



مدل سازی رفتار رشد حباب در سیستم فوم شدن ناپیوسته پلی استایرن/دی اکسید کربن با روش المان محدود

مصطفی صالحی¹، مهدی سلامی حسینی^{2*}، مصطفی رضائی³

1- دانشجوی دکتری تخصصی، مهندسی شیمی-پلیمر، دانشگاه صنعتی سهند، تبریز

1- دانشیار، مهندسی پلیمر، دانشگاه صنعتی سهند، تبریز

3- دانشیار، مهندسی پلیمر، دانشگاه صنعتی سهند، تبریز

* تهریز، کد پستی 51335-1996، salami@sut.ac.ir

چکیده

اطلاعات مقاله

مقاله پژوهشی کامل

دریافت: 10 بهمن 1394

پذیرش: 08 اردیبهشت 1395

ارائه در سایت: 12 خرداد 1395

کلید واژگان:

دینامیک فوم شدن

روش المان محدود

سیال ویسکوالاستیک

انتقال جرم

فوم‌های پلیمری موادی با ساختار سلولی هستند که از یک بستر پلیمری و تعداد زیادی سلول‌های گازی که در بستر پلیمری پخش شده‌اند، طی فرایند فوم شدن تشکیل یافته‌اند. در این مطالعه مرحله رشد حباب (پس از هسته‌گذاری) در فرایند فوم شدن پلی‌استایرن/دی‌اکسید کربن شبیه‌سازی شده و با نتایج تجربی موجود مقایسه گردید. به همین منظور یک حباب منفرد که توسط یک پوسته پلیمری حاوی عامل فوم‌زا احاطه شده است، در نظر گرفته شد و برای توجیه خصوصیات ویسکوالاستیک پوسته، از مدل ماکسول بهبود یافته استفاده گردید. همچنین برای تعیین پروفیل غلظت در پوسته پیرامون حباب، معادلات انتقال جرم از طریق روش‌های انتگرالی، تعریف تابع پتانسیل غلظت و روش المان محدود حل شدند. نتایج به دست آمده نشان داد زمانی که روش المان محدود به کار گرفته شد و به طور مستقیم گرادیان غلظت گاز در فصل مشترک حباب-پوسته برای محاسبه فشار درون حباب استفاده شد، نتایج شبیه‌سازی به نتایج تجربی بسیار نزدیک بوده است و در هر زمان مشخص از رشد حباب، خطای شبیه‌سازی زیر 1 درصد می‌باشد. همچنین، تاثیر خصوصیات ترمو فیزیکی و رئولوژیکی سامانه بر فرایند رشد حباب مورد مطالعه قرار گرفت به نحوی که با 10 برابر شدن ضریب نفوذ اندازه حباب در زمان 1 ثانیه از رشد حباب 1.5 برابر شده است در حالی که با 1000 برابر شدن ویسکوزیته اندازه حباب کمتر از 2 درصد تغییر یافته است که نشان می‌دهد مرحله رشد حباب در فرایند فوم شدن تحت کنترل پدیده انتقال جرم است.

Modeling of bubble growth behavior in the PS/CO₂ batch foaming system using finite element method

Mostafa Salehi, Mahdi Salami Hosseini*, Mostafa Rezaei

Department of Polymer Engineering, Sahand University of Technology, Tabriz, Iran

*P.O.B. 51335-1996, Tabriz, Iran, salami@sut.ac.ir

ARTICLE INFORMATION

Original Research Paper
Received 30 January 2016
Accepted 27 April 2016
Available Online 01 June 2016

Keywords:
Foaming Dynamics
Finite Element Method
Viscoelastic Fluids
Mass Transfer

ABSTRACT

Polymeric foams have a cellular structure composed of a polymeric matrix with gaseous cells which are achieved by expansion of a blowing agent in polymer melt matrix during a foaming process. In the present study, the bubble expansion step in Polystyrene/CO₂ batch foaming process was simulated and compared to the reported experimental results. A single spherical bubble surrounded by an incompressible viscoelastic fluid (upper-convected Maxwell model) was considered. To calculate concentration profile in the shell, mass diffusion equations were solved using finite element method, potential function definition and integral methods. The predicted results show that when the gas concentration profile obtained by finite element method and the concentration gradient near the bubble-shell interface were used to calculate the pressure inside the bubble, the predicted results were in good agreement with the experimental ones as there was less than 1% error at each foaming time. The effects of the thermo-physical and rheological properties on the bubble growth dynamics were also studied and it was found that increasing the diffusivity coefficient by a factor of 10 would increase the bubble size up to 1.5 times, whereas increasing the viscosity by 3-fold would only change the bubble size about 2%, which shows that the bubble growth step in foaming process was a mass transfer controlled process.

1- مقدمه

چگالی متفاوت، بسته به نوع کاربرد می‌توانند به وسیله فرایندهای متنوع و همچنین میزان عامل فوم‌زای متفاوت تهیه شوند. فرایند فوم شدن فرایندی پیچیده و شامل انتقال همزمان حرارت، جرم و مومنتوم، همراه با تغییرات در خواص رئولوژیکی ماده است. مسائل درگیر در فرایند فوم شدن مانند ترمودینامیک گاز-پلیمر، برهم‌کنش‌های سطحی گاز-

فوم‌های پلیمری موادی با ساختار سلولی هستند که فاز جامد شامل بستر پلیمری بوده و فاز گازی به صورت ساختار سلولی در بستر پلیمری پخش می‌گردد. به واسطه تشکیل ساختار سلولی در ماتریس پلیمری، دانسیته توده نمونه حتی تا حدود یک صدم پلیمر پایه نیز کاهش می‌یابد. فوم‌های دارای

Please cite this article using:

M. Salehi, M. Salami Hosseini, M. Rezaei, Modeling of bubble growth behavior in the PS/CO₂ batch foaming system using finite element method, *Modares Mechanical Engineering*, Vol. 16, No. 5, pp. 321-328, 2016 (in Persian)

برای ارجاع به این مقاله از عبارت ذیل استفاده نمایید:

پلیمر، پلیمر-عامل هسته‌زا و همچنین خواص رئولوژیکی بستر پلیمری از اهمیت بسیاری برخوردار می‌باشد. فوم شدن تحت فرایندهای مختلفی می‌تواند انجام گیرد که یکی از متداول‌ترین آن‌ها فرایند ناپیوسته است. در این فرایند نمونه پلیمری در محفظه‌ای عایق و تحت فشار در مجاورت گاز قرار داده می‌شود و به محض اینکه نمونه با گاز به طور کامل اشباع شد، در معرض دمای بالای محیط قرار می‌گیرد. در این زمان، فشار به سرعت کاهش پیدا می‌کند و حلالیت گاز در پلیمر کاهش می‌یابد. وقوع این شرایط اولیه ناپایدار ترمودینامیکی (افت شدید فشار یا افزایش ناگهانی دما) منجر به تشکیل هسته‌های اولیه می‌شود که با نفوذ گاز از بستر پلیمری به داخل حباب‌های تشکیل یافته، حباب وارد مرحله رشد می‌شود و در نهایت نیز به دلیل کاهش میزان گاز در دسترس یا بالا بودن استحکام مذاب، رشد حباب متوقف می‌شود. بنابراین دینامیک فرایند فوم شدن شامل سه مرحله تشکیل حباب‌ها، رشد حباب‌ها و در نهایت به هم چسبیدن آن‌ها همراه با تثبیت ساختار نهایی فوم تشکیل یافته می‌باشد [5-1].

