

# Étude et modélisation de l'orientation de fibres dans des thermoplastiques renforcés

Alexandra Megally

### ► To cite this version:

Alexandra Megally. Étude et modélisation de l'orientation de fibres dans des thermoplastiques renforcés. Sciences de l'ingénieur [physics]. École Nationale Supérieure des Mines de Paris, 2005. Français. NNT: . pastel-00001471

## HAL Id: pastel-00001471 https://pastel.hal.science/pastel-00001471v1

Submitted on 21 Nov 2005

**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.



École Doctorale 364 : Sciences Fondamentales et Appliquées

 $N^{\circ}$  attribué par la bibliothèque



### THÈSE

pour obtenir le grade de

**DOCTEUR** de L'École Nationale Supérieure des Mines de Paris Spécialité : **Sciences et Génie des Matériaux** 

présentée et soutenue publiquement par

### Alexandra MEGALLY

Le 13 Juillet 2005

## Etude et Modélisation de l'orientation de fibres dans des thermoplastiques renforcés

Directeur de Thèse : **Thierry COUPEZ** Directeur de Thèse : **Michel VINCENT** 

	Jury	
Professeur	Francesco CHINESTA	Rapporteur
Professeur	Denis FAVIER	Rapporteur
Professeur	Georges BOSSIS	Examinateur
Docteur	Jocelyn MAUFFREY	Examinateur
Docteur	Patrice LAURE	Examinateur

# Table des matières

N	Nomenclature vii				
In	trod	uction		1	
1	Cara	actérisa	tion de l'orientation et de la structure des fibres dans une pièce	_	
	injeo	ctée		5	
	1.1	Les ma	atériaux et le moule utilisés	7	
		1.1.1		7	
		1.1.2	Moule et conditions d'injection	8	
	1.0	1.1.3	Observations du front de matiere	10	
	1.2	Mesure	e de longueurs de fibre	12	
		1.2.1	Technique de mesure	13	
	1.0	1.2.2	Résultats et analyses	14	
	1.3	Mesure	es expérimentales d'orientation des fibres dans des pièces injectées	16	
		1.3.1	Etat des connaissances sur l'orientation des fibres en injection	16	
		1.3.2	Méthodologies expérimentales	27	
		1.3.3	Les Observations	30	
		1.3.4	Validité des mesures	31	
		1.3.5	Reproductibilité des mesures	34	
		1.3.6	Résultats	36	
		1.3.7	Complément de mesure : la Microtomographie	43	
	1.4	Conclu	isions du chapitre 1	47	
<b>2</b>	Мо	délisati	on de l'orientation des fibres en écoulement	51	
	2.1	Enjeux	x et objectifs de l'étude	54	
		2.1.1	Généralités sur les écoulements diphasiques	54	
		2.1.2	Changement d'échelle : du macroscopique au microscopique	54	
	2.2	Etude	bibliographique : le système fluide-particules	54	
		2.2.1	Bilan des forces agissant sur les particules	54	
		2.2.2	Traitement des écoulements diphasiques	59	
	2.3	Constr	ruction du modèle physique	61	
		2.3.1	Le logiciel $\operatorname{REM3D}^{\textcircled{R}}$	61	
		2.3.2	Les hypothèses du modèle	61	
		2.3.3	Le domaine fluide	61	
		2.3.4	Le domaine fibre	63	
		2.3.5	Discrétisation du système en vitesse-pression	64	

		2.3.6	Suivi de l'évolution des domaines
		2.3.7	Algorithme général
	2.4	Etudes	s et validations du modèle
		2.4.1	Conditions d'expérimentations
		2.4.2	Validations
		2.4.3	Mouvement de corps rigide
		2.4.4	Mise en évidence des interactions hydrodynamiques
		2.4.5	Etude de l'influence des parois sur l'orientation
	2.5	Applic	eations
		2.5.1	Application à une population de fibres
		2.5.2	Calcul de l'orientation dans des zones complexes
	2.6	Limita	tions du modèle $\ldots$ $\ldots$ $\ldots$ $\ldots$ $\ldots$ $\ldots$ $33$
	2.7	Conclu	sions du chapitre 2
-	-		
3	App	Dication	du modèle à l'étude numérique d'une suspension de fibres 97
	3.1	Etude	Bibliographique
		3.1.1 9.1.0	Regimes de concentration
		3.1.2	Mouvement d'une population de fibres en regime dilue 101
		3.1.3 9.1.4	Mouvement d'une population de fibres en regime semi-concentre 102
		3.1.4	Approximations de fermeture
	2.0	3.1.5 E ()	Conclusions de l'étude bibliographique
	3.2	Experi	Chiertife de Véterde
		3.2.1 2.2.2	Upperting de l'étude
		3.2.2 2.2.2	Homogeneisation
	<u></u>	0.2.0 Etudo	de l'interaction entre fibres
	ა.ა		Tetudes des composentes d'arientation a
		ა.ა.⊥ ეეე	Etudes des composantes d'orientation $a_2$
		ა.ა.∠ ეეე	Influence de la concentration en libres sur l'orientation
		ე.ე.ე ეე∡	Influence du rapport de forme des fibres sur l'orientation $\dots \dots \dots$
	24	0.0.4 Etudo	Etude du coefficient d'interaction $C_i \ldots \ldots$
	0.4	2 / 1	Principo 124
		3.4.1	Pácultats of analysis   134
	35	0.4.2 Conclu	$\begin{array}{c} \text{Hestitats et allaryses} \dots \dots$
	5.5	Concie	
4	Etu	de du c	omportement rhéologique 141
	4.1	Etude	bibliographique
		4.1.1	Modèles de comportement
		4.1.2	Mesures expérimentales
		4.1.3	Conclusion sur l'étude bibliographique
	4.2	Etude	rhéométrique des suspensions de fibres longues
		4.2.1	Matériaux utilisés
		4.2.2	Techniques rhéométriques utilisées
		4.2.3	Résultats
		4.2.4	Conclusion sur l'étude rhéologique expérimentale
	4.3	Etude	numérique du comportement rhéologique

	4.3.1	Objectifs de l'étude	168
	4.3.2	Détermination de la viscosité d'un volume représentatif de fibres	168
	4.3.3	Loi de comportement rhéologique	176
	4.3.4	Conclusion de l'étude numérique	181
4.4	Conclu	sions du chapitre 4	181
Conclu	isions &	& Perspectives	183
Annex	e 1		189
Bibliog	raphie		193

# Nomenclature

Les tenseurs sont en caractères gras  $(\sigma)$ , les vecteurs sont surmontés d'une flèche  $(\vec{u})$  et les autres variables sont des scalaires.

## Grandeurs et propriétés physiques

d	:	diamètre d'une fibre
l	:	longueur d'une fibre
L	:	distance du centre de gravité de la particule à la paroi de la cavité
$\theta$	:	angle d'orientation dans le plan $(2,3)$
$\phi$	:	angle d'orientation dans le plan $(1,2)$
$\beta$	:	rapport de forme d'une particule
$\beta_e$	:	rapport de forme équivalent d'une particule
T	:	période de rotation d'une particule
n	:	nombre de particules par unité de volume
$\Phi$	:	fraction volumique de particules
ho	:	masse volumique $(kg.m^{-3})$
$\eta$	:	viscosité (Pa.s)
m	:	indice de pseudoplasticité
$\eta_{cisai}$	:	viscosité en cisaillement $(Pa.s)$
$\eta_1$	:	facteur rhéologique
$N_p$	:	facteur rhéologique
$N_s$	:	facteur rhéologique

## Grandeurs mathématiques

### Scalaires

V	:	Volume élémentaire représentatif
P	:	pression macroscopique
p	:	pression microscopique
$\dot{\bar{\gamma}}$	:	taux de déformation généralisé
t	:	temps absolu
x, y, z	:	coordonnées cartésiennes d'un point de l'espace

macroscopiques

### Vecteurs

- position d'un point matériel de l'espace  $\boldsymbol{x}$ :
- $\overrightarrow{v}$  $\overrightarrow{u}$ champ de déplacements :
- champ de vitesses :
- $\overrightarrow{n}$ : normale sortante à une surface
- $\overrightarrow{p}$ : vecteur unitaire porté par l'axe principal de la particule

### Tenseurs

$\sigma$	:	tenseur des contraintes
$\boldsymbol{s}$	:	partie déviatorique des contraintes
$\boldsymbol{\epsilon}(\overrightarrow{u})$	:	tenseur des vitesses de déformation
Ω	:	tenseur des vitesses de rotation
I	:	tenseur identité
$a_2$	:	tenseur d'orientation d'ordre 2
$a_4$	:	tenseur d'orientation d'ordre 4
T	:	tenseur des contraintes macroscopiques
au	:	tenseur des contraintes microscopiques
$\boldsymbol{\Sigma}$	:	contribution des particules au tenseur des contraintes

### Opérateurs

$\rightarrow$		
$\nabla a$	:	gradient d'un scalaire
$\nabla \cdot \overrightarrow{a}$	:	divergence d'un vecteur
$\nabla \overrightarrow{a}$	:	gradient d'un vecteur
$\overrightarrow{ abla} \cdot oldsymbol{a}$	:	divergence d'un tenseur
$\bigtriangleup$	:	laplacien
$\partial$	:	dérivée partielle
d		dérivée totale ou convectiv

d: dérivée totale ou convective

### Modélisation numérique et éléments finis

### Ensembles et domaines

- Ω espace de résolution (multidomaines) :
- partie de  $\Omega$  occupée par le domaine i $\Omega_i$ :
- $\partial \Omega$ : frontière de l'espace de résolution

### Espaces fonctionnels

$L^{2}()$	:	espace de Lebesgue des fonctions de carré sommable
$H^1()$	:	espace de Sobolev
D()	:	ensemble des fonctions infiniment dérivables à support compact

### Discrétisation

- K : élément du maillage (tétraèdre en 3D)
- $\partial K$  : frontière de l'élément K
- h : taille de maille
- F : face d'un élément

# Introduction

L'utilisation des matériaux thermoplastiques renforcés de fibres, dans les applications industrielles telles que l'automobile et le génie électrique, connaît depuis plusieurs années un essor important. En effet, ces matériaux présentent de nombreux atouts qui permettent aux industriels de répondre à la fois aux attentes des consommateurs, aux nouvelles contraintes réglementaires et à leurs objectifs de rentabilité. Toutefois, la connaissance et le savoir faire sur ces matériaux sont récents par rapport à leur concurrents immédiats que sont les aciers et les aluminiums, et leurs propriétés doivent être encore optimisées. En effet, les propriétés mécaniques d'une structure en composites sont étroitement liées à l'orientation du renfort. Il est donc important d'orienter au mieux les renforts vis à vis de la sollicitation envisagée.

