimiques ou de la viscosité avec la température (Janssen, 1998). Une analyse plus poussée de ces phénomènes, basée sur l'utilisation du modèle à deux REP avec frontière mobile, a été proposée par Janssen *et al.* (2001, 2003).

Un modèle à deux REP avec frontière mobile tout à fait similaire à celui utilisé dans les études précédentes a été proposé pour la représentation d'une extrudeuse bivis utilisée pour l'extrusion ou la cuisson de produits alimentaires (Kulshreshtha et Zaror, 1992 ; Li, 1999). Le premier REP représente une zone partiellement remplie et le deuxième REP la zone entièrement remplie qui se développe à partir de la filière. Ce modèle est cependant un peu plus précis puisqu'il permet le calcul de l'évolution du profil de remplissage dans la zone partiellement remplie, alors qu'une valeur moyenne est adoptée dans les approches précédentes. Le bilan d'énergie associé à chacune de ces zones permet le calcul de l'évolution du profil de température et un bilan global de masse sur la zone entièrement remplie permet le calcul de l'évolution de la position de l'interface entre les deux REP.

Dans un article de Giudici *et al.* (1997) est décrite la modélisation d'une extrudeuse bivis co-rotative autonettoyante utilisée pour l'étape de finition de la polymérisation du nylon-6,6. Le modèle est isotherme et basé sur une représentation de l'écoulement par une série de deux réacteurs idéaux de taille fixe : un REP permettant de représenter la zone d'extraction de l'eau produite par la réaction de polycondensation et un REP avec dispersion axiale, représentant la

zone pleine. Une validation expérimentale du modèle est réalisée par des expériences de traçage et d'arrêt brusque de l'extraction d'eau dans la première zone.

3.2.3.2. Modèles dynamiques localisés

Suite à leurs travaux concernant la détermination de la DTS dans une extrudeuse baxis co-rotative utilisée pour une opération d'extraction de l'hémicellulose de copeaux de bois de peuplier par solubilisation alcaline (Prat *et al.*, 1999), les mêmes auteurs ont proposé un modèle dynamique pour cette opération, basé sur un réseau de RPAC entièrement ou partiellement remplis suivant leur position dans l'extrudeuse (Prat *et al.*, 2004). Ce modèle décrit aussi le transfert de matière entre les deux phases et a été validé expérimentalement à partir de la mesure de la réponse de l'extrudeuse à des variations du débit de solide à l'entrée et de la vitesse de rotation des vis.

Dans le cadre de travaux concernant l'automatisation du procédé d'extrusion réactive (Choulak, 2004), Choulak *et al.* (2004) ont développé un modèle d'extrusion baxis co-rotative basé sur une représentation de l'écoulement sous la forme d'une cascade de RPAC, interconnectés par des flux dont les expressions sont issues des modèles 1D simplifiés utilisés dans de très nombreux travaux de modélisation d'extrudeuses. Chaque débit est exprimé comme la somme d'un débit de cisaillement et d'un débit de contre-pression présent uniquement dans les zones entièrement remplies. L'orientation de ces différents débits dépend de la nature de l'élément concerné (vis à pas direct, inverse, éléments de malaxage). L'originalité principale de ce modèle est qu'il n'est pas basé sur un positionnement *a priori* des zones pleines et partiellement remplies, comme c'est le cas des modèles décrits précédemment. Il permet de les calculer par l'intégration des bilans globaux de masse relatifs à chaque RPAC. Deux situations sont possibles :

- le RPAC considéré est dans une zone partiellement remplie : la pression est égale à la pression ambiante et les débits sont des débits de cisaillement. On calcule alors la variation de la masse contenue dans le RPAC considéré ;
- le RPAC considéré est dans une zone pleine : dans ce cas, la masse ne varie pas et la continuité des flux massiques permet de calculer les pressions.

Aux bilans de masse sont couplés les bilans d'énergie et de matière relatifs à chaque RPAC. On associe aussi à chacun de ces RPAC un élément de vis et un élément de fourreau, considérés à températures uniformes et dont on exprime le bilan d'énergie. Ce modèle a été validé sur des données expérimentales obtenues au Laboratoire Ingénierie des Matériaux Polymères de Lyon. Il a aussi été utilisé pour modéliser une opération d'extrusion réactive de finition dans le processus de fabrication du nylon-6,6 opéré par la société Rhodia (Goma-Bilongo *et al.*, 2012) et pour représenter une opération d'extrusion de polymères dans le domaine pharmaceutique (Eitzlmayr *et al.*, 2014).

3.3. Commande des extrudeuses

Le rôle majeur de la commande dans les extrudeuses est d'assurer la qualité constante des produits en sortie de filière, malgré les variations des entrées non manipulées et les perturbations naturelles, tout en répondant à certains critères de sécurité et de stabilité.

Les procédés d'extrusion sont des systèmes multi-entrées multi-sorties (MIMO : Multiple Inputs - Multiple Outputs) (voir la section 3.2.1). L'influence des variables d'entrée et d'éventuelles perturbations sur les variables de sortie est fortement non-linéaire, avec des temps de retard variables. Par ailleurs, sous certaines conditions d'exploitation, le procédé peut naturellement montrer des variations cycliques instables ou stables (Kulshreshtha *et al.*, 1991). Le développement de la commande est donc primordial pour le contrôle de la qualité. Il reste cependant un problème toujours difficile à résoudre, du fait des couplages non-linéaires qui lient les différents phénomènes physiques intervenant dans le procédé (Choulak

et al., 2004 ; Gargea et al., 2012 ; Abeykoon, 2016).

3.3.1. Illustration des difficultés de mise au point de la commande d'une opération d'extrusion

Kulshreshtha et Zaror (1995) ont présenté une commande mono-variable (SISO : Single Input - Single Output) d'extrudeuse avec un correcteur Proportionnel Intégral (PI). L'objectif de la commande était de réguler la pression en filière P_f autour de la pression de consigne P_{cons} afin d'obtenir la qualité souhaitée du produit. L'image de cette qualité est donnée par le volume spécifique de l'extrudat S_v . Suite à une analyse de sensibilité du modèle stationnaire, les auteurs ont choisi le débit d'alimentation F comme entrée de commande. Le schéma présenté figure 2.35 donne le principe de cette commande. Le modèle utilisé n'est pas explicité mais, en raison du choix du correcteur, on sait qu'il est linéaire. Un correcteur PI calcule la commande à partir de l'erreur entre la mesure de la pression en filière P_f et celle de la consigne P_{cons} , et l'intégrale en temps de cette erreur. Le calcul des paramètres du correcteur est effectué à partir de la réponse de la pression en filière en réponse à un échelon de débit d'alimentation. Une corrélation polynomiale fournit l'estimation du volume spécifique de l'extrudat S_v en fonction des mesures de température en filière T , de l'énergie mécanique spécifique S_e et de la pression en filière P_f .