امروزه به وضوح مشخص شده است که تعداد، اندازه، توزیع اندازه، هندسه و نوع حباب‌ها نقش بسیار مهمی را در کنترل خواص نهایی فوم تهیه شده دارند. بنابراین، از آنجائی که خواص نهایی مواد با ساختار سلولی ارتباط مستقیمی با اندازه و شکل سلول‌ها دارد، مطالعات بنیادی بر روی رفتار رشد حباب در سیستم فوم شدن از اهمیت بسیاری برخوردار است [2]. در یک فرایند رشد حباب هر سه پدیده انتقال جرم، انتقال مومنوم و انتقال حرارت وجود دارند، اما در بررسی‌های صورت گرفته از انتقال حرارت صرف‌نظر شده است [6] و بدین ترتیب فرایند رشد حباب، فرایندی هم‌دم در نظر گرفته می‌شود که در مطالعات آزمایشگاهی نیز سعی می‌شود آزمایش در شرایط هم‌دم انجام گیرد [5-3].

نخستین مطالعات در بحث مدل‌سازی و شبیه سازی ریاضی فرایند انبساط حباب توسط استریت و همکارانش در سال 1971 انجام شد، بطوریکه تمامی معادلات درگیر در مدل‌سازی مانند معادلات پیوستگی، مومنوم و نفوذ به همراه معادله انتقال حرارت بررسی گردید. در این مطالعه مخلوط پلیمری سیال پاورلا در نظر گرفته شد و مشخص گردید که معادلات مومنوم و نفوذ بیشترین تأثیر را در نحوه رشد حباب دارند [7]. در سال 1984 آمن و دنسن رشد حباب‌های کروی را درون ماتریس پلیمری با در نظر گرفتن مدل سلول منفرد مدل‌سازی کردند که در این مطالعه آن‌ها با چشم پوشی از ماهیت ویسکوالاستیک پلیمر، سیال را نیوتونی در نظر گرفتند [8]. اما در سال 1991 عارف منش و ادوانی رفتار رشد حباب را در یک سیال ویسکوالاستیک با در نظر گرفتن میزان گاز محدود در دسترس مدل‌سازی نمودند [9]. آن‌ها برای بدست آوردن میزان نفوذ گاز به درون حباب، به دلیل اینکه گرادیان غلظت در نزدیکی فصل مشترک حباب-پوسته زیاد می‌باشد، برای پروفیل غلظت در پوسته تابع پتانسیلی تعریف نمودند که برای تعریف این تابع، از انتقال جرم جابجایی صرف‌نظر کردند. نتایج آن‌ها نشان داده است که حباب در داخل یک سیال ویسکوالاستیک سریع‌تر از سیال نیوتونی رشد می‌کند [9]. در سال 2001 ونروس مقایسه‌ای بین فرایند رشد آزاد حباب و فرایند انبساط با در نظر گرفتن پوسته اطراف حباب انجام داد و نتیجه گرفت که در مراحل اولیه فرایند رشد حباب هر دو مدل مشابه اما در مراحل پایانی متفاوت هستند و نیز مشخص شد که در مراحل میانی اگر سرعت رشد حباب پایین باشد هر دو مدل نتایج یکسانی را ارائه می‌دهند [10]. در سال 2002 پای و همکارانش بحث‌های مشابهی را در زمینه مدل‌سازی رشد حباب انجام دادند و

نتیجه جالب آن‌ها این بوده است که در فرایند انبساط حباب، انتقال حرارت متغیرکنترل‌کننده نیست و می‌توان از معادله انتقال حرارت صرف‌نظر نمود [6]. در سال 2006 لوانگ و همکارانش با استفاده از روش تفاضل محدود و صریح¹، فرایند رشد حباب را در سیستم پلی‌استایرن/دی‌اکسید کربن شبیه سازی کردند که پارامترهای رئولوژیکی تأثیر بسیار جزئی بر فرایند رشد حباب داشته است. همچنین نتایج آن‌ها نشان داده است که با افزایش زمان آسودگی زمینه پلیمری، نرخ رشد حباب افزایش می‌یابد [11]. در سال 2008 نیز تاکی اثر نرخ افت فشار را بر دینامیک فوم شدن در سیستم پلی-پروپیلن/دی اکسید کربن مورد مطالعه قرار داده است. وی برای شبیه سازی سیال حول حباب را نیوتنی در نظر گرفت و از مدل‌های انتگرالی با پروفیل غلظت‌های درجه 2 و 3 برای حل معادلات انتقال جرم استفاده نمود. نتایج وی نشان می‌دهد با افزایش نرخ افت فشار نرخ هسته‌گذاری و نرخ رشد حباب افزایش می‌یابد [12]. امامی و همکارانش در سال 2014 رفتار رشد حباب در سیستم فوم شدن پلی‌اتیلن با عامل فوم‌زای آزودی کربن آمید را شبیه سازی و با نتایج تجربی مقایسه نمودند. آن‌ها برای شبیه‌سازی از روش تفاضل محدود و صریح استفاده کردند و همچنین بستر را سیال نیوتنی در نظر گرفتند و گاز درون حباب از قانون هنری تبعیت می‌کند. نتایج آن‌ها نشان داده است که با افزایش اندازه اولیه حباب، ضریب نفوذ و کشش سطحی نرخ رشد حباب و اندازه نهایی آن افزایش یافته است اما با افزایش ثابت هنری، نرخ حرارت دهی و ویسکوزیته اندازه حباب کاهش می‌یابد [13]. لی و همکارانش نیز در سال 2011 رفتار رشد حباب را در سیستم پلی‌پروپیلن/دی اکسید کربن با در نظر گرفتن مدل ترمودینامیکی پنگ-رابینسون² و تعریف تابع پتانسیل شبیه سازی کردند. نتایج آن‌ها نشان داده است که حباب در زمینه پلیمری با درجه شاخه‌ای شدن بیشتر، رشد محدودتری دارد اما از طرفی دیگر گسیختگی آن دیرتر اتفاق می‌افتد [14].

تا به امروز در اکثر مطالعات در زمینه شبیه‌سازی رفتار رشد حباب از مدل‌های انتگرالی یا از روش‌های حل عددی تفاضل محدود استفاده شده است و همچنین برای غلبه بر مشکل گرادیان غلظت بسیار بالا در فصل مشترک حباب با پوسته از تعریف تابع پتانسیل برای غلظت استفاده شده است که به این منظور نیز از عبارت انتقال جرم جابجایی صرف‌نظر شده است. در این مطالعه از روش‌های حل عددی المان محدود، مدل‌های انتگرالی و روش تعریف تابع پتانسیل غلظت جهت شبیه‌سازی رفتار رشد حباب استفاده شده و نتایج آن با نتایج تجربی موجود در مراجع برای سیستم پلی استایرن/دی اکسید کربن [11] مورد قیاس قرار گرفت. در اکثر مطالعات انجام شده تا به امروز روش صریح برای ترم زمان در معادلات دیفرانسیل جزئی (معادله انتقال جرم) استفاده شده است [8-13]. بنابراین در مطالعات انجام شدن تغییرات پروفیل غلظت گاز در پوسته حول حباب گزارش نشده است. اما از آنجائیکه در مطالعه حاضر از روش المان محدود و شبه ضمنی برای حل معادله انتقال جرم استفاده گردید و از ترم انتقال جرم جابجایی صرف‌نظر نشد، تغییرات پروفیل غلظت با زمان به وضوح تعیین و گزارش شده است. همچنین در مطالعه حاضر سعی شده است تا ارتباط بین رفتار رشد حباب و تغییرات پروفیل غلظت گاز با زمان مورد مطالعه قرار گیرد که در سایر مطالعات انجام شده این ارتباط مورد مطالعه قرار نگرفته است.