Dans le cas des composites hautes performances, qui sont en général constitués de fibres continues (par exemple, kevlar ou carbone) et d'une matrice thermodurcissable (résine époxyde), il est relativement aisé d'orienter un tissu de fibres dans une direction privilégiée et choisie. En revanche, le comportement des composites de grande diffusion (ou polymères renforcés de fibres), constitués de fibres discontinues et d'une matrice polymère, est très influencé par le procédé de mise en forme. En effet, pour mettre en oeuvre ces composites, la matrice polymère, à l'état fondu, et les renforts sont extrudés ou moulés. L'orientation des renforts change durant le processus de mise en forme et l'orientation finale au sein de la structure est obtenue après solidification. Il apparaît donc indispensable de contrôler, ou pour le moins, de prévoir l'orientation des fibres durant la phase de mise en forme.

Les thermoplastiques renforcés de fibres offrent de nombreux avantages par rapport aux composites hautes performances. Le premier point intéressant est que pour mettre en forme les composites à fibres courtes ou longues, il est possible d'utiliser les mêmes machines que pour les thermoplastiques vierges. Ce qui veut dire aussi qu'il est possible de fabriquer des pièces possédant des géométries complexes. Tous ces procédés de mise en forme sont fortement automatisés, et il en résulte une baisse des coûts de production significative. De ce fait, les prix des produits en composites sont très attractifs. Enfin le dernier point remarquable de ces matériaux concerne le rapport poids / propriétés mécaniques. Certes ce rapport est moins spectaculaire pour les composites fibres courtes et longues que pour les composites hautes performances, mais il permet de rivaliser avec un certain nombre de métaux et d'alliages. D'autre part, l'augmentation de la longueur résiduelle des fibres dans la pièce permet d'augmenter sensiblement les propriétés mécaniques de la pièces finales. La figure 1 compare les propriétés mécaniques d'une structure en polyamide 6,6 renforcé de fibres de verre courtes (longueur initiale des granulés 6 mm) et longues (longueur initiale des granulés 12 mm).



On remarque que l'ajout de fibres longues améliore nettement les propriétés au chocs.

FIG. 1 – Propriétés mécaniques d'une structure en polyamide 6,6 renforcé de fibres courtes (SF en gris clair) et longues (LF en gris foncé) -Données Arkema-

C'est pourquoi, en Europe, 80 % des matériaux chargés de fibres longues sont utilisés dans l'automobile pour des applications structurelles telles que les poutres de parechocs. Dans les sports et les loisirs ils sont destinés à des structures de roller, accessoires pour vélos et bateaux. 90% de la consommation en Europe de polypropylène renforcé de fibres longues sert dans des applications dans le domaine de l'automobile. Ce chiffre devrait augmenter jusqu'en 2015 du fait de la directive Européenne (End of Live Vehicles Directives) qui oblige les constructeurs automobiles à recycler 95% du véhicule.

La détermination de l'orientation des renforts, pour les composites fibres courtes et longues, est plus difficile que dans le cas des composites hautes performances. En effet, comme nous l'avons déjà signalé, l'orientation des particules change durant la phase de mise en oeuvre. Dans le cas du moulage par injection, une pièce est obtenue en injectant sous forte pression le mélange polymère à l'état fondu contenant des fibres dans un moule. Les fibres sont alors transportées dans le moule et l'orientation des renforts varie sous l'influence de plusieurs paramètres, comme :

- les interactions hydrodynamiques,
- les interactions entre une particule et les autres,

– les interactions entre les particules et les parois du moule.

Réciproquement, les propriétés rhéologiques du matériau mis en forme sont très largement influencées par l'état d'orientation des fibres et celui-ci affecte à son tour le profil de l'écoulement. Le problème de l'orientation des fibres est donc complexe.

Or cette étape est déterminante pour la prediction des propriétés mécanique. Pendant la mise en forme par injection, les fibres sont transportées par le fluide, et subissent des contraintes qui les orientent dans certaines directions. Ceci induit le niveau et l'anisotropie de propriétés mécaniques, mais aussi le voilage des pièces et le niveau de contraintes résiduelles. Ainsi pour prédire les propriétés mécaniques d'une pièce, l'orientation des fibres doit être connue. La distribution de la longueur moyenne et les concentrations locales de fibres vont aussi avoir un rôle important.

**Contexte de l'étude** Ce projet s'inscrit dans le cadre de l'étude de matériaux composites renforcés de fibres longues. Afin de répondre aux besoins des industriels, un *Projet Fibre* a vu le jour en 2001. Ce projet a pour thème une meilleure maîtrise de l'orientation de fibres longues au cours de la phase de remplissage d'un moule d'injection. Il s'articule autour de deux thèses complémentaires : amélioration des connaissances dans le domaine des thermoplastiques chargés de fibres longues et élaboration d'un outil numérique de prédiction de l'orientation dans le cas de l'injection.

Le présent ouvrage s'inscrit dans la première thématique du projet. Il implique les partenaires suivants : Arkema, Plastic Omnium, Schneider Electric.

**Présentation du travail** Dans une optique de maîtrise et de compréhension du comportement des composites fibres longues, nous proposons, dans ce travail, d'étudier les phénomènes d'orientation et la rhéologie de ces suspensions. Notre objectif est double :

- Caractériser une suspension de fibres longues en terme de distribution de longueur, d'orientation et de comportement rhéologique (chapitre 1 et chapitre 4). Cette étude met en relief la difficulté de réaliser des mesures expérimentales avec ce type de matériaux,
- Proposer un modèle numérique de simulation directe qui permet d'accéder à la physique intrinsèque de la suspension (chapitre 2). En effet, la connaissance précise de l'écoulement à l'échelle des particules est déterminante dans la compréhension du mouvement global. Ce modèle nous permettra d'étudier la dynamique et les propriétés macroscopiques d'une population de fibres dans une matrice newtonienne (chapitre 3 et chapitre 4).

Cet ouvrage se décompose en 4 chapitres :

Le **chapitre 1** présente des mesures expérimentales visant à caractériser l'orientation et la structure des fibres dans une pièce injectée en polypropylène renforcé de fibres de verres longues.

Le **chapitre 2** décrit le formalisme adopté pour modéliser l'orientation de fibres dans le cadre d'un modèle micromécanique.

Le chapitre 3 porte sur l'analyse du comportement d'une suspension de fibres rigides baignant dans un fluide Newtonien. On s'interesse ici à l'étude du coefficient d'interaction  $C_i$  et au choix d'une approximation de fermeture pour la résolution de l'équation macroscopique de Tucker [1].

Dans le **chapitre 4** sont présentées dans une première partie des mesures rhéologiques expérimentales de nos produits. Cette première partie met en évidence la difficulté d'étudier le comportement rhéologique de ce type de matériaux chargés de fibres. Nous proposons alors une démarche numérique de rhéologie.

## Chapitre 1

# Caractérisation de l'orientation et de la structure des fibres dans une pièce injectée

C<sup>E</sup> premier chapitre est dédié à l'étude de l'orientation de fibres dans une pièce injectée. On s'intéresse ici aux mécanismes d'orientation et à la relation entre l'orientation des fibres et les paramètres du procédé, et non aux propriétés mécaniques de ces composites renforcés de fibres. Les objectifs de cette étude sont multiples :

- Caractériser notre suspension en terme de distribution de longueur, de concentration par des observations et des mesures,
- Étudier la relation entre paramètres de mise en forme et orientation dans le cas de thermoplastiques renforcés de fibres longues,
- Constituer une base de données fiables et précise d'orientation de fibres dans le but de de valider un code numérique de prédiction de l'orientation.

Dans cette optique, ce chapitre est décomposé en 4 sections. La section introductive suivante présente les matériaux et le moule utilisés pour l'étude. La deuxième section présente l'étude d'un incomplet. Le moulage des plaques injectées a montré la formation d'un front de matière en *dentelle*, caractéristique des thermoplastiques renforcés de fibres. La troisième section concerne l'étude de la distribution de longueur des fibres dans la pièce. Ces mesures visent à déterminer où la casse des fibres se produit pendant la phase de mise en oeuvre. Enfin la dernière section présente les mesures d'orientation. Après une description des techniques de mesures de l'orientation, nous présenterons les techniques 2D (analyse d'image sur coupe surfacique) et 3D (microtomographie) adoptées. On s'intéressera, ensuite, à l'influence des différentes conditions d'injection sur les profils d'orientation mesurés. 1 Caractérisation de l'orientation et de la structure des fibres dans une pièce injectée

# Contents

1.1	Les 1	matériau	x et le moule utilisés	7
	1.1.1	Matériau	ıx étudiés	7
	1.1.2	Moule et	conditions d'injection	8
		1.1.2.1	Le moule plaque	8
		1.1.2.2	Condition d'injection	9
	1.1.3	Observat	tions du front de matière	10
1.2	Mes	ure de lo	ongueurs de fibre	12
	1.2.1	Techniqu	e de mesure	13
	1.2.2	Résultat	s et analyses	14
1.3	$\mathbf{Mes}$	ures exp	érimentales d'orientation des fibres dans des pièces	
	injec	tées		16
	1.3.1	État des	connaissances sur l'orientation des fibres en injection	16
		1.3.1.1	Les phénomènes d'orientation	16
		1.3.1.2	Principaux paramètres influençant l'orientation des fibres	19
		1.3.1.3	Description de l'orientation	20
		1.3.1.4	Méthodes de mesures	22
	1.3.2	Méthodo	ologies expérimentales	27
		1.3.2.1	Zones d'analyse	27
		1.3.2.2	Approche surfacique	27
		1.3.2.3	Approche 3D : La microtomographie	30
	1.3.3	Les Obse	ervations	30
		1.3.3.1	Vue de dessus des échantillons	30
		1.3.3.2	Les observations en coupe	30
	1.3.4	Validité	des mesures	31
	1.3.5	Reprodu	ctibilité des mesures	34
		1.3.5.1	Reproductibilité liée au système de mesure	34
		1.3.5.2	Mesure de reproductibilité liée à l'échantillonnage	34
		1.3.5.3	Comparaison des deux méthodes	34
	1.3.6	Résultat	s	36
		1.3.6.1	Etude du cas standard	36
		1.3.6.2	Influence des paramètres d'injection	36
		1.3.6.3	Influence de l'épaisseur de la plaque	39
		1.3.6.4	Influence de longueur des granulés	39
		1.3.6.5	Influence du taux de fibres	40
		1.3.6.6	Influence de l'ajout de $TiO_2$	42
	1.3.7	Complér	nent de mesure : la Microtomographie	43
		1.3.7.1	Reproductibilité des mesures liée au système de mesure	43
		1.3.7.2	Confrontation des mesures 2D et des mesures 3D	43
		1.3.7.3	Etude d'un échantillon de pp30%fv12	44
1.4	Cone	clusions	du chapitre 1	<b>47</b>