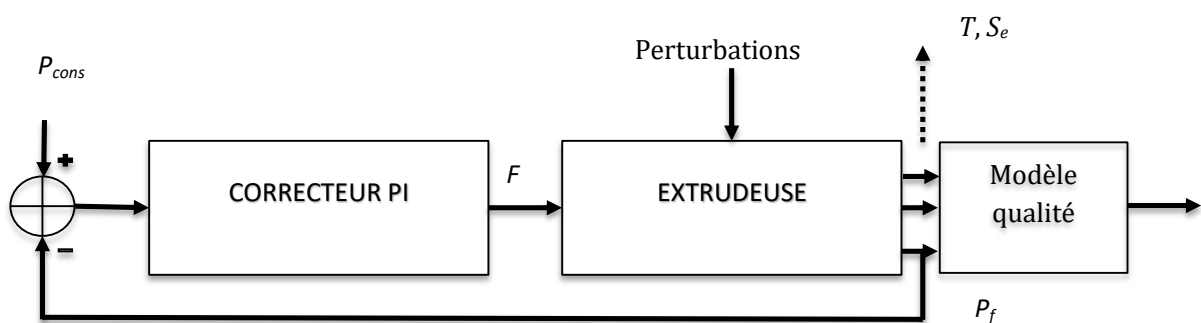


Figure 2.35

Un correcteur PI pour le contrôle de la qualité d'un produit en sortie d'extrudeuse

Les performances de ce correcteur simple sont loin d'être satisfaisantes car la modification de

l'entrée de commande modifie aussi les sorties T et S_e , entraînant une dérive sur la qualité du produit. Les auteurs proposent ensuite une adaptation de la commande, consistant à ajuster la consigne P_{cons} à partir des mesures de l'écart entre S_v et la valeur souhaitée et d'un modèle stationnaire simplifié qui améliore les performances du correcteur.

Sur la base de cet exemple simple, nous voyons très bien la difficulté de la synthèse de la commande qui nécessite, pour donner de bons résultats, une connaissance des couplages multi-physiques qui existent au sein d'une extrudeuse. Le choix du modèle de commande est donc primordial, ainsi que la structure de la commande.

Une approche semblable est utilisée par Moreira *et al.* (1990) pour la régulation de pression en sortie de filière d'une extrudeuse bivis.

3.3.2. Les différentes approches de commande

Nous allons présenter dans la section suivante les grandes classes de commande utilisées pour les extrudeuses.

3.3.2.1. Les approches basées sur des modèles linéaires simples

A partir des années 1970, de nombreuses commandes d'extrudeuses ont été élaborées sur la base de modèles linéaires représentés par des fonctions de transfert avec ou sans retard.

Une grande partie de ces commandes sont des correcteurs **PID** (pour Proportionnel Intégrale Dérivée) dont l'objectif est de réguler la variable de commande autour d'une valeur de consigne (McAfee et Thompson, 2007). Ces commandes peuvent être mono-variables (Kulshreshtha et Zaror, 1995) ou multi-variables (Singh et Mulvaney, 1994). Singh et Mulvaney (1994) proposent un schéma de régulation PID multi-entrée - multi-sortie d'une extrudeuse bivis dans le domaine alimentaire. Les objectifs sont de réguler le couple moteur et la température du produit en sortie d'extrudeuse en utilisant comme entrées manipulées la température du fourreau et la vitesse de vis. Le modèle d'extrudeuse est un modèle « boîte noire » issu d'une identification et est représenté par deux fonctions de transfert : une entre le

couple moteur et la vitesse de vis et la seconde entre la température du produit en sortie et la température du fourreau. La stratégie de commande consiste en deux boucles de régulation PID. Cette stratégie donne de bons résultats sans apparition d'instabilité. Ceux-ci sont en fait liés au choix des couples entrée - sortie « vitesse de rotation des vis - couple moteur » et « température fourreau - température du produit », qui sont naturellement découplés car ils ont des temps de réponse très différents. Le choix de la pression comme sortie aurait déstabilisé la régulation. Ceci montre les limites des stratégies de type PID face à des procédés complexes et fortement non-linéaires, ainsi que le choix de modèles trop simples pour la synthèse de commande. Plus récemment, Previdia *et al.* (2006) proposent la régulation du débit volumique dans une extrudeuse monovis pour l'extrusion de polymère. La régulation du débit est réalisée au moyen d'une régulation conjointe de la température et de la pression en filière, à partir des variables manipulées que sont les relais des résistances électriques sur le fourreau et la vitesse de vis. L'architecture globale du contrôleur est constituée de trois sous-tâches de commande effectuées à partir de régulateurs PID : la commande en boucle interne des températures locales le long du fourreau ; la commande en boucle externe de la température en sortie de filière ; la commande de la pression en sortie de filière. Les modèles utilisés pour la commande sont donnés par trois fonctions de transfert avec retard.

L'utilisation de **régulateurs adaptatifs** est aussi très courante (Dormeier, 1986). La commande adaptative est une commande linéaire dont le principe est d'identifier le système en même temps qu'on le commande et de recalculer le régulateur (de type PID) à chaque pas de calcul. Dormeier (1986) l'utilise dans le cas de la régulation de température le long du fourreau sur une extrudeuse monovis.

L'utilisation de la **commande prédictive** a fait l'objet de nombreux travaux (Kochhart et Parnaby, 1977 ; Tan et Hofer 1995 ; Wang et Tan, 2000 ; Haley et Mulvaney, 2000 ; Nield *et al.*, 2000 ; Wang *et al.*, 2008 ; Jiang *et al.*, 2012 ; Trifkovic *et al.*, 2012 ; Ozbek *et al.*, 2014).