¹ Explicit² Peng-Robinson

2- مدل سازی ریاضی و معادلات حاکم

در بررسی فرایند رشد حباب در یک بستر پلیمری، یک مدل ویسکوالاستیک برای تشریح خصوصیات بستر پلیمری مورد نیاز می باشد. همچنین برای بررسی دینامیک رشد حباب لازم است که معادله پیوستگی¹، معادله مومنوم²، معادلات ساختاری³ و معادله نفوذ جرم⁴ به صورت هم زمان و با در نظر گرفتن شرط اولیه و شرایط مرزی حل شوند. همانطور که در شکل 1 مشاهده می شود، برای شبیه سازی، یک حباب منفرد در نظر گرفته می شود که توسط یک پوسته ای احاطه شده است که این پوسته یک سیال ویسکوالاستیکی می باشد که حاوی میزان مشخص و محدودی گاز (عامل فومزا) است [11,9,2].

با حل معادله پیوستگی حول حباب در حال رشد، سرعت سیال در پوسته به صورت رابطه زیر می باشد [11,9]:

$$u_r = \frac{\dot{R}R^2}{r^2} \quad (1)$$

در رابطه فوق u_r سرعت سیال در مکان r و R شعاع حباب می باشد. با در نظر گرفتن میدان جریان کششی حول حباب در حال رشد، قانون بقای مومنوم برای سیال در جهت شعاعی بصورت رابطه زیر بدست می آید [9]:

$$\rho \left(\frac{\partial u_r}{\partial t} + u_r \frac{\partial u_r}{\partial r} \right) = - \frac{\partial P}{\partial r} + \frac{1}{r^2} \frac{\partial}{\partial r} (r^2 \tau_{rr}) - \frac{\tau_{\theta\theta} + \tau_{\phi\phi}}{r} \quad (2)$$

در رابطه فوق ρ و P به ترتیب تنش، دانسیته و فشار سیال می باشند. از آنجائی که ویسکوزیته سیال پلیمری بالا و عدد رینولدز بسیار کمتر از واحد می باشد، از ترم اینرسی در معادله بالا صرف نظر می شود. همچنین با فرض اینکه حباب بصورت یک کره متقارن باشد، $\tau_{\theta\theta}$ و $\tau_{\phi\phi}$ برابر در نظر گرفته می شوند. بنابراین با در نظر گرفتن این فرضیات معادله بالا بصورت رابطه زیر ساده می شود [11,9].

$$- \frac{\partial P}{\partial r} + \frac{\partial \tau_{rr}}{\partial r} + 2 \left(\frac{\tau_{rr} - \tau_{\theta\theta}}{r} \right) = 0 \quad (3)$$

به منظور اینکه بین تنش های نرمال در سیال با فشار گاز درون حباب و فشار اعمالی به مرز بیرونی پوسته رابطه ای برقرار شود، از رابطه فوق در جهت شعاعی از سطح حباب تا مرز خارجی پوسته انتگرال گیری می شود که نتیجه

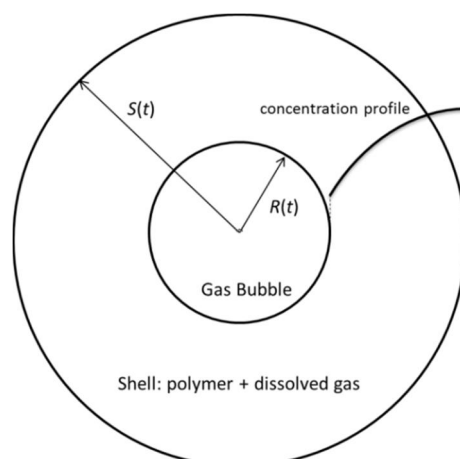


Fig. 1 Schematic view of a gas bubble surrounded by polymer / gas solution shell

شکل 1 شماتیکی از یک حباب گازی احاطه شده توسط پوسته پلیمر/گاز

بصورت رابطه زیر ارائه می گردد [11,9].

$$P(R) - P(S) + \tau_{rr}(S) - \tau_{rr}(R) + 2 \int_R^S \frac{\tau_{rr} - \tau_{\theta\theta}}{r} dr = 0 \quad (4)$$

با اعمال شرط تداوم تنش در فصل مشترک حباب و علم به این که تنش نرمال کلی در مرز بیرونی پوسته برابر با فشار اعمالی به سیستم می باشد، رابطه فوق به صورت رابطه (5) بازنویسی می شود [14,13,11,9].

$$P_g - \frac{2\sigma}{R} - P_f + 2 \int_R^S \frac{\tau_{rr} - \tau_{\theta\theta}}{r} dr = 0 \quad (5)$$

که P_g فشار گاز درون حباب، σ کشش سطحی و P_f فشار اعمالی به سیستم می باشند. برای محاسبه فشار گاز درون حباب از رابطه (5)، در اختیار داشتن مقادیر تنش های نرمال ضروری می باشد. به همین منظور مدل ماکسول بهبود یافته⁵ جهت تشریح خصوصیات رئولوژیکی پلیمر و محاسبه تنش های نرمال مورد استفاده قرار می گیرد که شکل نهایی و ساده شده آن برای میدان جریان مدنظر در ذیل آورده شده است [11,9].

$$\tau_{rr} + \lambda \left[\frac{\partial \tau_{rr}}{\partial t} + \frac{R^2 \dot{R}}{r^2} \frac{\partial \tau_{rr}}{\partial r} + \frac{4R^2 \dot{R}}{r^3} \tau_{rr} \right] = -4\eta \frac{R^2 \dot{R}}{r^3} \quad (6)$$

$$\tau_{\theta\theta} + \lambda \left[\frac{\partial \tau_{\theta\theta}}{\partial t} + \frac{R^2 \dot{R}}{r^2} \frac{\partial \tau_{\theta\theta}}{\partial r} - \frac{2R^2 \dot{R}}{r^3} \tau_{\theta\theta} \right] = 2\eta \frac{R^2 \dot{R}}{r^3} \quad (7)$$

در رابطه فوق λ زمان آسودگی سیال و η ویسکوزیته در نرخ برشی صفر می باشند. فشار درون حباب علاوه بر قانون بقای مومنوم، می تواند از طریق اصل بقای جرم برای گاز درون حباب نیز بدست آید که در رابطه (8) آورده شده است. سمت چپ این رابطه بیان کننده نرخ تجمع جرم درون حباب و سمت راست آن بیانگر نرخ نفوذ گاز از پوسته به درون حباب می باشد [9].

$$\frac{d}{dt} (\rho_g R^3) = 3\rho_g D R^2 \left(\frac{\partial C}{\partial r} \right)_{r=R} \quad (8)$$

که D ضریب نفوذ و C غلظت گاز می باشند. به منظور استفاده از رابطه (8)، مشخص بودن پروفیل غلظت گاز در پوسته حول حباب ضروری می باشد. موازنه جرم برای گاز حل شده در پوسته حول حباب طبق قانون دوم فیک به صورت رابطه (9) ارائه می شود [14,13,11,9].

$$\frac{\partial C}{\partial t} + u_r \frac{\partial C}{\partial r} = D \left[\frac{1}{r^2} \frac{\partial}{\partial r} \left(r^2 \frac{\partial C}{\partial r} \right) \right] \quad (9)$$

شرایط مرزی و اولیه برای حل معادله فوق به صورت زیر در نظر گرفته می شوند [14,13,11,9]:

$$C(r, t') = C_0 \quad (10 - a)$$

$$C(R, t) = C_w = K_h P_g(t) \quad (10 - b)$$

$$\frac{\partial C(S, t, t')}{\partial r} = 0 \quad (10 - c)$$

که C_w غلظت گاز در فصل مشترک و K_h ثابت هنری می باشد. در صورتیکه برای غلبه بر مشکل گرایان غلظت بسیار شدید در فصل مشترک، تابع پتانسیل برای غلظت تعریف شود، رابطه (9) با حذف عبارت انتقال جرم جابجایی به شکل زیر در نظر گرفته خواهد شد [9]:

$$\frac{\partial \phi}{\partial t} = 9D(y + R^3)^{4/3} \frac{\partial^2 \phi}{\partial y^2} \quad (11)$$