### 1.1 Les matériaux et le moule utilisés

### 1.1.1 Matériaux étudiés

L'ensemble des matériaux a été fourni par la société Arkema. La plupart des références étudiées sont des produits commerciaux mais certaines sont uniquement fabriquées pour la Recherche & Développement. Ces matériaux se présentent sous la forme de granulés, de dénomination commerciale Pryltex. Le Pryltex est un matériau composite à matrice polypropylène renforcé par des fibres de verres longues. Il est destiné à des applications dans les secteurs de l'automobile, de l'industrie et des sports et loisirs.

On distingue ces composites par :

- leur taux de renfort en masse. On s'intéresse ici à des composites chargés à 10% et 30% de fibres,
- la longueur des granulés qui correspond à la longueur initiale des fibres, à savoir 4 mm ou 12 mm.

Le polypropylène vierge, de dénomination commerciale *Finapro*, se présente sous la forme de granulés grossièrement sphériques. Les granulés chargés en fibres de verre sont des cylindres à l'intérieur desquels se trouve une mèche de fibres. La fabrication se fait par production d'un jonc continu, débité à la longueur désirée à la sortie d'une ligne d'enrobage. Les mèches de fibres ayant un nombre de fibres constant (chaque fibre fait  $17\mu$ m de diamètre), les différentes concentrations sont obtenues par enrobage d'une plus ou moins grande quantité de polypropylène autour de la mèche. La matrice de polypropylène utilisée est la référence vierge citée plus haut.

Les principales propriétés physiques, mécaniques et thermiques du polypropylène renforcé à 30% de fibres longues sont réunies dans le tableau 1.1.

Matériaux		Polypropylène
Notation		PP30%FV12
Propriétés mécaniques		
Module d'Young (E)		
Direction Écoulement	MPa	5000
Direction Transverse	MPa	2696
Contrainte à la rupture	MPa	100
Coefficient de Poisson $(\nu)$		$0,\!43$
Propriétés thermiques	à $30^{\circ}C$	
Densité	$g/cm^3$	1,10
Chaleur spécifique $(C_p)$	J/K	$1,\!49.10^3$
Conductivité thermique $(\lambda)$	W/mK	$0,\!277$



FIG. 1.1 – Granulé fibres longues de 12 mm, chargé à 30%

TAB. 1.1 – Propriétés mécaniques et thermiques

La photographie 1.1 présente des granulés de 12 mm, chargé à 30% de fibres.

La liste des granulés utilisés pour l'étude figure dans le tableau 1.2. On s'intéresse aussi à l'effet de l'ajout de colorant, un oxyde de titane, sur l'orientation et la distribution de longueur des fibres. En effet, des mesures des propriétés mécaniques ont montré que l'ajout de 30% d'oxyde de titane,  $TiO_2$ , dans un polypropylène renforcé de 30% de fibres longues, diminuait de 45 % l'énergie à la rupture d'un essai de choc réalisé à grande vitesse (norme 6603 - 2).

Désignation	Taux	Taux	Longueur	Références
	de verre $(\%)$	$r\acute{e}el^0(\%)$	des fibres (mm)	
pp vierge	0	0	0	Finapro PPH100H60
pp10%FV3	10	9.3	3	Pryltex PPV4010HL3
pp30%FV4	30	30.2	4	Pryltex PPV4030HL4
pp10%FV12	10	10.8	12	Pryltex PPV4010HL12
pp30%FV12	30	30.7	12	Pryltex PPV4030HL12
$pp30\%FV12 + TiO_2$	30	30.7	12	Pryltex PPV4030HL12

TAB. 1.2 – Matériaux utilisés

### 1.1.2 Moule et conditions d'injection

Les essais d'injection ont été réalisés au centre de recherche de *Plastic Omnium* sur une presse à injecter de marque DK Codim 750T, équipée d'une vis "standard" de diamètre 90 mm.

#### 1.1.2.1 Le moule plaque

Les critères de choix de la géométrie de l'empreinte ont été les suivants : une géométrie simple et facilement injectable, un mode d'orientation de la pièce facilement quantifiable (des essais préliminaires sur une pièce présentant des arrondis et des nervures avaient montré la difficulté d'effectuer des mesures d'orientation), la possibilité de découper des échantillons plans pour l'analyse de l'orientation et, enfin un moule d'empreinte facilement modifiable. Le moule disponible répondant au mieu à ces critères est le moule plaque qui est utilisé par *Plastic Omnium* pour différentes études de caractérisation de matières. La cavité est une plaque de dimension  $600 \times 200$  mm, d'épaisseur modifiable. On s'interesse ici à deux épaisseurs de plaque de 1, 8 et 3, 6 mm. Les plaques sont injectées en pleine peau au centre de la pièce par une carrote directe (Figure : 1.2).



FIG. 1.2 – Schéma du seuil d'injection

<sup>&</sup>lt;sup>0</sup>Mesures réalisées par Arkema

Matériaux	GFL $10\%$		GFL $30\%$					
Longueur des fibres (mm)	4	1	1	2	4	1	1	2
Épaisseur plaque (mm)	1.8	3.6	1.8	3.6	1.8	3.6	1.8	3.6
Conditions Standards	×	×	×	×	×	×	×	×
Vitesse lente						×		
Vitesse rapide						×		
Déséquilibre T° du moule						×		
Apport $TiO_2$ dans la matrice								×
Vis GFL							×	×

TAB. 1.3 – Conditions de moulage

#### 1.1.2.2 Condition d'injection

Le tableau 1.3 résume les conditions de moulage et les matériaux injectés. Les conditions standards correspondent aux conditions préconisées par le fabricant pour obtenir des pièces satisfaisantes. Ensuite, ces paramètres sont modifiés de manière à étudier l'influence des paramètres d'injection sur l'orientation. Nous avons testé l'influence de la vis de plastification sur la casse et l'orientation des fibres. Pour cela, nous avons équipé le moule d'une vis spécifique aux fibres longues qui permet de préserver la longueur des fibres au cours de la phase de plastification. La différence par rapport à une vis classique se situe au niveau de la zone d'alimentation qui possède un pas variable et au niveau de la zone de compression qui dispose d'un taux de compression inférieur à celui d'une vis standard.

Matière	Conditions	Plaque (mm)	Tps d'injection
pp10%fv12	Standards	1.8	4.18
pp10% fv4		3.6	
	Standards	1.8	3.95
		3.6	3.99
pp30% fv4	Vitesse lente	3.6	7.29
	Vitesse rapide	3.6	2.56
	Standards	1.8	3.99
		3.6	3.98
pp30% fv12	ajout Ti0 <sub>2</sub>	3.6	3.98
	vis GFL	1.8	4.29
		3.6	3.99

TAB. 1.4 – Paramètres d'injection

Le tableau 1.4 présente les temps de remplissage étudiés.

L'étude de l'influence de la vitesse d'injection sur l'orientation a été réalisée uniquement sur les plaques d'épaisseur 3,6 mm injectées en polypropylène renforcées à 30% de fibres

initialement de longueur 4 mm. L'étude de l'influence de la vis a été réalisée sur les plaques d'épaisseur 1,8 et 3,6 mm injectées en polypropylène renforcé à 30% de fibres de 12 mm. Pour toutes les conditions, la température de la matière est de 270°C, la température du moule est de 30°C, le temps de maintien est de 12 s et la pression de maintien est de 15 MPa pour les plaques de 1.8 mm et de 10 MPa pour les plaques de 3.6 mm.

Les températures dissymétriques des parties du moule appliquées aux matériaux chargés à 30% de fibres courtes (4 mm) pour les plaques de 3.6 mm sont présentées dans le tableau 1.5.

Matière	T°C Partie	T°C Partie	Tps
	mobile	fixe	injection (s)
pp30%fv4	50	30	3.98

TAB. 1.5 – Conditions pour températures dissymétriques

### 1.1.3 Observations du front de matière

Des observations d'un incomplet d'une plaque moulée en polypropylène renforcé à 30% de fibres longues ont mis en évidence la présence d'un front de matière irrégulier et fragmenté et la présence de fibres expulsées du front.(Figure : 1.3)



FIG. 1.3 – Observation du front de matière d'un incomplet

Ce front particulier est caractéristique des moulages renforcés de fibres longues à fortes concentrations et a déjà été observé par Truckenmuller et Fritz [2] et Akay et Barkley [3] sur des pièces en polyamide renforcés à 30% de fibres de verres longues. Dans le cas d'un moulage plaque en polyamide 6/6 renforcés de 50% en poids de fibres longues, Akay et Barkley [3] observent sur un incomplet, une avancée du front plus rapide près des parois de la cavité. Les auteurs attribuent ces effets à une réduction de la resistance de l'écoulement dans des zones proches des parois. En effet, à proximité des parois, les fibres vont s'orienter préférentiellement dans la direction d'écoulement et vont offrir moins de résistance à l'écoulement que les fibres situées au centre de la cavité. D'autre part, la possibilité que

certaines fibres soient cassées à proximité des parois du moule peut aussi engendrer une réduction locale de la viscosité.