Le principe de la commande prédictive est d'utiliser un modèle dynamique du processus à l'intérieur du contrôleur en temps réel afin d'anticiper le futur comportement du procédé. La technique consiste à élaborer une séquence de commande sur un horizon temporel fini, pour atteindre la consigne désirée en suivant une trajectoire de référence. Cet objectif est atteint en utilisant la minimisation d'une fonction coût, basée sur l'erreur quadratique entre la trajectoire de référence et les prédictions sur l'horizon. Seul le premier élément de la séquence est effectivement appliqué sur le système. Cette procédure est réitérée à l'instant suivant sur un horizon qui se déplace ou « horizon fuyant ». Ce type de commande est bien adapté lorsque les systèmes possèdent des retards importants ou des perturbations, et en présence de contraintes sur les variables (d'entrée ou de sortie). Jiang *et al.* (2012) proposent un système de commande multi-variable comportant deux boucles de commande indépendantes de type commande prédictive : une commande mono-entrée - mono-sortie de la pression du mélange en filière, avec comme variable manipulée la vitesse de vis, et une commande multi-entrée - multi-sortie des températures des pièces du fourreau, avec comme variables manipulées la puissance des résistances électriques. La commande de température est basée sur un modèle issu des bilans d'énergie sur les différentes zones du fourreau. La commande de la pression est basée sur un modèle « boîte noire ». La qualité du produit est améliorée de manière significative avec le contrôleur proposé. Wang *et al.* (2008) proposent une commande multi-variable du couple moteur et de l'énergie mécanique spécifique d'une extrudeuse bivi pilotée en utilisant les variables manipulées que sont la vitesse de vis et le débit liquide d'alimentation. Le modèle est donné par une matrice de transfert (une entre chaque entrée et sortie). La commande prédictive tient naturellement compte des couplages. Dans l'article de Nield *et al.* (2000), une stratégie de commande prédictive multi-variable avec contraintes est mise en œuvre pour contrôler le masse molaire moyenne en poids ainsi que la valeur maximale de la masse molaire de la distribution de masse d'un polyéthylène basse densité

dans un procédé d'extrusion réactive mis en œuvre dans une extrudeuse baxis co-rotative. L'amplitude et la largeur des impulsions en forme d'onde carrée d'une solution de peroxyde injectée dans l'extrudeuse sont manipulées indépendamment afin de réguler simultanément les deux objectifs. Les résultats expérimentaux montrent que ce type de commande est réalisable mais ne fonctionne que sur une plage étroite de conditions de fonctionnement. Le choix des modèles linéaires pris pour la synthèse de commande est la raison principale de cette limitation.

3.3.2.2. Les approches basées sur des modèles qui ne sont pas représentés par des équations différentielles

Les méthodes conventionnelles de réglage sont basées sur une modélisation mathématique adéquate du système à régler et un traitement analytique à l'aide de la fonction de transfert ou d'équations dynamiques d'état. Malheureusement, celles-ci ne sont pas toujours disponibles.

D'autres alternatives sont utilisées :

- Commande par **système expert** et **réseau de neurones** (Popescu *et al.*, 2001) : le système expert incorpore des règles de décision logiques pour toutes les situations qui peuvent survenir lors d'un processus. Sur la base des décisions prises par le système expert, les entrées du modèle sont mises à jour à intervalle régulier. Dans l'article de Popescu *et al.* (2001), une commande par système expert pour la phase de démarrage du procédé de cuisson-extrusion est proposée. Le modèle utilisé est un modèle de type « boîte noire », constitué d'un réseau de neurones. Le modèle est représentatif du fonctionnement de l'extrudeuse pour la phase de démarrage. L'utilisation de réseaux de neurones pour la prédiction du comportement est aussi utilisée par Cubeddu *et al.* (2014).

- **Commande floue** (Fodil-Pacha *et al.*, 2007 ; Zhou *et al.*, 2012 ; Deng *et al.*, 2014) : la commande floue est un système à base de connaissances exprimées à l'aide de

règles simples. Il est utilisé dès qu'une modélisation mathématique est difficile. Le principe de cet algorithme de contrôle est très simple : il consiste à réaliser une « interpolation » entre un petit nombre de situations connues, données par un expert sous la forme de règles floues. La logique floue permet de raisonner non pas sur des variables numériques, mais sur des variables linguistiques, c'est-à-dire sur des variables qualitatives (grand, petit, moyen, loin, près, fort, etc.). Le fait de raisonner sur ces variables linguistiques va permettre de manipuler des connaissances en langage naturel, par exemple *si x est petit et y est modéré, alors u doit être très grand*. En logique floue, une affirmation est plus ou moins vraie ; son degré de vérité varie entre 0 et 1. Né vers les années 1970, le contrôle flou se distingue des systèmes experts sur plusieurs points, en particulier le petit nombre de règles, un traitement simple des contradictions et une solution évolutive face à des règles dont le degré de vérité évolue continuellement. Les performances d'une commande floue sont mesurées *a posteriori*. Les réglages se font donc par essais/erreurs. Dans l'article de Zhou *et al.* (2012), les auteurs utilisent une commande floue pour la régulation de la vitesse de vis à partir de la connaissance du courant du moteur de l'extrudeuse et de la variation de ce courant. Les variables mesurées du système à commander et les consignes définissent les variables d'entrée du contrôleur flou. Les variables de sortie du contrôleur flou sont les commandes à appliquer au processus. Dans Fodil-Pacha *et al.* (2007), un système de contrôle flou est proposé pour améliorer la procédure de démarrage d'un processus d'extrusion d'aliments. La structure de contrôle proposée consiste en trois correcteurs connectés en configuration parallèle, ayant chacun plusieurs entrées et une sortie unique (MISO : Multiple Inputs – Single Output), afin de surveiller respectivement la vitesse de vis, le débit d'alimentation en aliments et le débit d'alimentation en eau de manière coordonnée, afin d'éviter tout blocage de vis. La procédure nécessite la

connaissance des valeurs initiales de la vitesse de vis, du débit d'alimentation en aliments et du débit d'alimentation en eau, ainsi que des valeurs finales souhaitées. Les entrées des correcteurs sont les écarts sur les différentes variables par rapport à la valeur finale souhaitée, ainsi que des spécifications concernant les maxima du couple et de la vitesse de vis. Le système de commande floue a été appliqué à l'extrusion de l'amidon de maïs.

3.3.2.3. Les approches basées sur des modèles répartis

Des résultats existent sur la commande d'extrudeuses basée sur un modèle de connaissance décrit par des équations aux dérivées partielles, tel que celui présenté par Kulshreshtha et Zaror (1992), avec un profil de vis uniforme. Ces résultats théoriques n'ont pas été testés expérimentalement. Diagne *et al.* (2016) proposent la stabilisation autour d'un profil stationnaire dans le cas isotherme d'un écoulement d'un mélange sans réaction et, dans le cas non isotherme, Lotero *et al.* (2018) étudient la stabilisation autour d'un profil stationnaire en utilisant les températures de fourreau et la vitesse de vis comme variables manipulées.