که y تبدیل مختصات لاگرانژی و ϕ تابع پتانسیل غلظت می باشند. برای تعیین فشار گاز درون حباب از شیوه های انتگرالی نیز استفاده شده است که در این صورت پروفیل غلظت به صورت درجه 2 (رابطه 12) و درجه 3 (رابطه 13) در نظر گرفته می شود که فشار درون حباب نیز به ترتیب از روابط (14) و

¹continuity equation

²momentum equation

³constitutive equations

⁴diffusion equation

⁵upper convected Maxwell (UCM)

(15) محاسبه می شوند [12].

$$\frac{C_{\infty} - C}{C_{\infty} - C_R} = \left(1 - \frac{r - R}{\delta}\right)^2 \quad (12)$$

$$\frac{C_{\infty} - C}{C_{\infty} - C_R} = \frac{r^3 - R^3}{(R + \delta)^3 - R^3} \quad (13)$$

$$\frac{d}{dt}(P_g R^3) = \frac{6D(R_g T)(C_{\infty} - C_R)R}{-1 + \left\{1 + \frac{\frac{2}{R^3} - \frac{P_g R^3 - P_{g0} R_0^3}{C_{\infty} - C_R}}{R_g T}\right\}^{\frac{1}{2}}} \quad (14)$$

$$\frac{d}{dt}(P_g R^3) = \frac{36 R^4 (R_g T)^2 (C_{\infty} - C_R)^2}{5 P_g R^3 - P_{g0} R_0^3} \quad (15)$$

در روابط فوق، δ ضخامت لایه مرزی غلظت، C_{∞} غلظت گاز در مرز خارجی پوسته، R_g ثابت عمومی گازها و T دما می باشند.

3- حل عددی

فلوچارت حل عددی استفاده شده در این مطالعه در شکل 2 آورده شده است. با توجه به اینکه فرایند انبساط حباب یک پدیده مرز متغیر است، به همین منظور از روش سعی و خطا برای شبیه سازی استفاده شد. به این ترتیب که در ابتدا شعاعی برای حباب حدس زده می شود و سپس تنش های نرمال در پوسته حول حباب محاسبه می شوند و در نهایت با قرار دادن مقادیر به دست آمده در رابطه (5)، فشار درون حباب با استفاده از معادله بقای مومنتوم به دست می آید. در مرحله بعدی پروفیل غلظت در پوسته حول حباب از طریق حل رابطه (9) تعیین شده و با قرار دادن گرادیان غلظت در فصل مشترک در رابطه (8)، فشار گاز درون حباب با استفاده از معادله بقای جرم به دست می آید. محاسبات در هر گام زمانی به قدری تکرار می شود که شعاع حدس زده شده صحیح باشد و دو فشار تعیین شده با یکدیگر برابر شوند. سپس محاسبات به گام زمانی بعدی رفته و همین عملیات محاسباتی تکرار می شود تا نمودار رشد حباب به دست آید. به منظور حل معادلات انتقال جرم و تعیین پروفیل غلظت گاز در پوسته حول حباب از روش المان محدود استفاده شد. به همین منظور فرم تضعیف شده قانون بقای جرم در مختصات کروی به صورت رابطه (16) ارائه می شود.

$$\int_{\Omega_e} w \frac{\partial c}{\partial t} d\Omega + \int_{\Omega_e} w \bar{u} \cdot \bar{\nabla} c d\Omega = - \int_{\Omega_e} D \bar{\nabla} w \cdot \bar{\nabla} c d\Omega + \oint_{\Gamma_e} D w \bar{\nabla} c \cdot \bar{n} d\Gamma \quad (16)$$

با در نظر گرفتن $w_i = N_i$ (روش گالرکین) و $C = \sum N_i C_i$ ، خواهیم داشت:

$$\begin{aligned} \int_{\Omega_e} N^T N d\Omega \frac{\partial \{C\}}{\partial t} + \int_{\Omega_e} u_r N^T \frac{\partial N}{\partial r} d\Omega \{C\} \\ + \int_{\Omega_e} D \frac{\partial N^T}{\partial r} \frac{\partial N}{\partial r} d\Omega \{C\} \\ = \oint_{\Gamma_e} DN \frac{\partial C}{\partial r} \cdot \bar{n} d\Gamma \end{aligned} \quad (17)$$

که معادله نهایی به صورت رابطه (18) خواهد بود:

$$[M]\{\dot{C}\} + [K]\{C\} = \{F\} \quad (18)$$

در رابطه فوق $[M]$ ، $[K]$ و $\{F\}$ به صورت زیر تعریف می شوند:

$$M_{ij} = \int_{\Omega_e} N_i N_j d\Omega \quad (19)$$

$$k_{ij} = \int_{\Omega_e} \left(u_r N_j \frac{\partial N_i}{\partial r} + D \frac{\partial N_i}{\partial r} \frac{\partial N_j}{\partial r} \right) d\Omega \quad (20)$$

$$F = \oint_{\Gamma_e} DN_i \frac{\partial C}{\partial r} \cdot \bar{n} d\Gamma \quad (21)$$

برای به دست آوردن پروفیل غلظت در پوسته حول حباب رابطه (18) حل شد که به این منظور تعداد 200 المان در پوسته حول حباب در نظر گرفته شد و از روش شبه ضمنی ($\alpha = 0.5$) برای گسسته سازی زمانی استفاده گردید [15].

4- نتایج و بحث

نمودار 3 تاثیر تعداد المان های انتخاب شده در مدل سازی انجام شده را نشان می دهد. همانطور که در شکل مشاهده می شود در تعداد المان های بالاتر از 100 عدد، نتایج مدل سازی تغییر چندانی نداشته است به خصوص که از المان بیشتر از 200 عدد تفاوت مشهودی در نتایج دیده نمی شود. به منظور مقایسه بهتر، خطای نسبی در اندازه حباب بین تعداد المان مختلف در جدول 1 آورده شده است. همانطور که در این جدول مشاهده می شود با افزایش تعداد المان ها خطای نسبی کاهش می یابد به نحوی که بین تعداد المان 200 عدد و 300 عدد تنها 0.31 درصد اختلاف مشاهده شده است که مقدار بسیار جزئی می باشد که قابل صرف نظر می باشد. بنابراین تعداد المان ها در مدل سازی اولیه 200 عدد در نظر گرفته شد. همچنین با افزایش ضخامت پوسته تعداد المان ها نیز در برنامه تا تعداد 500 عدد افزایش یافته است تا نتایج ارائه شده مستقل از تعداد المان های استفاده شده باشد.