Afin de comprendre l'origine de ce phénomène, nous avons observé l'avancée du front de matière au cours de la phase de remplissage d'une cavité rectangulaire. Les moulages ont été réalisés sur une presse à injecter de marque DK Codim 110T, équipée d'un moule transparent. Ce moule dispose de deux fenêtres permettant de visualiser l'écoulement en vue de dessus et dans l'épaisseur de la plaque (Figure 1.4).



FIG. 1.4 – Empreinte

La configuration d'empreinte choisie est un divergent qui donne lieu à un gradient de vitesse important.

La photographie 1.5 a) montre le front de matière à un instant t durant le remplissage de la cavité transparente. Le matériau d'étude est un polypropylène renforcé de 30% de fibres longues (pp30%fv12) qui s'écoule de droite à gauche. L'observation se fait en vue de dessus à la sortie d'une contraction. Compte tenu de la concentration importante en fibres, il est impossible de distinguer le mouvement des particules. L'observation du front de matière montre la présence d'un excès de fibres en avant du front. Si on effectue un zoom sur cette zone (Figure : 1.5 b)), on observe avec précision un foisonnement important de fibres. Ce phénomène est amplifié à la fin du remplissage et du refroidissement. Il peut être attribué à la relaxation des contraintes dues au caractère viscoelastique de la matière et à la présence des fibres.

L'observation des incomplets montre la présence de fibres longues, en apparence, au niveau front. Mais quelle est la distribution de la longueur moyenne des fibres dans la pièce ? Où les fibres se cassent-elles ? Pour répondre à ces questions, des mesures de longueurs dans la pièce sont nécessaires.



a) Front de matière durant le remplissage de la cavité



b) zoom sur le front de matière

FIG. 1.5 – Visualisation du remplissage d'une cavité d'un polypropylène renforcée à 30% de fibres longues

### 1.2 Mesure de longueurs de fibre

Les objectifs de cette étude sont de :

- Quantifier la distribution de longueur des fibres dans les plaques moulées en pp30%fv12 et pp30%fv4,
- Étudier l'influence de la vis d'injection sur les longueurs moyennes (il ne s'agit pas d'une étude de l'influence de conditions de plastification).
- Quantifier les effets de l'ajout d'oxyde de titane, utilisé pour colorer les pièces, sur la distribution de longueur.

La technique la plus usuelle est la mesure de la distribution de longueur après pyrolyse de l'échantillon. Cette technique, couplée à un système d'analyse d'images, permet de minimiser l'intervention humaine et de travailler plus rapidement [4]. On peut ainsi avoir accès à la longueur moyenne en nombre  $L_n$  qui donne la longueur moyenne des fibres et à la longueur moyenne en poids  $L_w$  qui donne une information sur le volume moyen occupé par une fibre. Les expressions  $L_n$  et de  $L_w$  sont données par l'équation :

$$\begin{cases}
L_n = \frac{\sum_i n_i li}{\sum_i ni} \\
L_w = \frac{\sum_i ni l_i^2}{\sum_i ni l_i}
\end{cases}$$
(1.1)

avec n le nombre de fibre par unité de volume et l la longueur des fibres.

Le volume occupé par la particule joue un rôle important en rhéologie, et dans ce cas la moyenne en masse  $L_w$  semble mieux adaptée pour caractériser le renfort.

Cette méthode est assez précise mais présente un certain nombre de difficultés :

- La mesure doit prendre en compte un grand nombre de fibres pour être représentative de la distribution réelle de longueur dans la zone d'étude. D'autre part, la taille de l'échantillon doit être supérieure à la longueur initiale du granulé, afin de ne pas privilégier une population de fibres. Enfin, lors de la découpe de l'échantillon certaines fibres sont coupées, faussant la mesure.
- Les polymères renforcés de fibres longues présentent une distribution de longueurs très dispersée (de quelques  $\mu m$  à quelques mm), on rencontre donc des problèmes d'échelle. De plus, certaines fibres sont courbées rendant la mesure difficile.
- Les enchevêtrements de fibres sont également gênants pour les mesures.

La séparation des fibres en différentes classes de longueur après pyrolyse est possible par tamisage ou dilution. La mesure individuelle de chaque classe permet alors de résoudre le problème d'échelle rencontré pour les polymères chargés de fibres longues [5], [6].

Une autre technique, non destructive, permet d'obtenir la distribution de longueur moyenne dans un volume donné. Il s'agit de la microtomographie 3D par rayon X. Cette technique présente l'avantage de fournir des informations sur le pourcentage de fibres courbées incluses dans le volume. Cependant, cette technique est limitée par la taille de l'échantillon (2 mm  $\times$  2 mm  $\times$  3mm) qui est inférieure à la longueur initiale des fibres longues avant injection.

### 1.2.1 Technique de mesure

Les mesures de longueur de fibres ont été réalisées par la société  $Compositec^1$ . Elles se divisent en trois phases :

- Étape 1 Calcination des échantillons en deux temps, 1h30 à la température de 450°C suivie d'une calcination d'une heure à 650°C,
- Étape 2 Détermination du taux massique de fibres inférieures à 1 mm par une technique de filtration. On les nommera par la suite taux de fines. Cette population de fibres est ensuite éliminée de la mesure.
- Étape 3 Cette dernière étape est la mesure de la répartition en longueur de fibres avec un logiciel d'analyse d'images *Fibastat*. Les fibres sont déposées manuellement sur des supports de dimensions  $10 \times 10$  cm. La mesure est reproduite trois fois de suite. La gamme de mesure est comprise entre 1 et 12 mm.

Les échantillons sont prélevés sur la plaque au niveau du seuil d'injection, en position P1 et en position P3, en bout de plaque, comme illustré sur la Figure 1.6.

 $<sup>^1\</sup>mathrm{Compositec}$ BP 252 73374 Le Bourget du Lac Cedex, Email : infos@compositec.com

1 Caractérisation de l'orientation et de la structure des fibres dans une pièce injectée



FIG. 1.6 – Prélèvement des échantillons sur la plaque

#### 1.2.2 Résultats et analyses

Les résultats de mesures de longueur, effectuées sur des plaques d'épaisseur de 3.6 mm, sont présentés dans le tableau 1.6 et sur la figure 1.7.

L'analyse des mesures de longueurs montre que :

- 1) Le nombre de fibres de longueur inférieure à 1 mm est important. Ce pour centage de fibres varie entre 30 et 60 % suivant les références,
- 2) La casse des fibres se fait préférentiellement durant la phase de plastification (Figure 1.7 a). Pour quantifier l'état de dégradation des fibres, on calcule le rapport de la longueur moyenne sur la longueur initiale, le complètement de cette valeur donne le taux de détérioration moyen de la longueur de fibre. L'analyse des résultats montre que le taux de détérioration est de 78,50 % pour des granulés de fibres longues (initialement de 12 mm) et 50 % pour les granulés de 4 mm.
- 3) La vis spécifique aux fibres longues ne préserve pas la longueur des fibres. En effet, les mesures effectuées en purge montrent que la longueur moyenne en nombre et en poids est sensiblement identique à celle obtenue avec une vis standard.

Matière	Zones	Taux de fines $(\%)$	$L_n(mm)$	$L_w(mm)$ )
	Purge	28.37	2.58	3.92
pp30% fv12	P1	35.03	2.24	3.6
	P3	29.03	2.14	2.84
	Purge	41.44	2	2.46
pp30% fv4	P1	51.54	1.88	2.28
	P3	45.36	1.92	2.34
pp30%fv12	Purge	58.91	1.83	2.32
$Ti0_2$	P1	64.62	1.83	2.33
	P3	61.24	1.87	2.33
pp30%fv12	Purge	31.23	2.49	3.76
vis GFL	P1	36.27	2.2	3.05
	P3	30.8	2.12	2.81

TAB. 1.6 – Longueurs de fibres



FIG. 1.7 – Mesures de longueur

- 4) L'ajout d'oxyde de titane engendre une casse de fibres plus importante. Les mesures effectuées en purge montrent que l'on passe d'une longueur moyenne en nombre de 2,58 mm pour un pp30%fv12 à 1,83 mm pour le même matériau coloré par du  $TiO_2$  (taux de dégradation de 84,75 %). D'autre part, on observe la présence de 58,91 % en purge de fibres inférieures à 1 mm pour un pourcentage de 28,37 % dans le cas standard.
- 5) Il y a peu de casse le long du chemin d'écoulement (Figure 1.7 d).

La distribution de longueur dans la pièce étant connue, on s'intéresse maintenant à l'étude de la distribution d'orientation.

### 1.3 Mesures expérimentales d'orientation des fibres dans des pièces injectées

Les mesures expérimentales d'orientation des fibres ont été réalisées au Centre de Mise en Forme de l'École des Mines et au sein du Molecular Physics and Instrumentation Group  $(MPI)^2$  de l'Université de Leeds, en Angleterre, dans l'équipe du Professeur A. Clarke. Les résultats présentés dans ce paragraphe sont le fruit d'une collaboration entre ces deux laboratoires et d'un stage effectués en 2003 par A. Quibat [7].

### 1.3.1 État des connaissances sur l'orientation des fibres en injection

Au cours de la phase de remplissage, les fibres vont s'orienter dans des directions privilégiées, créant une structure que l'on appelle communément *coeur-peau*. On se propose dans cette section de faire un bref état de l'art des connaissances dans ce domaine. Nous présenterons ensuite les outils nécessaires à la description de l'orientation d'une population de fibres ainsi qu'une description des techniques de mesures disponibles pour quantifier l'orientation des fibres dans une pièce.

### 1.3.1.1 Les phénomènes d'orientation

Deux types d'écoulement vont orienter préférentiellement les fibres.

Le Cisaillement simple Un tel écoulement se rencontre par exemple dans les canaux d'alimentation des moules et/ou entre plaques parallèles. Une fibre isolée dans un fluide newtonien est animée d'un mouvement de rotation périodique, avec un temps de séjour privilégié dans la direction de l'écoulement : la fibre ne tend jamais vers une position d'équilibre (Figure : 1.8).

**Écoulement élongationnel** On le rencontre par exemple sur l'axe d'une géométrie convergente ou divergente. L'observation d'une fibre dans ce type de géométrie montre que la fibre s'oriente dans le divergent perpendiculairement à la direction d'écoulement et dans le convergent parallèlement à cette direction. La fibre tend vers une position d'équilibre stable perpendiculairement ou parallèlement à l'écoulement (Figure : 1.9).