3.4. Conclusion

Du point de vue de la modélisation dynamique de type système des extrudeuses, il existe un grand nombre de travaux qui ont permis de correctement représenter les phénomènes principaux et leurs couplages. Toutefois, la commande des extrudeuses reste un problème complexe qui, pour l'instant, n'est résolu que par l'utilisation de modèles linéaires de type « boîte noire » par des correcteurs PID ou par commande prédictive. L'utilisation de modèles non-linéaires tel que celui présenté par Choulak *et al.* (2004) permettrait d'élargir la gamme opératoire d'efficacité du correcteur. Les méthodes basées sur les systèmes experts, les réseaux de neurones et la commande floue sont aussi prometteuses, bien que difficiles à mettre en œuvre.

La commande des extrudeuses est une problématique en plein essor ces dernières années. Les

extrudeuses dernière génération sont d'ailleurs équipées de régulateurs PID pour la vitesse de vis et la température le long des fourreaux. Le développement de nouveaux capteurs, ainsi que l'augmentation de la puissance de calcul des ordinateurs, vont très certainement permettre une amélioration du contrôle de qualité des produits en sortie d'extrudeuse grâce à l'utilisation de modèles plus précis (Abeykoon, 2016).

Références bibliographiques

- Abeykoon C (2016), Single screw extrusion control: A comprehensive review and directions for improvements. *Control Eng Pract*, **51** : 69–80.
- Agassant JF, Pinsolle F, Vergnes B (2017) Opérations de mélange dans les procédés de transformation des polymères – Mise en œuvre, *Techniques de l'Ingénieur*, AM 3636, 1-23.
- Alig I, Steinhoff B, Lellinger D (2010). Monitoring of polymer melt processing, *Measur Sci Technol*, **21** : 062001.
- Bahloul W, Oddes O, Bounor-Legaré V, Mélis F, Cassagnau P, Vergnes B (2011) Reactive extrusion processing of polypropylene/TiO₂ nanocomposites by in-situ synthesis of the nanofillers, *A I Ch E J*, **57** : 2174-2184.
- Barbas JM, Machado AV, Covas JA (2012). In-line Near-Infrared Spectroscopy: a tool to monitor the preparation of polymer-clay nanocomposites in extruders, *J Appl Polym Sci*, **127** : 4899-4909.
- Barnes SE, Sibley MG, Edwards HGM, Coates PD (2007). Process monitoring of polymer melts using in-line spectroscopy, *Trans Inst Measur Control*, **29** : 453-465.
- Baron R, Vauchel P, Kaas R, Arhaliass A, Legrand J (2010) Dynamical modelling of a reactive extrusion process: Focus on residence time distribution in a fully intermeshing co-rotating twin-screw extruder and application to an alginate extraction process. *Chem Eng Sci*, **65** : 3313 – 3321.

- Barres C, Bounor-Legaré V, Mélis F, Michel A (2006). In-line near infrared monitoring of esterification of a molten ethylene-vinyl alcohol copolymer in a twin screw extruder, *Polym Eng Sci*, **46** : 1613-1624.
- Bergmann B, Becker W, Diemert J, Elsner P (2013). On-line monitoring of molecular weight using NIR spectroscopy in reactive extrusion process, *Macromol Symp*, **333** : 138-141.
- Berzin F (1998) *Etude expérimentale et modélisation d'une opération d'extrusion réactive*. Thèse de Doctorat, Ecole des Mines de Paris.
- Berzin F, Vergnes B (1998) Transesterification of ethylene acetate copolymer in a twin screw extruder, *Intern Polym Proc*, **13** : 13-22.
- Berzin F, Vergnes B, Dufossé P, Delamare L (2000) Modelling of peroxide initiated controlled degradation of polypropylene in a twin screw extruder, *Polym Eng Sci*, **40** : 344-356.
- Berzin F, Vergnes B, Lafleur PG, Grmela M (2002) A theoretical approach of solid filler dispersion in a twin screw extruder, *Polym Eng Sci*, **42** : 473-481.
- Berzin F, Hu GH (2004) Procédés d'extrusion réactive, *Techniques de l'Ingénieur*, AM 3654, 1-16.
- Berzin F, Vergnes B, Canevarolo SV, Machado AV, Covas JA (2006) Evolution of peroxide-induced degradation of polypropylene along a twin-screw extruder: experimental data and theoretical predictions, *J Appl Polym Sci*, **99** : 2082-2090.
- Berzin F, Tara A, Tighzert L, Vergnes B (2010). Importance of coupling between specific energy and viscosity in the modeling of twin screw extrusion of starchy products, *Polym Eng Sci*, **50** : 1758-1766.
- Berzin F, Vergnes B (2017) Préparation des composites à fibres lignocellulosiques en extrusion bivis, in : *Composites Polymères et Fibres Lignocellulosiques. Propriétés, Transformation et Caractérisation* (Ed. F. Berzin) Lavoisier Hermès, Paris.

- Boersma A, van Turnhout J (1999). Dielectric on-line spectroscopy during extrusion of polymer blends, *Polymer*, **40** : 5023-5033.
- Bouilloux A (1985) *Etude de la transestérification à l'état fondu des copolymères d'éthylène et d'acétate de vinyle*, Thèse de Doctorat, Université Louis Pasteur, Strasbourg.
- Broadhead TO, Patterson WI, Dealy J M (1996). Closed loop viscosity control of reactive extrusion with an in-line rheometer, *Polym Eng Sci*, **36** : 2840-2851.
- Carneiro OS, Covas JA, Vergnes B (2000). Experimental and theoretical study of twin screw extrusion of polypropylene, *J Appl Polym Sci*, **78** :1419-1430.
- Carneiro OS, Covas JA, Ferreira JA, Cerqueira MF (2004) On-line monitoring of the residence time distribution along a kneading block of a twin-screw extruder, *Polym Test*, **23** : 925 – 937.
- Cassagnau P, Courmont M, Melis F, Piaux, JP (2005) Study of mixing of liquid/polymer in twin screw extruder by residence time distribution, *Polym Eng Sci*, **45** : 926-934.
- Cassagnau P, Bounor-Legaré V, Fenouillot F (2007). Reactive processing of thermoplastic polymers: A review of the fundamental aspects, *Intern Polym Proc*, **22** : 218-258.
- Chalameat Y, Taha M, Berzin F, Vergnes B (2002) Carboxyl terminated polyamide 12 chain extension by reactive extrusion using a dioxazoline coupling agent. Part II: effects of extrusion conditions, *Polym Eng Sci*, **42** : 2317-2327.
- Chen L, Hu GH (1993) Applications of a statistical theory in residence time distribution. *AIChE J*, **39** : 1558 – 1562.
- Chen L, Pan Z, Hu GH (1993) Residence time distribution in screw extruders. *AIChE J*, **39** : 1455 – 1464.
- Choulak S (2004) *Modélisation et commande d'un procédé d'extrusion réactive*. Thèse de doctorat, Université Claude Bernard – Lyon 1.
- Choulak S, Couenne F, Le Gorrec Y, Jallut C, Cassagnau P, Michel A (2004) Generic