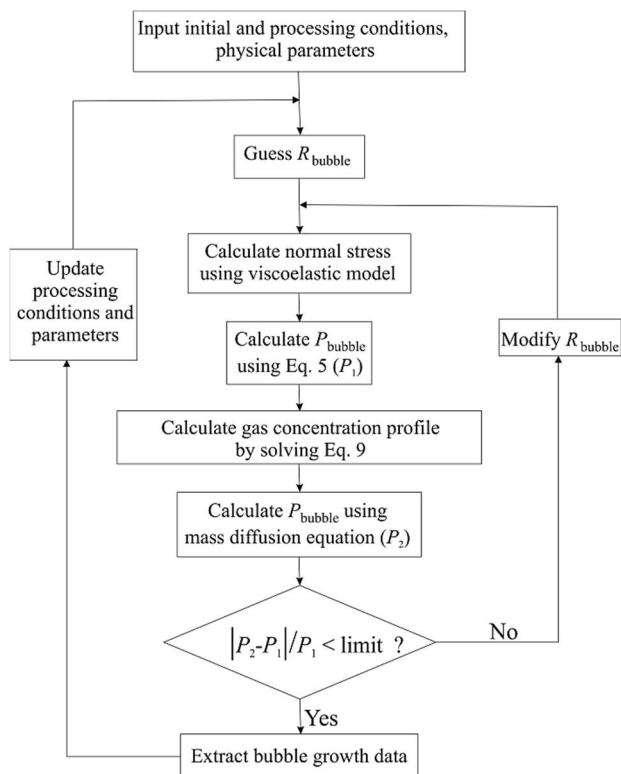


Fig. 2 Flowchart of employed algorithm for bubble growth simulation
 شکل 2 فلوچارت مورد استفاده برای حل عددی فرایند رشد حباب

از حل معادلات به روش المان محدود و مقایسه آن با مدل‌های قبلی تطابق بهتر نتایج این روش با نتایج تجربی را نشان می‌دهد. این روش به خوبی توانسته است رفتار رشد حباب را پیش‌بینی نماید. با استفاده از روش المان محدود، به طور مستقیم پروفیل غلظت گاز در پوسته حول حباب تعیین و مقدار واقعی گرادیان غلظت در فصل مشترک حباب-پوسته برای محاسبه فشار گاز درون حباب استفاده می‌شود، ضمن اینکه در این روش از هیچ عبارتی در معادله انتقال جرم صرف‌نظر نشده و کل معادله گسسته سازی شده است.

یکی از پارامترهای ترموفیزیکی مهم و موثر بر پدیده رشد حباب، ضریب نفوذ گاز در زمینه پلیمری می‌باشد [11,9] که تاثیر آن بر دینامیک رشد حباب در شکل 5 آورده شده است. از آنجائیکه با افزایش ضریب نفوذ، نرخ نفوذ گاز به درون حباب بیشتر می‌شود. بنابراین، حباب با نرخ بیشتری رشد کرده و سریعتر به اندازه نهایی خود رسیده است. همانطور که مشاهده می‌شود با افزایش ضریب نفوذ از $5 \times 10^{-10} \text{ m}^2/\text{s}$ به $5 \times 10^{-9} \text{ m}^2/\text{s}$ در زمان 1 ثانیه از رشد حباب، اندازه حباب در حدود 46 میکرومتر (در حدود 1.5 برابر) بیشتر بوده است.

همانطور که در منحنی رشد حباب در شکل‌های 4 و 5 مشاهده می‌شود، در لحظات ابتدایی انبساط (بعد از مرحله هسته‌گذاری)، سرعت رشد حباب پایین بوده، سپس افزایش پیدا کرده و دوباره سرعت رشد کاهش یافته و در نهایت رشد متوقف شده است. دلیل این رفتار در رشد حباب را می‌توان در تغییر پروفیل غلظت گاز در پوسته حول حباب با زمان جستجو نمود. شکل 6 (c-a) تغییرات پروفیل غلظت گاز در پوسته حول حباب با زمان در سه ضریب نفوذ مختلف را نشان می‌دهد. همانطور که در این شکل‌ها مشاهده می‌شود، بعد از هسته‌گذاری، در ابتدا گرادیان غلظت گاز در فصل مشترک حباب-پوسته پایین می‌باشد، سپس با گذشت زمان گرادیان غلظت گاز در پوسته افزایش یافته است که این عامل سبب نفوذ بیشتر گاز به درون حباب شده و حباب با نرخ بیشتری رشد یافته است و در نهایت با نفوذ بیشتر گاز به درون حباب پروفیل غلظت گاز حول حباب یکنواخت شده و به همین جهت رشد

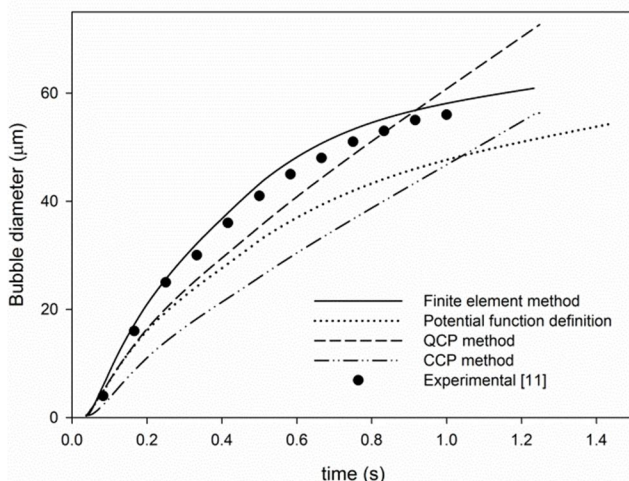


Fig. 4 comparison of the bubble growth simulation results obtained from CCP, QCP, potential function definition and finite element method with experimental results for PS-CO₂ foaming system.

شکل 4 نتایج بدست آمده از شبیه‌سازی رفتار رشد حباب با روش‌های CCP، QCP، تعریف تابع پتانسیل و المان محدود و مقایسه آن با نتایج تجربی برای سامانه فوم شدن PS/CO₂

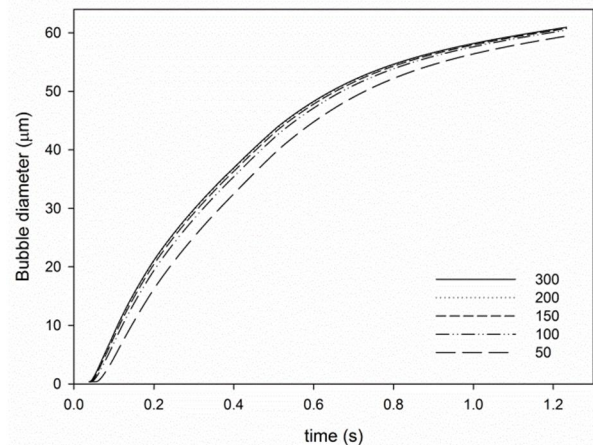


Fig. 3 Mesh independence investigation on the modeling

شکل 3 بررسی استقلال از تعداد شبکه در مدل‌سازی انجام شده

جدول 1 خطای نسبی مشاهده شده در اندازه حباب بین تعداد المان‌های مختلف در زمان 0.5 ثانیه

Table 1 Observed relative error in bubble diameter between different numbers of elements in 0.5s

تعداد المان‌ها	قطر حباب (μm)	خطای نسبی × 100
50	39.47	----
100	42.18	6.85
150	42.99	1.92
200	43.39	0.93
300	43.52	0.31

نمودار 4 نتایج حاصل از شبیه‌سازی رشد حباب با استفاده از روش‌های انتگرالی پروفیل غلظت درجه 2 (QCP) و درجه 3 (CCP)، روش تعریف تابع پتانسیل غلظت و روش حل المان محدود را نشان می‌دهد که با نتایج تجربی مقایسه شده‌اند. همانطور که در این نمودار ملاحظه می‌شود، در بین مدل‌های انتگرالی، نتایج مدل‌سازی با فرض پروفیل غلظت درجه دو (QCP) در این سیستم فوم شدن مورد مطالعه به نتایج تجربی نزدیک‌تر می‌باشد. با بررسی نتایج تجربی در زمان‌های بالاتر (بیش از 1 ثانیه) مشاهده می‌شود که فرایند رشد حباب در نهایت متوقف شده است. اما نتایج حاصل از مدل‌های انتگرالی توقف رشد حباب را نشان نمی‌دهند. این امر حاصل از نامحدود در نظر گرفتن میزان گاز در دسترس برای رشد حباب در مدل‌های انتگرالی می‌باشد [12]. زیرا در روابط (12) و (13) غلظت گاز در مرز خارجی پوسته (C_s) ثابت و برابر با غلظت اولیه گاز در نظر گرفته شده است [12] در حالی که در واقعیت میزان گاز در دسترس جهت رشد حباب محدود بوده که مقدار آن با نفوذ از پوسته به درون حباب کاهش یافته و رشد حباب در نهایت متوقف می‌شود [10].