 $<sup>^{2}</sup> http://www.mnp.leeds.ac.uk/Instrumentation/index.php$ 



FIG. 1.8 – Orientation d'une fibre dans un écoulement de cisaillement simple : la fibre a un temps de séjour privilégié dans le sens de l'écoulement



FIG. 1.9 – Orientation d'une fibre dans un écoulement élongationnel convergent : la fibre tends vers une position stable

**Structure coeur-peau** Typiquement les polymères thermoplastiques renforcés de fibres présentent une structure bien particulière dans l'épaisseur que l'on dénomme communément par le terme de structure "coeur-peau".

Les différences entre les auteurs viennent du décompte du nombre de couches dans l'épaisseur. Kenig [8] parle de structure à neuf couches, avec une couche très fine en peau pauvre en fibres, une séquence de trois couches avec alternance de fibres orientées parallèlement / transversalement / parallèlement à la direction principale d'écoulement et un coeur où les fibres sont orientées transversalement. Bay et Tucker observent un disque injecté par le centre (Figure : 1.10). Ils mettent en évidence la présence de 7 couches distinctes avec une symétrie par rapport au plan médian du disque. Les deux couches extrêmes (A), dites couches de peau, présentent une orientation isotrope des particules. Ensuite, apparaissent deux couches (B) où les fibres sont orientées selon la direction de l'écoulement. Dans cette zone du disque, les contraintes de cisaillement sont importantes lors de l'écoulement. Les particules sont disposées selon des cercles concentriques dans la couche centrale (D) (couche de coeur). Ici ce sont les contraintes d'élongation qui sont prépondérantes lors de l'écoulement. Enfin, les deux dernières couches (C), dans lesquelles l'orientation des fibres est aléatoire, sont des couches de transition entre les états d'orientation (B) et (D).

Ensuite les deux auteurs ne parlent plus de couches de transition mais d'une large zone



FIG. 1.10 – Orientation des particules dans un disque injecté par le centre, d'après des observations expérimentales de Woebcken en 1971 et de Bay [9]

où les fibres s'orientent graduellement perpendiculairement à la direction d'écoulement.

Dans la plus grande majorité des cas, dans des conditions d'injection classiques, on parle, plus simplement, d'une structure "coeur-peau" à cinq couches avec une couche centrale orientée transversalement à la direction d'écoulement, de deux couches intermédiaires orientées principalement dans la direction d'écoulement et enfin de deux couches de peau légèrement moins orientées que les couches intermédiaires.

La formation d'une **couche de peau** dans laquelle les fibres ne sont pas orientées de façon préférentielle est le résultat de l'effet fontaine. Ce dernier ramène la matière (fibres incluses) du centre vers les parois froides du moule où les fibres vont être figées avec une orientation désordonnée avant que le cisaillement n'ait eu le temps de les orienter dans le sens de l'écoulement [10], [11],[12]. Souvent, à cause des temps d'injection très courts et de la faible conductivité des polymères, cette couche est très mince et difficilement identifiable par observation par rapport aux autres zones. L'épaisseur de cette couche dépend de la vitesse de refroidissement (température du moule) [13].

La formation de la **zone intermédiaire**, dans laquelle les fibres sont fortement orientées dans la direction principale d'écoulement, est la conséquence du cisaillement important qui s'y développe [10].

La formation de la **couche de coeur**, dans laquelle les fibres sont orientées transversalement à la direction d'écoulement vient de la combinaison de deux facteurs :

- la présence d'un écoulement élongationnel autour du seuil d'injection qui va aligner les fibres perpendiculairement à la direction d'écoulement (cette orientation est, par ailleurs, complètement indépendante de l'orientation initiale des fibres dans les canaux d'alimentation)
- la conservation, au centre, de cette orientation transverse tout le long de la cavité du

fait du cisaillement pratiquement nul [11], [14], [12]. L'existence d'un profil de vitesse plat dans la cavité, par exemple, va aider à la conservation de l'orientation transverse des fibres dans le reste de la cavité sans créer de réorientation. Si l'une ou l'autre de ces conditions n'est pas respectée, les fibres du coeur vont être plus ou moins alignées dans la direction d'écoulement.

Dans les paragraphes suivants, nous allons passer en revue les différents facteurs qui sont susceptibles d'affecter cette structure " coeur-peau".

### 1.3.1.2 Principaux paramètres influençant l'orientation des fibres

Influence du seuil Le présence des seuils, entraîne lorsqu'ils sont le siège d'élongation, la formation d'un coeur avec une orientation transverse à la direction d'écoulement. Les géométries de seuil qui ne créent pas un tel flux (cas de seuil en film ou les carottes d'injections) facilitent, pour leur part, la formation d'un coeur dans lequel les fibres sont orientées dans la direction d'écoulement [11], [15].

Influence de la vitesse d'injection Gupta [12] montre que plus la vitesse d'injection est élevée, plus la taille du coeur (où les fibres sont orientées transversalement à la direction d'écoulement) grandit. Inversement, réduire la vitesse d'injection a pour conséquence de diminuer la taille du coeur où d'en changer l'orientation (les fibres du coeur sont mieux alignées avec la direction d'écoulement). Ils expliquent qu'à faible vitesse, la zone de peau affectée par l'effet fontaine est plus large. La région où le cisaillement est fort est donc décalée vers le centre.

Influence de l'épaisseur de la pièce Pour des débits d'injection comparables, une cavité fine est associée à une zone de coeur plus petite. En effet, une épaisseur plus fine crée des taux de cisaillement plus importants et donc (pour une vitesse de refroidissement égale) un profil de vitesse plus plat. Cela aide le transport de l'orientation transverse dans le coeur à rester inchangé tout au long de l'écoulement dans la cavité [16]. Certains auteurs montrent, pour leur part, que l'orientation des fibres dans le coeur peut, aussi, être affectée par la réduction d'épaisseur de la cavité [17]. Leurs observations microscopiques (pas de quantification) montrent qu'en divisant l'épaisseur de la cavité par deux (pour une résine thermodurcissable chargée à 33% en poids en fibres courtes), les fibres du coeur s'orientent légèrement dans le sens de l'écoulement.

Influence de la température du moule Son effet peut être comparable à celui de la vitesse d'injection : pour une température de moule basse, la zone solidifiée est plus importante, décalant les maxima de cisaillement vers le centre la pièce. De plus, en entrée de cavité, le taux d'élongation est réduit ce qui entraîne une orientation transverse des fibres moins importante [18].

**Influence de la rhéologie** L'existence d'un profil de vitesse plat dans la cavité est le résultat du caractère pseudoplastique des polymères. La rhéologie du matériau, à des taux de cisaillement élevés, influence la forme du profil de vitesse et donc sa capacité à convoyer dans le reste de la cavité l'orientation acquise dans le seuil. D'un autre côté, on montre aussi

que la convection d'un coeur orienté transversalement dans la cavité sans réorientation est facilitée par la présence des fibres elles-mêmes qui peuvent aplatir le profil de vitesse, même en conditions isothermes [19], [20]. Il faut toutefois garder à l'esprit que plusieurs de ces effets agissent de façon identiques. Notons aussi que, dans la grande majorité des cas, ces études restent qualitatives.

Influence de la concentration de fibres Une étude extensive réalisée sur un polypropylène renforcé fibre de verre (courtes et longues) avec plusieurs taux de renfort (en poids) de 10, 20, 30 et 40% montre que la largeur du coeur augmente avec la concentration en fibres [21]. Il ressort aussi que le phénomène est plus important dans le cas des fibres longues.

Phénomènes de ségrégation et déplétion des fibres La formation de couches moins concentrées à la surface de pièces injectées a été observée pour des polypropylènes et des polyamides chargés en billes de verre [15] et pour un polypropylène renforcé de fibres de verre [18]. Pour des polyamides renforcés de fibres de verre, plusieurs auteurs observent que du coeur vers la peau, la densité de fibres va en diminuant [3], [21]. Le phénomène semble plus accentué dans le cas de fibres longues (58% en coeur contre 40% en peau, en poids) que dans le cas de fibres courtes (53% en coeur contre 47% en peau, en poids). En plus de ce phénomène de déplétion du coeur vers la peau, certains auteurs ont observé un changement de concentration en fibres avec la distance par rapport au seuil. Ce phénomène est attribué à la migration dans l'épaisseur de la cavité des fibres en relation avec l'effet fontaine qui se produit au front de matière [22], [23]. II semble que ce phénomène soit plus important avec des fibres ou des particules de grande taille. Aucune étude complète n'a été réalisée sur le sujet. En particulier, l'influence des paramètres d'injection n'a pas encore été testée.

#### 1.3.1.3 Description de l'orientation

Chaque fibre peut être représentée par un vecteur unitaire  $\overrightarrow{p}$  porté par son axe principal. On peut ainsi définir l'orientation d'une fibre par la projection du vecteur  $\overrightarrow{p}$  dans un repère fixe. Les composantes de ce vecteur sont reliées aux angles  $\theta$  et  $\phi$  par :

$$\begin{cases} p_1 = \sin \theta \cos \phi \\ p_2 = \sin \theta \sin \phi \\ p_3 = \cos \theta \end{cases}$$

Le mouvement de la particule est ainsi décrit par l'évolution des angles  $\theta$  et  $\phi$ .

Dans le cas des composites à fibres courtes ou longues, le renfort fibreux est généralement constitué d'un très grand nombre de fibres. Il est donc pratique de décrire l'orientation globale d'une suspension au moyen d'une fonction de densité de probabilité d'orientation  $\Psi(\vec{p}) = \Psi(\theta, \phi)$ , [1]. Cette fonction est telle que la probabilité de trouver une fibre dont l'orientation est contenue dans la zone définie par  $\theta_1 + d\theta$  et  $\phi_1 + d\phi$  soit :

$$P(\theta_1 \le \theta \le \theta_1 + d\theta; \phi_1 \le \phi \le \phi_1 + d\phi) = \int_{\theta}^{\theta + d\theta} \int_{\phi}^{\phi + d\phi} \Psi(\theta, \phi) sin(\theta) d\theta d\phi \qquad (1.2)$$



FIG. 1.11 – Définition des angles et du vecteur caractérisant l'orientation d'une fibre

La fonction de distribution  $\Psi$  fournit une description générale et précise de l'état d'orientation d'une suspension en un point matériel donné. Cependant, la résolution de cette équation nécessite des ressources informatiques importantes. Pour calculer l'orientation du milieu et son évolution pour des applications industrielles, on a besoin d'une description plus compacte. Ceci peut être obtenu en utilisant des tenseurs d'orientation.