- dynamic model for simulation and control of reactive extrusion. *Ind Eng Chem Res*, **43** : 7373 – 7382.
- Coates PD, Barnes SE, Sibley MG, Brown EC, Edwards HGM, Scowen IJ (2003). In-process vibrational spectroscopy and ultrasound measurements in polymer melt extrusion, *Polymer*, **44** : 5937-5949.
- Cogswell FN (1972). Converging flow of polymer melts in extrusion dies, *Polym Eng Sci*, **12** : 64-73.
- Covas JA, Nóbrega JM, Maia JM (2000). Rheological measurements along an extruder with an on-line capillary rheometer, *Polym Test*, **19** : 165-176.
- Covas JA, Maia JM, Machado AV, Costa P (2008). On-line rotational rheometry for extrusion and compounding operations, *J Non-Newt Fluid Mech*, **148** : 88-96.
- Covas JA (2018). In-process measurements for reactive extrusion monitoring and control, in Beyer G et Hopmann C (eds.) *Reactive Extrusion: Principles and Applications*, Wiley-VCH, pp. 101-132.
- Cubeddu A, Rauha C, Delgado A (2014) Hybrid artificial neural network for prediction and control of process variables in food extrusion, *Innov Food Sci Emerg Tech*, **21** : 142–150.
- Cunha Santos AM, Cáceres CA, Calixto LS, Zborowski L, Canevarolo SV (2014). In-line optical techniques to characterize the polymer extrusion, *Polym Eng Sci*, **54** : 386-395.
- Dealy JM, Broadhead TO (1993). Process rheometers for molten plastics: A survey of existing technology, *Polym Eng Sci*, **33** : 1513-1523.
- De Graaf RA, Rohde M, Janssen LPBM (1997) A novel model predicting residence-time distribution during reactive extrusion. *Chem Eng Sci*, **52** : 4345 - 4356.
- Delamare L, Vergnes B (1996) Computation of the morphological changes of a polymer blend along a twin screw extruder, *Polym Eng Sci*, **36** : 1685-1693.
- Della Valle G, Berzin F, Vergnes B (2011) Modelling of twin screw extrusion process for

- food products design and process optimization, in: *Advances in Food Extrusion Technology* (eds. M. Maskan, A. Altan), CRC Press, Boca Raton, pp. 327-354.
- De Loor A, Cassagnau P, Michel A, Delamare L, Vergnes B (1996) Reactive blending in a twin-screw extruder: experimental and theoretical approaches, *Intern Polym Proc*, **11** : 139-146.
- Deng J, Li K, Harkin-Jones E, Price M, Karnachi N, Kelly A, Vera-Sorroche J, Coates P, Brown E, Fei M (2014) Energy monitoring and quality control of a single screw extruder, *Appl Energy*, **113** : 1775–1785
- Diagne M, Shang P, Wang Z (2016) Feedback stabilization for the mass balance equations of an extrusion process, *IEEE Trans Autom Control*, **61** : 760–765
- Dormeier S (1986) Adaptive control concepts for plastic processing units, *6th IFAC Conference*, Akron (Ohio).
- Durin A, De Micheli P, Nguyen HC, David C, Valette R, Vergnes B (2014) Comparison between 1D and 3D approaches for twin-screw extrusion simulation, *Intern Polym Proc*, **29** : 641-648.
- Eitzlmayr A, Koscher G, Reynolds G, Huang Z, Booth J, Shering P, Khinast J (2014) Mechanistic modeling of modular co-rotating twin-screw extruders. *Intern J Pharm*, **474** : 157–176.
- Fischer D, Bayer T, Eichhorn KJ, Otto M (1997). In-line process monitoring on polymer melts by NIR-spectroscopy, *J Analyt Chem*, **359** : 74-77.
- Fodil-Pacha F, Arhaliass A, Aït-Ahmed N, Boillereaux L, Legrand J (2007) Fuzzy control of the start-up phase of the food extrusion process, *Food Control*, **18** : 1143–1148.
- Fritz HG, Ultsch S (1989). Sensorentwicklung und Automatisierungstendenzen bei der Kunststoffaufbereitung, *Kunstst*, **79** : 785-790.
- Fukuoka T (2000) Numerical analysis of a reactive extrusion process. Part II: Simulations and

- verifications for the twin screw extrusion, *Polym Eng Sci*, **40** : 2511-2538.
- Ganzeveld KJ, Capel JE, van der Wal DJ, Janssen LPBM (1993) The modeling of a counter-rotating twin screw extruder as reactor for single-component reactions, *Chem Eng Sci*, **49** : 1639-1649.
- Gao J, Walsh GC, Bigio D, Briber RM, Wetzel MD (2000) Mean residence time analysis for twin screw extruders. *Polym Eng Sci*, **40** : 227-237.
- Gargea SC, Wetzel MD, Ogunnaike BA (2012) Control-relevant model identification of reactive extrusion processes, *J Proc Control*, **22** : 1457-1467.
- Gaspar-Cunha A, Poulesquen A, Vergnes B, Covas JA (2002) Optimization of processing conditions for polymer twin-screw extrusion, *Intern Polym Proc*, **17** : 201-213.
- Gaspar-Cunha A, Vergnes B, Covas JA (2005) Defining the configuration of co-rotating twin-screw extruders with multi-objective evolutionary algorithms, *Polym Eng Sci*, **45** : 1169-1173.
- Gimenez J, Boudris M, Cassagnau P, Michel A (2000a) Control of bulk ϵ -caprolactone polymerization in a twin screw extruder, *Polym Reac Eng*, **8** : 135-157.
- Gimenez J, Boudris M, Cassagnau P, Michel A (2000b) Bulk polymerization of ϵ -caprolactone in twin screw extruder: a step toward the process control, *Intern Polym Proc*, **15** : 20-27.
- Gimenez J, Cassagnau P, Michel A (2000c) Bulk polymerization of ϵ -caprolactone: rheological predictive laws, *J Rheol*, **44** : 527-547.
- Giudici R, do Nascimento CAO, Beiler IC, Scherbakoff N (1997) Transient experiments and mathematical modeling of an industrial twin-screw extruder reactor for nylon-6,6 polymerization. *Ind Eng Chem Res*, **36** : 3513-3519.
- Goma-Bilongo T, Couenne F, Jallut C, Le Gorrec Y, Di Martino A (2012) Dynamic modeling of the reactive twin-Screw corotating extrusion process: experimental validation by using