استفاده از روش تعریف تابع پتانسیل که یک روش مرسوم در شبیه‌سازی رفتار رشد حباب می‌باشد، بخوبی توقف رشد حباب را نشان داده است. اما همانگونه که مشاهده می‌شود با نتایج تجربی اختلاف دارد که ناشی از کنار گذاشتن عبارت انتقال جرم جابجایی در این روش می‌باشد [9]. نتایج حاصل

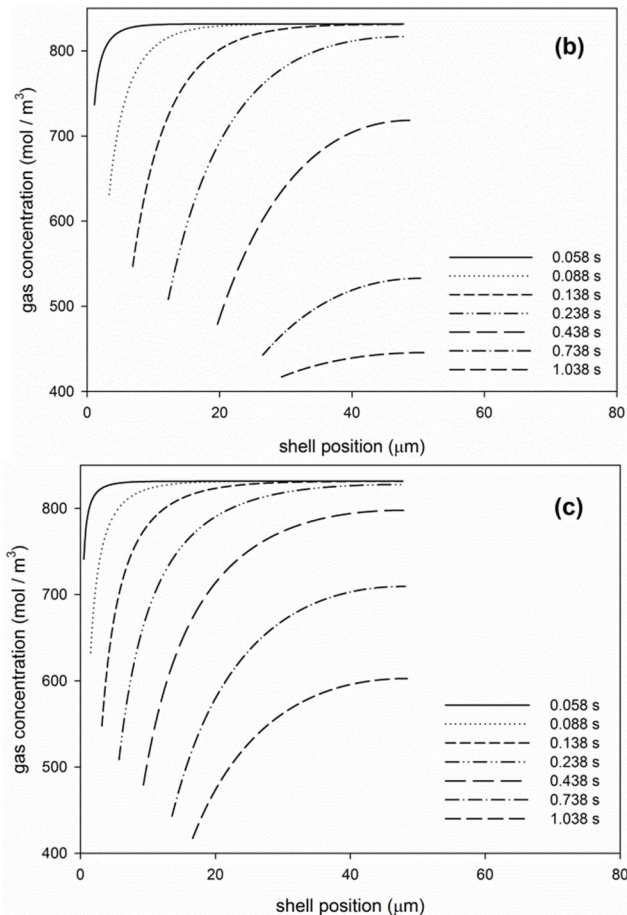


Fig. 6 the gas concentration profile with time in shell around the bubble: (a) $D=5 \times 10^{-9} \text{ m}^2/\text{s}$, (b) $D=1.9 \times 10^{-9} \text{ m}^2/\text{s}$ and (c) $D=5 \times 10^{-10} \text{ m}^2/\text{s}$

شکل 6 بررسی تغییرات پروفیل غلظت گاز با زمان در پوسته حول حباب؛

(c): $D=5 \times 10^{-10} \text{ m}^2/\text{s}$ و (b): $D=1.9 \times 10^{-9} \text{ m}^2/\text{s}$ ، (a): $D=5 \times 10^{-9} \text{ m}^2/\text{s}$

دسترس حباب در حال رشد دانست. همانطور که شکل 8 نشان می‌دهد، در لحظات ابتدایی رشد، تفاوتی بین منحنی‌ها مشاهده نمی‌شود. اما با گذشت زمان و کاهش گاز در دسترس برای رشد حباب در ضخامت پوسته کمتر، تفاوت در منحنی‌های رشد حباب کاملاً مشهودتر شده است.

شکل 9 تغییرات غلظت در مرز بیرونی پوسته حول حباب بر حسب زمان در ضخامت‌های مختلف پوسته را نشان می‌دهد. پرواضح است با افزایش

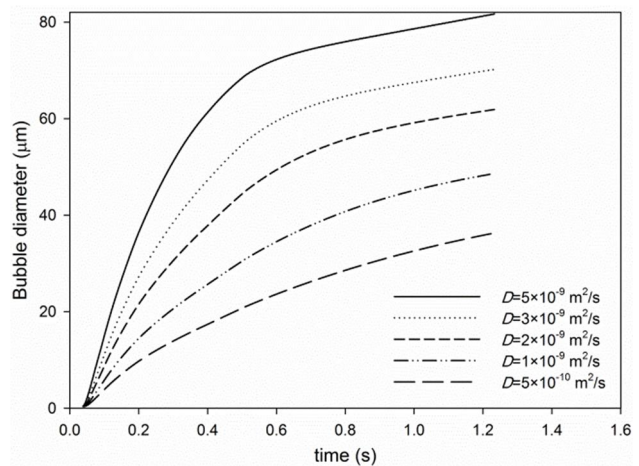
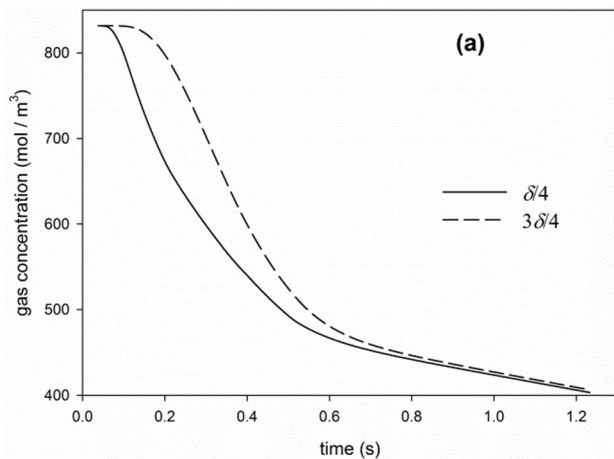
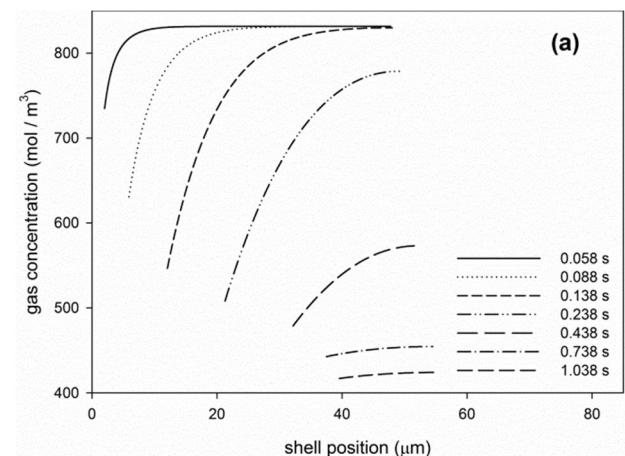


Fig. 5 the effect of mass diffusivity on the bubble growth process

شکل 5 بررسی اثر ضریب نفوذ بر فرایند رشد حباب

حباب نیز متوقف شده است. شکل 5 نشان می‌دهد که با کاهش ضریب نفوذ گاز، حباب با سرعت کمتری رشد کرده و رشد حباب دیرتر متوقف می‌شود که دلیل آن را می‌توان در پروفیل‌های غلظت (شکل 6) مشاهده نمود، جایی که با کاهش ضریب نفوذ گرادیان غلظت گاز در پوسته حول حباب دیرتر از بین رفته است. شکل (c) 6 پروفیل غلظت گاز در ضریب نفوذ پایین را نشان می‌دهد. مشاهده می‌شود که در زمان 1 ثانیه همچنان گرادیان غلظت حول حباب وجود دارد و به همین دلیل در شکل 5 مشاهده شد که حباب با ضریب نفوذ پایین‌تر در زمان 1 ثانیه در حال رشد بوده است در حالی که عکس این مهم در نفوذ پذیری بالاتر (شکل 6 (a)) مشاهده می‌شود به نحوی که پروفیل غلظت سریعتر یکنواخت شده و به همین دلیل شعاع حباب سریعتر به اندازه نهایی خود می‌رسد. شکل 7 تغییرات غلظت گاز در گره‌های $\delta/4$ و $3\delta/4$ در پوسته حول حباب با زمان را در سه ضریب نفوذ مختلف نشان می‌دهد. همانطور که در این شکل‌ها مشاهده می‌شود با کاهش ضریب نفوذ، غلظت گاز در نقاط ذکر شده با سرعت کمتری کاهش یافته است که این امر به دلیل نرخ نفوذ کمتر گاز از پوسته به درون حباب بوده است.