La figure 1.12 illustre les valeurs prises par les composantes de  $a_2$  pour quelques situations particulières d'orientation.



FIG. 1.12 – Exemples de tenseurs  $a_2$  pour différentes orientations en 2D

Les composantes du tenseur  $a_2$  sont définies par le système d'équation 1.3 (<> correspond

à la moyenne des orientations) :

$$a_{11} = \langle \sin^2\theta . \cos^2\phi \rangle$$

$$a_{22} = \langle \sin^2\theta . \sin^2\phi \rangle$$

$$a_{33} = \langle \cos^2\theta \rangle$$

$$a_{12} = a_{21} = \langle \sin^2\theta . \cos\phi . \sin\phi \rangle$$

$$a_{13} = a_{31} = \langle \sin\theta . \cos\theta . \cos\phi \rangle$$

$$a_{23} = a_{32} = \langle \sin\theta . \cos\theta . \sin\phi \rangle$$

$$(1.3)$$

### 1.3.1.4 Méthodes de mesures

On se propose dans cette section de décrire les différentes techniques de mesures de l'orientation. Dans une première partie, on s'intéressera aux méthodes de mesures 2D. Une dernière partie décrit les techniques et limitations des mesures 3D.

D'un point de vue expérimental, la principale difficulté de la mesure de l'orientation des fibres consiste à obtenir des clichés de bonne qualité permettant de distinguer les fibres dans la matrice. Les images obtenues peuvent être alors analysées par diverses procédures numériques d'analyse d'images. Parmi les différentes techniques existantes, celle de l'analyse d'image sur des coupes surfaciques est la plus employée.

**Méthodes de mesures 2D** La méthode consiste à observer la surface d'un échantillon, qui est au préalable polie et traitée de façon à améliorer le contraste. La méthode de préparation dépend alors de la technique utilisée pour analyser la surface, suivant qu'on utilise un microscope électronique à balayage (MEB) ou la microscopie optique. Cette dernière technique nécessite des temps de préparation et d'analyse moins importants, mais requiert une préparation des échantillons très minutieuse (amélioration de la qualité du contraste entre les fibres et la matrice par une attaque d'ions oxygène).

L'orientation d'une fibre est décrite à partir de l'analyse d'image de l'ellipse formée par l'intersection du plan de coupe et de la fibre. Les fibres apparaissent sous la forme de bâtonnets lorsqu'elles appartiennent au plan de coupe, ou sous forme d'ellipse lorsqu'elles forment un angle par rapport à ce plan. Il existe différentes techniques d'analyse d'image pour mesurer les paramètres de l'ellipse. On peut citer la transformée de Hought, très lourde en calcul et les techniques des moindres carrés et des seconds moments beaucoup plus simples.

On s'intéresse à la technique des seconds moments. Le principe consiste à convertir une image en niveau de gris en une image binaire en effectuant un seuillage. Les sections de fibres sont alors associées à un groupe de pixels connectés. Les moments des pixels connectés permettent d'obtenir les dimensions de l'ellipse : le grand et le petit axe a et b. On peut ensuite déterminer les angles  $\theta$  et  $\phi$  et le tenseur d'orientation  $a_2$ . Les moments du premier ordre  $M_1, M_2$  correspondent aux coordonnées du centre d'inertie (dans le repère défini par la Figure 1.13) et les moments du second ordre  $M_{11}, M_{22}, M_{33}$  aux moments d'inertie. A partir de ces données, il est alors possible de remonter aux grandeurs a et b de l'ellipse comme suit, pour un plan de coupe dans le plan (1,2) :

$$\begin{cases} a = \sqrt{2(M_{11} + M_{22}) + 2((M_{11} + M_{22})^2 + 4M_{12}^2)^{0.5}} \\ b = \sqrt{2(M_{11} + M_{22}) - 2((M_{11} + M_{22})^2 + 4M_{12}^2)^{0.5}} \end{cases}$$
(1.4)

Les angles décrivant l'orientation d'une fibre sont déterminés ainsi :

$$\begin{cases} \theta = \cos^{-1}(\frac{b}{a}) \\ \phi = \frac{1}{2}\tan^{-1}(\frac{2M_{11}}{M_{11}-M_{22}}) \end{cases}$$
(1.5)

Limitation et erreurs de mesures Cette approche 2D pose toutefois une ambiguïté sur l'angle :  $\phi$  ou  $\phi$  + 180° (Figure : 1.13) ce qui se traduit par l'impossibilité d'avoir les valeurs des composantes du tenseur d'orientation  $a_{13}$  et  $a_{23}$ . En effet, ce sont des termes en  $cos(\phi)$  ou  $sin(\phi)$  seulement, alors que la composante  $a_{12}$  est un terme en  $cos(\phi).sin(\phi)$ , donc sans ambiguïté, et les composantes  $a_{11}$ ,  $a_{22}$  et  $a_{33}$  sont des termes en  $cos^2(\phi)$  ou  $sin^2(\phi)$ . La solution consiste à utiliser leurs valeurs absolues.



FIG. 1.13 – Représentation de l'orientation d'une fibre, ambiguïté sur l'angle  $\phi$  en 2D

Les erreurs associées à la mesure de l'orientation des fibres sont les suivantes :

- $\star$  Erreurs d'échantillonnage : Les résultats varient pour une même expérience avec le même échantillon. L'erreur est d'autant plus faible que le nombre de fibres étudiés est important.
- \* *Erreur systématique* : Il s'agit d'une erreur non aléatoire qui ne peut ni être éliminée ni réduite en augmentant la taille de l'échantillon. En effet, il est montré que la technique

d'analyse 2D provoque une erreur systématique significative en  $\theta$ ; pour des  $\theta$  petits, c'est à dire des fibres perpendiculaires à la section observée, il est difficile de distinguer une ellipse d'un cercle. Cette erreur peut être réduite dans une certaine mesure par une augmentation de la résolution et en s'assurant d'un bon polissage de l'échantillon et d'un filtrage strict [24]. Parmi les différents paramètres que l'on peut utiliser pour filtrer les données, deux s'avèrent être efficaces : la taille de l'ellipse et le facteur de forme. Le premier filtre est égal au diamètre de la fibre. De cette façon, toutes les ellipses dont le demi axe b est anormalement petit ou grand sont éliminées. Le deuxième filtre [25] est le facteur de forme, défini par l'équation :

$$F_f = \frac{A}{\pi ab} \tag{1.6}$$

qui calcule le rapport de la surface de l'objet pixellisé, A, avec l'ellipse qui est associée. Si  $F_f \approx 1$ , l'objet est très elliptique, si  $F_f < 1$  sa forme est très éloignée de celle d'une ellipse. En appliquant un filtre de  $F_f > 0.9$ , on s'assure que toutes les fibres retenues sont issues d'objets elliptiques. L'erreur systématique depend donc de la qualité du sectionnement de chaque fibre lors de la coupe de l'échantillon. Typiquement la majorité des fibres vont avoir un facteur de forme compris entre 0,99 et 0,999, et c'est donc dans cette intervalle que l'on peut prendre en compte l'erreur systématique. Eberhardt [26] propose une relation pour corriger cette erreur qui a pour expression :

$$\theta_{corrig\acute{e}} = \theta_{mesur\acute{e}} - 7,6264e^{0,0487\theta_{mesur\acute{e}}} \tag{1.7}$$

 $\star$  Erreur de pondération : Pour des fibres de même longueur, la probabilité de couper une fibre perpendiculairement à la surface est plus importante que de couper une fibre faisant un certain angle,  $\theta$ . La probabilité qu'une fibre soit coupée par une section plane se déplaçant aléatoirement est fonction de la longueur l, de son diamètre d, et de son orientation comme illustré sur la figure 1.14.

Dans l'optique d'obtenir une estimation juste du tenseur d'orientation, ses composantes doivent être, pour chaque fibre, pondérées par une fonction  $F^k$  qui prend en compte cette erreur de pondération. On définit ainsi cette fonction :

$$F^{k} = \frac{1}{lcos(\theta) + dsin(\theta)}$$
(1.8)

Le tenseur d'orientation ainsi pondéré est donné par l'équation 1.9.

$$a_{ij} = \frac{\sum_{k=1}^{n} F^k p_i^k p_j^k}{\sum_{k=1}^{n} F^k}$$
(1.9)

On peut citer une autre technique d'observation 2D : la micro-radiographie de contact en rayon X en transmission d'échantillons minces. Cette technique permet d'obtenir de très belles images, en visualisant la projection des fibres dans une coupe [15].



FIG. 1.14 – Probabilité qu'une fibre de longueur l<br/>, et de diamètre d<br/> soit coupée par une section plane

**Méthodes de mesures 3D** Pour observer l'orientation des fibres dans un volume donné, on peut citer la microscopie confocale à balayage laser et plus récemment la microtomographie.

**Microscopie Confocale** L'équipe de Leeds [26] propose une technique automatisée de mesure d'orientation par microscopie confocale à balayage laser. Cette technique permet de faire des coupes "optiques", donc non destructives, de matériau semi-transparent. Elle permet de suivre individuellement chaque fibre sur une courte distance (typiquement  $\Delta z = 20 \mu m$ ) dans la matrice du composite. Sur chaque coupe, les fibres apparaissent sous formes d'ellipses légèrement décalées. Connaissant la distance entre chaque plan, il est possible de mesurer le décalage et ainsi obtenir l'orientation dans l'espace. Une étude sur l'incertitude de la localisation du centre de la fibre a montré que cette technique fournissait des mesures d'orientation avec une excellente précision :  $\Delta \theta < 1.5^{\circ}$  (pour n'importe quelle valeur de  $\theta$ ) et  $\Delta \phi < 3^{\circ}$  (pour  $\theta > 10^{\circ}$ ).