- inlet glass fibers injection response and application to polymers degassing. *Ind Eng Chem Res*, **51** : 11381 – 11388.
- Grimard J, Dewasme L, Van de Wouwer A (2016) A review of dynamic models of hot-melt extrusion. *Processes*, **7** : 19-47.
- Haberstroh E, Jakisch L, Henuge E, Schwarz P (2002). Real-time monitoring of reactive extrusion processes by means of in-line infrared spectroscopy and infrared temperature measurement, *Macromol Mat Eng*, **287** : 203-208.
- Haley TA, Mulvaney SJ (2000) On-line system identification and control design of an extrusion cooking process: Part II. Model predictive and inferential control design, *Food Control*, **11** : 121—129.
- Hu GH, Kadri I, Picot C (1999) On-line measurement of the residence time distribution in screw extruders. *Polym Eng Sci*, **39** : 930-939.
- Huneault MA, Champagne MF, Luciani A (1996). Polymer blend mixing and dispersion in the kneading section of a twin-screw extruder, *Polym Eng Sci*, **36** : 1694-1706.
- Jakisch L, Fischer D, Stephan M, Eichhorn KJ (1995). In-line-analytik von polymerreaktionen, *Kunstst*, **85** : 1338-1344.
- Janssen LPBM (1998) On the stability of reactive extrusion. *Polym Eng Sci*, **38** : 2010-2019.
- Janssen LPBM, Rozendal PF, Hoogstraten HW, Cioffi M (2001) A dynamic model for multiple steady states in reactive extrusion. *Intern Polym Proc*, **16** : 263-271.
- Janssen LPBM, Rozendal PF, Hoogstraten HW, Cioffi M (2003) A dynamic model accounting for oscillating behavior in reactive extrusion. *Intern Polym Proc*, **18** : 277-284.
- Jarukumjorn K, Min K (2000). On-line monitoring of free radical grafting in a model twin screw extruder, *SPE ANTEC Tech Papers*, 2064-2067.
- Jiang Z, Yang Y, Mo S, Yao K, Gao F (2012) Polymer extrusion: From control system design to product quality. *Indus Eng Chem Res*, **51** : 14759–14770.

- Jongbloed HA, Kiewiet JA, Van Dijk JH, Janssen LBPM (1995) The self-wiping co-rotating twin screw extruder as polymerization reactor for methacrylates, *Polym Eng Sci*, **35** : 1569-1579.
- Kim PJ, White JL (1994) Transesterification of ethylene vinyl acetate copolymer in a modular intermeshing corotating twin screw extruder with different screw configurations, *J Appl Polym Sci*, **54** : 33-45.
- Kim B, White JL (1997) Simulation of thermal degradation, peroxide induced degradation and maleation of polypropylene in a modular co-rotating twin screw extruder, *Polym Eng Sci*, **37** : 576-589.
- Kim EK, White JL (2000a) Isothermal transient startup of a starved flow modular co-rotating twin screw extruder. *Polym Eng Sci*, **40** : 543-553.
- Kim EK, White JL (2000b) Non-isothermal transient startup of a starved flow modular co-rotating twin screw extruder. *Intern Polym Proc*, **14** : 233-241.
- Kim EK, White JL (2002) Transient compositional effects from feeders in a starved flow modular co-rotating twin screw extruder. *Polym Eng Sci*, **42** : 2084-2092.
- Kochhart AK, Parnaby J (1977) Dynamical modelling and control of plastics extrusion processes, *Automatica*, **13** :177-183.
- Komolprasert V, Ofoli RY (1991) A dispersion model for predicting the extent of starch liquefaction by bacillus licheniformis α -amylase during reactive extrusion. *Biotech Bioeng*, **37** : 681 – 690.
- Kotzé R, Wiklund J, Haldenwang R (2013) Optimisation of Pulsed Ultrasonic Velocimetry system and transducer technology for industrial applications, *Ultrasonics*, **53** : 459-469.
- Kulshreshtha MK, Zaror CA, Jukes DJ (1991) Automatic control of food extrusion: problems and perspectives. *Food Control*, **2** : 80-86.
- Kulshreshtha MK, Zaror CA (1992) An unsteady state model for twin screw extruders. *Trans*

IChemE, **70** : 21 -28.

Kulshreshtha MK, Zaror CA (1995) Simulating the performance of a control system for food extruders using model-based set-point adjustment. *Food Control*, **6** : 135-141.

Kye H, White JL (1996) Simulation of continuous polymerization in a modular intermeshing co-rotating twin screw extruder, *Intern Polym Proc*, **11** : 129-138.

Lafleur PG, Vergnes B (2014) *Extrusion des Polymères*, Lavoisier Hermès, Paris.

Larochette M, Graebing, Nasri J, Léonardi F (2009) Optimization of the polymer foam process by the residence time distribution approach. *Ind Eng Chem Res*, **48** : 4884-4891.

Li CH (1999) Modelling extrusion cooking. *Trans IChemE*, **77** : 55 -63.

Liu HY, Yao Z, Cao K, Li BG (2010) Characteristic analysis on a reactive extrusion process for the imidization of poly(styrene-co-maleic anhydride) with aniline. *Chem Eng Sci*, **65** :1781 – 1789.

Liu X, Li K, McAfee M, Nguyen BK, McNally GM (2012) Dynamic gray-box modeling for on-line monitoring of polymer extrusion viscosity, *Polym Eng Sci*, **52** : 1332–1341.

Lotero F, Couenne F, Maschke M, Sbarbaro D (2018) Energy-based control of a distributed parameter bi-zone model with moving interface, *Intern J Control*, sous presse, doi.org/10.1080/00207179.2018.1424939

Machado AV, Covas JA, van Duin M (1999). Evolution of morphology and of chemical conversion along the screw in a corotating twin screw extruder, *J Appl Polym Sci*, **71** : 135-141.