یکی از موارد بسیار تاثیرگذار در خواص فوم‌های پلیمری، دانسیته سلولی آن‌ها می‌باشد. هرچه میزان دانسیته سلولی بیشتر شود، اندازه سلول‌های تشکیل شده کوچکتر خواهد بود که دلیل آن را می‌توان در شکل 8 مشاهده نمود. با افزایش ضخامت پوسته پیرامون حباب (دانسیته سلولی کم) اندازه نهایی حباب بزرگتر شده است که علت آن را می‌توان افزایش میزان گاز در



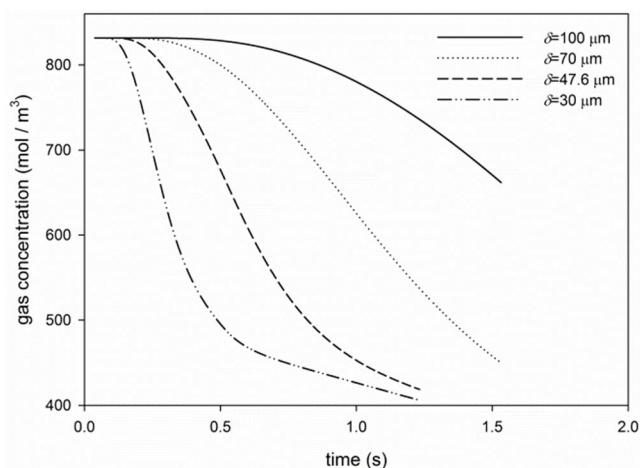


Fig. 9 Change of gas concentration of outer layer of shell with respect to time.

شکل 9 بررسی تغییرات غلظت گاز در مرز بیرونی پوسته برحسب زمان

تأثیر ویسکوزیته به عنوان یکی از پارامترهای رئولوژیکی بر رفتار رشد حباب در شکل 10 قابل مشاهده می‌باشد. با افزایش بسیار زیاد مقدار ویسکوزیته، رشد حباب به مقدار بسیار جزئی کاهش یافته است به نحوی که پس از گذشت 1 ثانیه از رشد حباب، با 1000 برابر شدن ویسکوزیته کمتر از 1 میکرومتر (کمتر از 2 درصد) کاهش اندازه حباب مشاهده شده است. در حالیکه در شکل 5 مشاهده شد، تغییرات جزئی در پارامترهای ترموفیزیکی به شدت رشد حباب را تحت تأثیر قرار می‌دهد. مقایسه بررسی اثر ضریب نفوذ در شکل 5 و ویسکوزیته در شکل 10 گویای این موضوع است که پدیده انتقال جرم کنترل کننده مرحله رشد حباب است. نتایج سایر مطالعات انجام شده نیز نشان داده است که ویسکوزیته کنترل کننده مراحل هسته‌گذاری و تشکیل ساختار نهایی فوم می‌باشد و تأثیر چندانی بر فرایند رشد حباب ندارد [11].

5- نتیجه گیری

در مطالعه حاضر، فرایند رشد حباب در سیستم فوم شدن پلی استایرن با گاز دی اکسید کربن با روش‌های انتگرالی، تعریف تابع پتانسیل و المان محدود

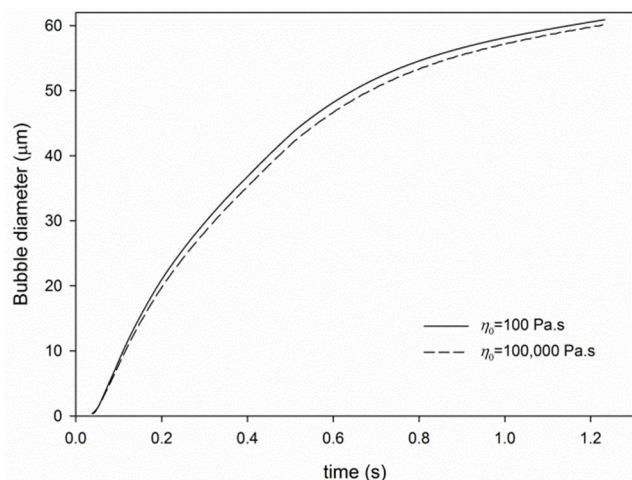


Fig. 10 the effect of zero shear viscosity on the bubble growth process at low relaxation time ($\lambda=1s$).

شکل 10 بررسی اثر ویسکوزیته در نرخ برشی صفر بر رفتار رشد حباب در زمان آسودگی کم ($\lambda=1s$)

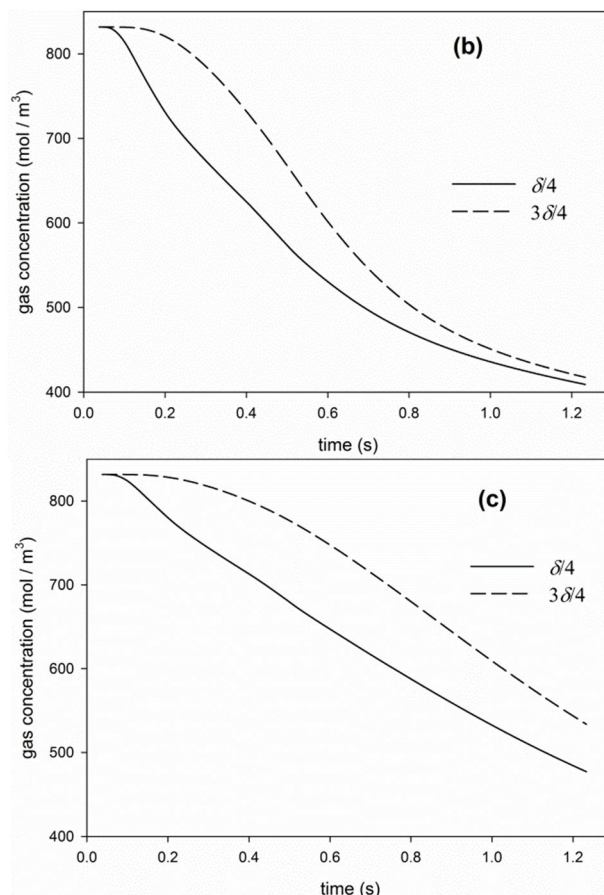


Fig. 7 Change of gas concentration of node $\frac{\delta}{4}$ and $\frac{3\delta}{4}$ in shell with time: (a) $D=5\times10^{-9} \text{ m}^2/\text{s}$, (b) $D=1.9\times10^{-9} \text{ m}^2/\text{s}$ and (c) $D=5\times10^{-10} \text{ m}^2/\text{s}$

شکل 7 بررسی تغییرات غلظت گاز در گره‌های $\delta/4$ و $3\delta/4$ در پوسته برحسب زمان؛

(c) $D=5\times10^{-10} \text{ m}^2/\text{s}$ و (b) $D=1.9\times10^{-9} \text{ m}^2/\text{s}$ ، (a) $D=5\times10^{-9} \text{ m}^2/\text{s}$

ضخامت پوسته غلظت گاز در مرز بیرونی پوسته (دورترین نقطه به حباب) به آرامی کاهش یافته است زیرا در صورت بیشتر شدن ضخامت پوسته مولکول‌های گاز موجود در پوسته بایستی مسافت بیشتری را طی کنند تا به درون حباب در حال رشد نفوذ کند.