Microtomographie La tomographie par rayon X est une technique non destructive qui permet la reconstruction d'images en coupe d'un objet à trois dimensions avec une résolution spatiale qui peut atteindre le micromètre, on parle alors de **micro tomographie**. Son principe repose sur l'interaction d'un faisceau de rayons X avec la matière, par enregistrement du rayonnement transmis après traversée d'un objet. Les données acquises lors de la prise de mesure sont collectées suivant des orientations multiples dont le nombre et le pas varient en fonction de l'appareil et du type de résolution. La construction de l'image 3D se fait en résolvant un problème de reconstruction à partir des projections. La littérature consacrée à la reconstruction 3D est très abondante et les algorithmes de reconstruction sont aujourd'hui bien connus. Les problèmes qui restent à résoudre sont d'ordre informatique : rapidité de la reconstruction (temps machine), volume des données à traiter (généralement de l'ordre de plusieurs Gigaoctets). Cette technique est très utilisée
pour l'étude de mousse de polymère ou de mousse d'aluminium.

Dans le cas de quantification de l'orientation de fibres, toute la difficulté est d'identifier et de caractériser chaque fibre contenu dans l'échantillon. Pour plus de détails sur la méthode, on pourra se reporter à [27].

La figure 1.15 présente une image 3D d'un échantillon de pp30%fv4. On observe clairement la présence d'une structure coeur peau dans l'échantillon.





FIG. 1.15 – Image 3D d'un échantillon de pp30% fv4 à la position P3 -Reconstruction de 500000 fibres dans un volume de 2 mm  $\times$  2 mm  $\times$  3 mm

#### 1.3.2 Méthodologies expérimentales

#### 1.3.2.1 Zones d'analyse

Les différentes zones d'analyse choisies et leurs distances par rapport au centre de la plaque sont indiquées sur la figure 1.16. Les échantillons, de dimension  $30 \times 20$  mm, sont prélevés le long du chemin d'écoulement dans le plan (1,3).



FIG. 1.16 – Position des échantillons sur la plaque

#### 1.3.2.2 Approche surfacique

Dans cette section, on se propose de détailler la méthodologie adoptée pour quantifier l'orientation des fibres. Au cours de l'étude, nous avons utilisé deux méthodes surfaciques. La première technique consiste à prendre des images au MEB d'échantillons micro-polis puis de les analyser avec un logiciel d'analyse d'images (Visilog). Ces mesures ont été réalisées au Cemef. La deuxième méthode, totalement automatisée, consiste à réaliser des images au microscope optique et à les traiter simultanément avec un logiciel d'analyse d'images, développé par l'Université de Leeds.

**Préparation des échantillons** La préparation des échantillons pour l'analyse de l'orientation se divise en trois étapes :

- La première étape consiste à enrober les échantillons dans une résine epoxy. Le mélange homogène résine-durcisseur est polymérisé sous une hotte une dizaine d'heures avant démoulage.
- La phase de polissage constitue la deuxième étape de la préparation. Elle est primordiale car elle détermine la qualité du contraste entre les fibres et la matrice au moment de l'analyse. Le mode opératoire est diffèrent pour les observations au MEB et en microscopie optique. Il est résumé dans le tableaux 1.7,
- La troisième et dernière étape réservée uniquement pour les observations au microscope optique, a pour but d'augmenter le contraste entre fibre et matrice. Pour cela, on réalise une attaque aux ions oxygènes à la surface de l'échantillon. Ces ions vont attaquer la matrice et les fibres claires. L'attaque dure entre 20 et 30 minutes.

Temps (min)	Papier	Grain $\mu m$	Force (daN)	$\Omega \ (trs/min)$			
Microscopie optique (Mesures effectuées à Leeds)							
4	verre	20	5	300			
4	verre	14	5	300			
4	$drap + p\hat{a}te aluminium$	1	5	300			
4	$feutre + p\hat{a}te aluminium$	0.3	5	300			
Observation MEB (Mesures effectuées au Cemef)							
15	verre	50	1	300			
15	verre	30	1	300			
15	verre	14	1	300			
15	verre	8	1	300			
15	verre	5	1	300			
20	feutre + solution diamantée	3	0.5	300			

TAB.	1.7 -	Protocole	de	polissage	des	$\acute{e} chantillons$
------	-------	-----------	----	-----------	-----	-------------------------

Obtention des images Les observations en coupe des échantillons sont effectuées :

- au MEB, en mode environmental avec un grossissement de 500. On prend 5 séries d'images suivant l'épaisseur de manière à couvrir une grande surface de l'échantillon. Une image représente une plage d'observation de dimension 493  $\mu$ m x 364  $\mu$ m et compte environ 50 fibres (fonction du matériaux).
- au microscope à réflexion optique avec un grossissement de 100. Une image a pour dimension 384  $\mu$ m x 288  $\mu$ m. Le microscope est couplé à un ordinateur ce qui permet une automatisation complète de la mesure. Le système va donc balayer automatiquement la surface de l'échantillon.

Le prise d'images dans la plan de coupe de l'échantillon est illustrée sur la figure 1.17.



FIG. 1.17 – Principe de la prise d'image a)Image MEB b) Image microscope optique

**Analyse d'images** Chaque image est traitée avec un logiciel d'analyse d'image. L'image en niveau de gris est seuillée pour passer à une image binaire. Les dimensions de chaque ellipse sont déterminées à l'aide de la technique des moments. Les données sont filtrées et corrigées comme indiqué dans le paragraphe 1.3.1.4.

Les résultats d'orientation sont représentés par les composantes du tenseur d'orientation. Cette représentation permet d'avoir l'orientation moyenne en fonction de l'épaisseur (Figure : 1.18). L'échantillon est divisé en plusieurs zones dans l'épaisseur et chaque point correspond à la valeur moyenne de la composante dans la zone. L'épaisseur de la plaque est divisée avec un pas de 0,1, correspondant à une zone d'étude.

On remarque que la valeur de la composante  $a_{22}$  du tenseur est petite devant les autres composantes  $a_{11}$  et  $a_{33}$ . La quasi-totalité des fibres est donc orientée dans le plan de la pièce, c'est à dire dans le plan (1,3). Ceci est dû à la géométrie de la pièce et au type d'écoulement. De plus, on a  $a_{ij} \approx 0$  pour  $i \neq j$ . Enfin, puisque la somme des trois composantes est égale à 1, la distribution de  $a_{33}$  dans l'épaisseur nous permet d'avoir une représentation quantitative de la distribution d'orientation dans l'épaisseur.



FIG. 1.18 – Tracé type du tenseur d'orientation  $a_2$  dans l'épaisseur de la plaque : pp30% FV12 injecté en conditions standards dans une cavité de 1,8 mm

Une valeur de  $a_{33} = 0$  signifie que toutes les fibres sont orientées dans la direction orthogonale à la direction d'écoulement. Une valeur de  $a_{33} = 1$  correspond alors une orientation parfaite des fibres dans la direction d'écoulement.

#### 1.3.2.3 Approche 3D : La microtomographie

Ces mesures ont été réalisées sur un microtomographe de type Skyscan 1072. Pour obtenir une bonne résolution et faciliter le traitement des images, le volume scanné par le microtomographe est 2 mm  $\times$  2 mm  $\times$  3mm. La mesure se compose de trois étapes.

- 1) Acquisition des radiographies (durée 1h30). L'appareil effectue 900 projections 1024  $\times$  1024.
- 2) Reconstruction des sections à partir des radiographies pour obtenir une image en 3D (durée 6 heures).
- 3) Détection et reconstruction des fibres contenues dans l'échantillon (durée fonction du nombre de fibres : entre 24 et 48 heures de calcul).

L'analyse des résultats nous permet d'avoir accès à :

- une représentation graphique de la zone balayée.
- la valeur moyenne du tenseur d'orientation dans le volume,
- la distribution de longueur de fibres,
- la quantité de fibres courbées dans le volume. Les fibres étant identifiées par 80 points dont nous connaissons les coordonnées dans l'espace, il est alors possible de déterminer le rayon de courbure moyen de ces fibres. Les fibres possédant un rayon de courbure tendant vers l'infini sont considérées comme droites.

#### 1.3.3 Les Observations

#### 1.3.3.1 Vue de dessus des échantillons

Nous avons réalisé des observations d'un échantillon dans le plan parallèle à la direction de l'écoulement d'un échantillon issu d'une plaque de 3,6 mm injectée (condition standard avec vis spécifique aux fibres longues) avec du polypropylene chargé à 30% de fibres longues (longueur moyenne en nombre environ 1,85 mm). Les observations ont été effectués à trois niveaux dans l'épaisseur : une observation en peau (Figure 1.19), une observation à 1 mm de profondeur par rapport à la peau (Figure 1.20) et une observation au centre de la pièce (Figure 1.21).

Ces observations montrent d'une part, la présence de fibres courbées. D'autre part, on remarque la présence de paquets de fibres principalement au centre de la cavité. Enfin il semble qu'il y ai une densité de fibres plus importante au centre de la cavité qu'en peau de la pièce. Ces observations sont en accord avec les observations de Toll et Andersen, [28], mais aussi de [3],[21].

#### 1.3.3.2 Les observations en coupe

L'analyse des clichés obtenus au MEB nous permet d'avoir une représentation visuelle précise de l'orientation et de la structure coeur-peau dans la zone balayée. La figure 1.22 présente 25 images MEB permettant de reconstruire l'épaisseur d'une plaque de 1,8 mm sur une largeur de 2,5 mm. Il s'agit d'une plaque renforcée de pp30%FV12. A partir de ces images, il est possible de déterminer la proportion de la zone de coeur dans l'épaisseur totale. On observe, dans ce cas, deux zones de peaux où les fibres se présentent sous la



FIG. 1.19 – Observation en peau de fibres en vue de dessus -pp30%fv12 P2-



FIG. 1.20 – Observation à 1 mm de la peau de fibres en vue de dessus -pp30%fv12 P2-

forme de petites ellipses et une zone de coeur où les fibres se présentent sous la forme de bâtonnets.

#### 1.3.4 Validité des mesures

Afin de vérifier la validité des mesures en peau, nous avons réalisé des mesures pour les mêmes échantillons mais en observant une coupe à 90° au lieu de 0° par rapport à la direction d'écoulement, (Figure 1.24). Les fibres se présentent, dans le cas d'une coupe à 90° sous la forme d'ellipses allongées dans la zone de peau, ce qui donne une meilleure précision de mesure par rapport à une coupe à 0° (Figure 1.23).