Machado AV, Covas JA, van Duin M (2004a). A study of grafting reactions during processing of polyolefins, *Adv Polym Tech*, **23** : 196-204.

Machado AV, Maia JM, Canevarolo SV, Covas JA (2004b). Evolution of peroxide-induced thermomechanical degradation of polypropylene along the extruder, *J Appl Polym Sci*, **91** : 2711-2720.

- Machado AV, van Duin M (2005). Dynamic vulcanisation of EPDM/PE-based thermoplastic vulcanisates studied along the extruder axis, *Polymer*, **46** : 6575–6586.
- McAfee M, Thompson S (2007) A novel approach to dynamic modelling of polymer extrusion for improved process control, *Proc. IMechE Part I: J. Systems and Control Engineering*, **221** : 617 – 628.
- Michaeli W, Grefenstein A, Berghaus U (1995), Twin-screw extruders for reactive extrusion, *Polym Eng Sci*, **35** : 1485-1504.
- Migler KB, Bur AJ (1998). Fluorescence based measurement of temperature profiles during polymer processing, *Polym Eng Sci*, **38** : 213-221.
- Moghaddam L, Rintoul L, Halley PJ, George GA, Fredericks PM (2012). In-situ monitoring by fibre-optic NIR spectroscopy and rheometry of maleic anhydride grafting to polypropylene in a laboratory scale reactive extruder, *Polym Test*, **31** : 155-163.
- Moreira RG, Srivastava AK, Gerrish JB (1990) Feedforward control model for a twin-screw food extruder, *Food Control*, **1** : 179–184.
- Mould S, Barbas JM, Machado AV, Nóbrega JM, Covas JA (2011). Measuring the rheological properties of polymer melts with on-line rotational rheometry, *Polym Test*, **30** : 602-610.
- Mudalamane R, Bigio DI (2003) Process variations and the transient behavior of extruders. *AIChE J*, **49** : 3150 – 3160.
- Nauman EB (2008). Residence time theory. *Ind Eng Chem Res*, **47** : 3752 – 3766.
- Nield AS, Budman HM, Tzoganakis C (2000) Control of a LDPE reactive extrusion process, *Control Eng Pract*, **8** : 911– 920
- Nikitine C, Rodier E, Sauceau M, Fages J (2009) Residence time distribution of a pharmaceutical grade polymer melt in a single screw extrusion process. *Chem Eng Res Des*, **87** : 809-816.
- Ogata K. (2010). *Modern Control Engineering*, 5ème édition, Prentice Hall, Upper Saddle

River.

- Özbek M O, Bayram G, Özgen C (2014) Molecular weight control of poly(ethylene terephthalate) in extrusion process, *Polym Eng Sci*, **54** : 459–465.
- Perusich S, McBrearty M (2000). Dielectric spectroscopy for polymer melt composition measurements, *Polym Eng Sci*, **40** : 214-226.
- Popescu O, Popescu DC, Wilder J, Karwe MV (2001) A new approach to modeling and control of a food extrusion using artificial neural network and expert system, *J Food Proc Eng*, **24** : 17–36.
- Poulesquen A, Vergnes B (2003) A study of residence time distribution in co-rotating twin-screw extruders. Part I: Theoretical modeling. *Polym Eng Sci*, **43** : 1841-1848.
- Poulesquen A, Vergnes B, Cassagnau P, Gimenez J, Michel A (2001) Polymerization of ϵ -caprolactone in a twin screw extruder: experimental study and modelling, *Intern Polym Proc*, **16** : 31-38.
- Poulesquen A, Vergnes B, Cassagnau P, Michel A, Carneiro OS, Covas JA (2003) A study of residence time distribution in co-rotating twin-screw extruders. Part II: Experimental validation. *Polym Eng Sci*, **43** : 1849-1862.
- Prat L, Guiraud P, Rigal L, Gourdon C (1999) Two phase residence time distribution in a modified twin screw extruder. *Chem Eng Proc*, **38** : 73 -83.
- Prat L, Guiraud P, Rigal L, Gourdon C (2004) Solid-liquid transport in a modified co-rotating twin-screw extruder – dynamic simulator and experimental validation. *Chem Eng Proc*, **43** : 881 -886.
- Previdia F, Savaresi SM, Panarotto A (2006) Design of a feedback control system for real-time control of flow in a single-screw extruder, *Control Eng Pract*, **14** : 1111–1121.
- Puaux JP, Bozga G, Ainsler A (2000) Residence time distribution in a corotating twin-screw extruder. *Chem Eng Sci*, **55** : 1641 – 1651.

- Puaux JP, Cassagnau P, Bozga G, Nagy I (2006) Modeling of polyurethane synthesis by reactive extrusion. *Chem Eng Proc*, **45** : 481 – 487.
- Rajan VV, Waber R, Wieser J (2010). Online monitoring of the thermal degradation of POM during melt extrusion, *J Appl Polym Sci*, **115** : 2394-2401.
- Ryu RH, Gogos CG, Xanthos X (1992) Parameters affecting process efficiency of peroxide-initiated controlled degradation of polypropylene, *Adv Polym Technol*, **11** : 121-131.
- Saerens L, Vervaeet C, Remon JP, De Beer T (2014). Process monitoring and visualization solutions for hot-melt extrusion: a review, *J Pharm Pharmacol*, **66** : 180-203.
- Sasic S, Kita Y, Furukawa T, Watari M, Siesler HW, Ozaki Y (2000). Monitoring the melt-extrusion transesterification of ethylene-vinylacetate copolymer by self-modeling curve resolution analysis of on-line near-infrared spectra, *Analyst*, **125** : 2315-2321.
- Siesler HW, Ozaki Y, Kawata S, Heise HM (2007). *Near-Infrared Spectroscopy: Principles, Instruments, Applications*, Wiley-VCH.
- Singh B, Mulvaney SJ (1994) Modeling and process control of twin-screw cooking food extruders, *J Food Eng*, **23** : 403-428.
- Soares K, Cunha Santos AM, Canevarolo SV (2011). In-line rheo-polarimetry: A method to measure in real time the flow birefringence during polymer extrusion, *Polym Test*, **30** : 848-855.
- Springer PW, Brodkey RS, Lynn RE (1985). Development of an extrusion rheometer suitable for on-line rheological measurements, *Polym Eng Sci*, **15** : 583–587.
- Sutanto P, Picchioni F, Janssen LPBM (2006) Modelling a continuous devulcanization in an extruder. *Chem Eng Sci*, **61** : 7077 – 7086.
- Tan J, Hofer JM (1995) Self-tuning predictive control of processing temperature for food extrusion, *J Proc Control*, **5** : 183– 189.
- Tang H, Zong Y, Zhao L (2016) Numerical simulation of micromixing effect on the reactive