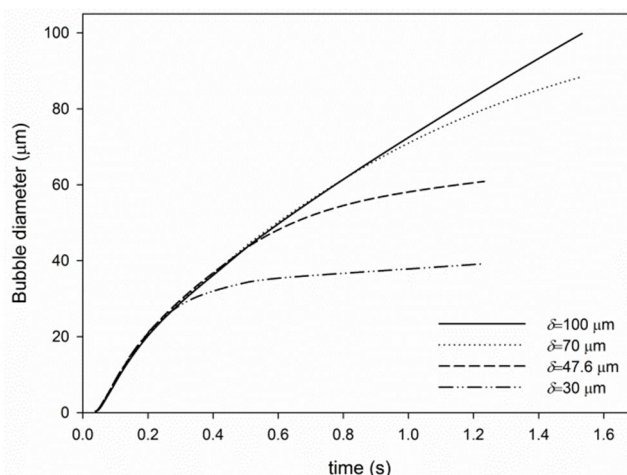


Fig. 8 The effect of initial shell thickness (δ) on the bubble growth process

شکل 8 بررسی اثر ضخامت اولیه پوسته (δ) بر رفتار رشد حباب

Ø تابع پتانسیل غلظت

زیر نویس ها

A عامل پفزا

G گاز

O لحظه اول

W فصل مشترک

7- مراجع

- [1] M. Saucéau, J. Fages, A. Common, New challenges in polymer foaming: A review of extrusion processes assisted by supercritical carbon dioxide, *Progress in Polymer Science*, Vol. 36, No. 6, pp. 749-766, 2011.
- [2] S. T. Lee, *Foam Extrusion: Principles and Practice*, first edition, CRC Press, 2000.
- [3] H. Azimi, M. Rezaei, M. Salehi, The effect of copolymer composition on the batch foaming dynamics of styrene/methylmethacrylate copolymers, *Journal of Thermoplastic Composite Materials*. doi:10.1177/0892705715575095.
- [4] H. Azimi, M. Rezaei, F. Abbasi, The effect of expansion conditions on the batch foaming dynamics of St-MMA copolymer, *Journal of Cellular Plastics*, Vol. 48, No. 2, pp. 125-140, 2011.
- [5] A. Wong, L. H. Mark, M. Hasan, The synergy of supercritical CO₂ and supercritical N₂ in foaming of polystyrene for cell nucleation, *The Journal of Supercritical Fluids*, Vol. 90, No. 1, pp. 35-43, 2014.
- [6] V. Pai, M. Favelukis, Dynamics of spherical bubble growth, *Journal of Cellular Plastics*, Vol. 38, No. 5, pp. 403-419, 2002.
- [7] J. R. Street, A. L. Fricke, Dynamics of phase growth in viscous non-Newtonian liquids, *Industrial & Engineering Chemistry Fundamentals*, Vol. 10, No. 1, pp. 54-64, 1971.
- [8] M. Amon, C. D. Denson, A study of the dynamics of foam growth: analysis of the growth of closely spaced spherical bubbles, *Polymer Engineering & Science*, Vol. 24, No. 13, pp. 1026-1034, 1984.
- [9] A. Arefmanesh, S. G. Advani, Diffusion-induced growth of a gas bubble in a viscoelastic fluid, *Rheologica Acta*, Vol. 30, No. 3, pp. 274-283, 1991.
- [10] D. C. Venerus, Diffusion-induced bubble growth in viscous liquids of finite and infinite extent, *Polymer Engineering & Science*, Vol. 41, No. 8, pp. 1390-1398, 2001.
- [11] S. N. Leung, C. B. Park, D. Xu, Computer simulation of bubble-growth phenomena in foaming, *Industrial & Engineering Chemistry Research*, Vol. 45, No. 23, pp. 7823-7831, 2006.
- [12] K. Taki, Experimental and numerical studies on the effects of pressure release rate on number density of bubbles and bubble growth in a polymeric foaming process, *Chemical Engineering Science*, Vol. 63, No. 14, pp. 3643-3653, 2008.
- [13] M. Emami, M. R. Thompson, J. Vlachopoulos, Experimental and numerical studies on bubble dynamics in nonpressurized foaming systems, *Polymer Engineering & Science*, Vol. 54, No. 8, pp. 1947-1959, 2014.
- [14] Y. Li, Z. Yao, Z. Chen, Numerical simulation of polypropylene foaming process assisted by carbon dioxide: Bubble growth dynamics and stability, *Chemical Engineering Science*, Vol. 66, No. 16, pp. 3656-3665, 2011.
- [15] J. N. Reddy, *An introduction to the finite element method*, second edition, McGraw-Hill, 1993.

شبیه سازی و با نتایج تجربی موجود در مراجع مقایسه گردید. نتایج نشان داد که حل مستقیم معادلات انتقال جرم حول حباب با استفاده از روش المان محدود تطابق بهتری با نتایج تجربی داشته است به نحوی که خطای این روش با داده های تجربی در زمان 0.5 ثانیه در حدود 0.93 درصد بوده است. همچنین اثر پارامترهای ترموفیزیکی و رئولوژیکی بر رفتار رشد حباب مورد بررسی قرار گرفت و جهت درک بهتر رفتار رشد حباب، تغییرات پروفیل غلظت گاز در پوسته حول حباب نیز با زمان در شرایط مختلف مورد مطالعه قرار گرفت. با افزایش ضریب نفوذ، حباب با سرعت بیشتری رشد نموده و گرادیان غلظت گاز حول حباب نیز سریع تر از بین رفته است. همچنین از آنجایی که با افزایش ضخامت پوسته حول حباب، میزان گاز در دسترس فوم شدن افزایش می یابد، اندازه نهایی حباب نیز افزایش یافته است. نتایج بررسی تاثیر پارامتر رئولوژیکی بر رفتار رشد حباب نشان می دهد با افزایش ویسکوزیته، نرخ رشد حباب به میزان جزئی کاهش می یابد به نحوی که با 1000 برابر شدن ویسکوزیته اندازه حباب در زمان رشد 1 ثانیه کمتر از 2 درصد تغییر یافته است اما در همین زمان رشد با 10 برابر شدن ضریب نفوذ اندازه حباب در حدود 46 میکرومتر (1.5 برابر) افزایش نشان داده است. بنابراین فرایند رشد حباب بیشتر از پارامترهای ترموفیزیکی تاثیر پذیرفته و انتقال جرم، پدیده کنترل کننده رفتار رشد حباب می باشد.

6- فهرست علائم

C	غلظت گاز
D	ضریب نفوذ
K	ثابت هنری
P	فشار
R	شعاع حباب
\dot{R}	سرعت رشد حباب
t	زمان
T	دما
u	سرعت سیال حول حباب
γ	متغیر لاگرانژین

علائم یونانی

η	ویسکوزیته
ρ	چگالی
τ	تنش
σ	کشش سطحی
δ	ضخامت پوسته حول حباب
η	ویسکوزیته
λ	زمان آسودگی