- flow in a co-rotating twin screw extruder, *Chinese J Chem Eng*, **24** :1135-1146.
- Teixeira C, Covas JA, Berzin F, Vergnes B, Gaspar-Cunha A (2011) Applications of evolutionary algorithms for the definition of optimal twin-screw extruder configuration for starch cationisation, *Polym Eng Sci*, **51** : 330-340.
- Teixeira PF, Hilliou L, Covas JA, Maia JM (2013). Assessing the practical utility of the hole-pressure method for the in-line rheological characterization of polymer melts, *Rheol Acta*, **52** : 661-672.
- Teixeira PF, Covas JA, Maia JM, Hilliou L (2014). In-line particle size assessment of polymer suspensions during processing, *Polym Test*, **37** : 68-77.
- Teixeira PF, Maia JM, Covas JA, Hilliou L (2015). A small-scale experimental extrusion set-up for exploring relationships between process-induced structures and characteristics of multiphase polymer systems, *Macromol Mat Eng*, **300** : 1278–1289.
- Teixeira PF, Ferrás LL, Hilliou L, Covas JA (2018). A new double-slit rheometrical die for in-process characterization and extrusion of thermo-mechanically sensitive polymer systems, *Polym Test*, **66** : 137-145.
- Trifkovic M, Sheikhzadeh M, Choo K, Rohani S (2012) Model predictive control of a twin-screw extruder for thermoplastic vulcanizate (TPV) applications, *Comput Chem Eng*, **36** : 247– 254.
- Tzoganakis C, Vlachopoulos J, Hamielec AE (1988a) Production of controlled-rheology polypropylene resins by peroxide promoted degradation during extrusion, *Polym Eng Sci*, **28** : 170-180.
- Tzoganakis C., Vlachopoulos J, Hamielec AE (1988b) Modeling of the peroxide degradation of polypropylene, *Intern Polym Proc*, **3** : 141-150.
- Valette R, Coupez T, David C, Vergnes B (2009) A direct 3D numerical simulation code for extrusion and mixing processes, *Intern Polym Proc*, **24** : 141-147.

- Van der Goot AJ, Hetteema R, Jansen LPBM (1997). The working domain in reactive extrusion. Part I: The effect of the polymer melt viscosity, *Polym Eng Sci*, **37** : 511-518.
- Van Puyvelde P, Velankar S, Moldenaers P (2001). Rheology and morphology of compatibilized polymer blends, *Current Opin Colloid Interf Sci*, **6** : 457-463.
- Vergnes B (2018, sous presse) Melt-mixing of organoclay and polypropylene in a twin-screw extruder: influence of processing conditions on dispersion and microstructure, in: *Processing of Polymer Nanocomposites* (Ed. S Kenig), Hanser, Munich.
- Vergnes B, Chapet M (2001). Procédés d'extrusion bivis. *Techniques de l'Ingénieur*. AM 3 653, 1 – 23.
- Vergnes B, Puissant S (2002) Extrusion monovis (partie 1). *Techniques de l'Ingénieur*. AM 3 650, 1 – 16.
- Vergnes B, Della Valle G, Tayeb J (1993). A specific slit die rheometer for extruded starchy products. Design, validation and application to maize starch, *Rheol Acta*, **3** : 465–476.
- Vergnes B, Della Valle G, Delamare L (1998) A global computer software for polymer flows in corotating twin screw extruders, *Polym Eng Sci*, **38** : 1781-1792.
- Vergnes B, Souveton G, Delacour ML, Ainsier A (2001) Experimental and theoretical study of polymer melting in a co-rotating twin screw extruder, *Intern Polym Proc*, **16** : 351-362.
- Ville J, Inceoglu F, Ghamri N, Pradel JL, Durin A, Valette R, Vergnes B (2013) Influence of extrusion conditions on fiber breakage along the screw profile during twin screw compounding of glass fiber-reinforced PA, *Intern Polym Proc*, **28** : 49-57.
- Villiermaux J (1994) Réacteurs chimiques - Principes, *Techniques de l'Ingénieur*, J 4010, 1-45.
- Villiermaux J (1999) *Génie de la réaction chimique : conception et fonctionnement des réacteurs*. Lavoisier, Tech & Doc, Paris.
- Wang Y, Tan J (2000) Dual-target predictive control and application in food extrusion,

- Control Eng Pract*, **8** : 1055–1062.
- Wang L, Smith S, Chessaric C (2008) Continuous-time model predictive control of food extruder. *Control Eng Pract*, **16** : 1173–1183.
- Wang Y, Steinhoff B, Brinkmann C, Alig I (2008). In-line monitoring of the thermal degradation of poly(L-lactic acid) during melt extrusion by UV-vis spectroscopy, *Polymer*, **49** : 1257-1265.
- Wu L, Jia Y, Sun S, Zhang G, Zhao G, An L (2007) Study on reactive extrusion processes of block copolymer, *Mat Sci Eng A*, **454-455** : 221-226.
- Wu L, Jia Y, Sun S, Zhang G, Zhao G, An L (2008) Numerical simulation of reactive extrusion processes for activated anionic polymerization, *J Mat Proc Tech*, **199** : 56-63.
- Ye AI, Jaw YM (1998) Modeling residence time distribution for single screw extrusion process, *J Food Eng*, **35** : 211 – 232.
- Yquel V, Machado AV, Covas JA, Flat JJ (2009). The contribution of the melting stage to the evolution of morphology and chemical conversion of immiscible PA/PE blends in twin screw extruder, *J Appl Polym Sci*, **114** : 1768-1776.
- Zagal A, Vivaldo-Lima E, Manero O (2005) A mathematical model for the reactive extrusion of methyl methacrylate in a co-rotating twin-screw extruder, *Ind Eng Chem Res*, **44** : 9085-9817.
- Zhang CL, Feng LF, Hoppe S, Hu GH (2009) Residence time distribution : an old concept in chemical engineering and a new application in polymer processing, *AIChE J*, **55** : 279 – 283.
- Zhou P, Liu H, Tan K, Chen C (2012) Application and research of fuzzy control simulation in twin screw extruder, *Proc Eng*, **29** : 542–546
- Zhu L, Narh KA, Hyun KS (2005) Evaluation of numerical simulation methods in reactive extrusion, *Adv Polym Tech*, **24** : 183-193.