FIG. 1.21 – Observation à coeur de fibres en vue de dessus -pp30%fv12 P2-



FIG. 1.22 – Observation de la structure coeur-peau. Vue dans l'épaisseur d'une coupe perpendiculaire à la direction d'écoulement -pp30%FV12 à la position P3 d'une plaque de 1,8 mm-

Les résultats, pour les polypropylènes chargés à 30% de fibres de 4 et 12 mm pour une épaisseur de 1,8 mm, sont présentés sur la Figure 1.25. On remarque que les tracés ne sont pas superposables mais les tendances sont correctes.

La présence de fibres courbées observées sur les micrographies de la figure 1.21 peut expliquer la non superposition des courbes lorsqu'on effectue des mesures dans un plan perpendiculaire à l'écoulement.



FIG. 1.23 – Observation de la structure coeur-peau. Vue dans l'épaisseur d'une coupe dans la direction d'écoulement -pp30%FV12 à la position P3 d'une plaque de 1,8 mm-



FIG. 1.24 – Schéma d'un échantillon et des plans d'observation



FIG. 1.25 – Evolution de la composante  $a_{33}$  pour une coupe à  $0^{\circ}$  et une coupe à  $90^{\circ}$ 

L'ensemble des résultats présentés dans ce chapitre sont issus d'une observation d'un plan de coupe perpendiculaire à l'écoulement.

#### 1.3.5Reproductibilité des mesures

Cette section présente les mesures de reproductibilité liées au système de mesure et à l'échantillon.

#### Reproductibilité liée au système de mesure 1.3.5.1

Nous avons réalisé des mesures de reproductibilité sur un même échantillon afin d'estimer les erreurs liées au système d'analyse d'images. Les mesures ont été réalisées à l'Université de Leeds. Trois mesures successives ont été effectuées sur le même échantillon d'épaisseur de 1,8 mm chargé de pp30%FV12 en position 2 et sur un échantillon chargé pp30%FV4 de 4 mm en position 3. La figure 1.26 présente les résultats de reproductibilité.

La reproductibilité liée est au système de mesure est satisfaisante, les incertitudes de mesure sur les composantes du tenseur  $a_2$  sont de l'ordre de 0.02. Les erreurs de mesure liées au logiciel d'analyse d'images Visilog et au seuillage manuel des images, lors du traitement des images MEB sont du même ordre de grandeur.



tion P3 épaisseur de 1,8 mm

P3 épaisseur de 1,8 mm

FIG. 1.26 – Mesure de reproductibilité liée au système de mesure

#### Mesure de reproductibilité liée à l'échantillonnage 1.3.5.2

Ces mesures ont été réalisées sur trois échantillons prélevés à la même position sur trois plaques moulées dans les mêmes conditions.

La figure 1.27 présente les résultats de reproductibilité liée à l'échantillonnage. La superposition des tracés d'orientation montre que la reproductibilité des mesures est satisfaisante pour les deux techniques de mesures.

#### Comparaison des deux méthodes 1.3.5.3

Pour comparer les deux méthodes de mesures, nous superposons les tracés d'un même échantillon analysé avec la méthode de Leeds et du Cemef. La figure 1.28 présente les valeurs de la composante  $a_{33}$  pour les deux techniques de mesures.



a) Echantillon de pp30%FV4 en position
 P3 épaisseur 1,8 mm

b) Echantillon de pp30%FV4 en positionP2 épaisseur 3,6 mm





a) Echantillon de pp30%FV4 en positionP3 pour une épaisseur de 1,8 mm

b) Echantillon de pp30%FV12 en position P3 pour une épaisseur de 1,8 mm

FIG. 1.28 – Comparaison des deux méthodes

Les deux techniques de mesures sont comparables. On mesure un niveau d'orientation en peau et à coeur comparable. Mais, on note que les valeurs de Leeds sont légèrement supérieures en peau et à coeur.

#### 1.3.6 Résultats

Les résultats présentés dans ce paragraphe sont issus des mesures réalisées avec les trois techniques : les mesures 2D du Cemef, de Leeds et les mesures 3D de microtomographie.

On s'intéresse à l'influence de différents paramètres sur l'orientation :

#### – Influence des paramètres procédés

- \* Vitesse d'injection,
- \* Vis de plasitification spécialement conçue pour les fibres longues,
- \* Température du moule.

#### – Influence des paramètres matériaux

- \* Concentration de fibres,
- \* Longueurs initiales des granulés,
- \* Ajout d'oxyde de titane dans la matrice polymère.

#### – Influence de la géométrie du moule

\* Épaisseur des plaques.

Toutes les épaisseurs ont été a dimensionnalisées de façon à pouvoir comparer librement les profils d'orientations entre eux. L'ensemble des résultats présentés i ci sont des résultats corrigés (correction de l'erreur systématique avec la relation proposé par Eberhardt [26] ).

Les mesures d'incertitude sur la valeur des composantes du tenseur  $a_2$  sont de 0,05.

#### 1.3.6.1 Etude du cas standard

On désigne par "*cas standard*", les plaques moulées dans des conditions d'injection dites standard. Ces conditions sont très proches de celles que l'on utilise industriellement. On s'intéresse à l'influence de la position de l'échantillon le long du chemin d'écoulement sur la distribution d'orientation finale. Les résultats, pour deux longueurs de granulés et pour toutes les positions (P1, P2, P3, P4), sont représentés sur la Figure 1.29. Seule une épaisseur de plaque de 3,8 mm est considérée.

On observe que l'orientation reste globalement inchangée le long du chemin d'écoulement. On note cependant une orientation dans la direction principale d'écoulement moins marquée au niveau du seuil d'injection (position P1) et une zone de coeur plus large et moins marquée. On observe, également, que cette zone de coeur n'est pas centrée.

## 1.3.6.2 Influence des paramètres d'injection

On s'intéresse ici à la position P3, vers le bout de la plaque (Figure 1.16).

**Effet de la vis d'injection** L'influence de la vis de plastification sur l'orientation dans l'épaisseur est représentée sur la Figure 1.30 pour deux épaisseurs de plaques.



FIG. 1.29 – Effet de la position de l'échantillon sur l'orientation sur des plaques de 3,8 mm

L'analyse des tracés d'orientation montre que quelle que soit l'épaisseur des plaques et la position de l'échantillon, il y a peu de différence sur les tracés d'orientation. On observe cependant un décallage du coeur pour les plaques d'épaisseur de 3,8 mm, uniquement en position P3. Ce résultat n'est donc pas significatif.

Ce résultat est corrélé aux mesures de distribution de longueur de fibres (section 1.2.2). Ces mesures montraient que la vis spéciale fibres longues ne préserve pas les fibres de la casse des fibres durant la phase de plastification.

D'autre part, ce résultat montre qu'une faible variation de la distribution de longueur n'influe pas sur la distribution de l'orientation finale.



FIG. 1.30 – Effet de la vis de plastification sur l'orientation -pp30% fv12 Position P3-

Effet de la vitesse d'injection L'influence de la vitesse d'injection sur l'orientation dans l'épaisseur est représentée sur la Figure 1.31a). L'analyse des tracés d'orientation montre qu'il n'y pas d'effet de la vitesse d'injection sur la structure d'orientation des plaques. Ces résultats sont en contradiction avec les mesures de Gupta et Wang [12] qui observent pour des faibles vitesses d'injection l'apparition d'une zone de coeur, où les fibres sont orientées de façon transverse à la direction d'écoulement, plus grande que pour des conditions d'injection standards.



FIG. 1.31 – Influence de la vitesse d'injection a) et de la température b) -pp30%fv4 Position P3 Plaque de 3,8 mm-

**Effet de la température du moule** Pour étudier les effets de la température du moule, nous avons imposé une différence de 20° C entre la partie mobile et la partie fixe du moule.

L'influence de la température du moule sur l'orientation dans l'épaisseur est représentée sur la Figure 1.31 b).

Sur les tracés, la partie froide du moule se situe à l'abscisse 0 et la partie chaude à l'abscisse 1. Là encore, *l'effet de la température du moule sur la distribution d'orientation des fibres est nul.* Il est probable que la différence de transfert thermique ne soit pas suffisante pour perturber le profil de vitesse pendant la durée du remplissage.

#### 1.3.6.3 Influence de l'épaisseur de la plaque

L'influence de l'épaisseur de la plaque sur l'orientation dans l'épaisseur est représentée sur la figure 1.32.



d) Echantillon de pp30%fv12 position P4

FIG. 1.32 – Influence de l'épaisseur de la plaque sur l'orientation

L'analyse des tracés d'orientation montre que l'épaisseur de la plaque influe sur l'épaisseur de la zone de coeur. Cette augmentation est d'autant plus importante que la distribution de longueur dans la pièce est grande.

En conclusion, pour une même vitesse d'injection, lorsque l'épaisseur de l'empreinte augmente, l'épaisseur de la zone de coeur devient plus grande, ce qui est en accord avec [16].

#### 1.3.6.4 Influence de longueur des granulés

L'influence de la distribution de longueur sur l'orientation dans l'épaisseur est représentée sur la figure 1.33. Deux épaisseurs de plaques et deux positions sont considérées.

L'analyse des tracés d'orientation montre que quelle que soit l'épaisseur de la plaque étudiée, on observe que la zone de coeur est moins marquée et plus large pour la distribution de longueur la plus grande. On obtient des valeurs de tenseurs  $a_{33}$  de l'ordre de 0,2 pour des granulés de longueur initiale de 12 mm et une valeur de  $a_{33}$  de l'ordre de 0,12

pour des granulés de longueur initiale de 4 mm.

En conclusion, on peut dire que l'épaisseur de la zone de coeur est plus grande pour une distribution de longueur plus grande, mais que l'orientation y est moins marquée.



FIG. 1.33 – Effet de la longueur des granulés sur l'orientation -Polypropylènes chargés à 30% en position P3-

#### 1.3.6.5 Influence du taux de fibres

On s'intéresse ici à des matériaux chargés à 10% et 30% de fibres. Deux épaisseurs de plaques et deux longueurs initiales de granulé ont été considérées. Les observations des photographies MEB ne présentent pas, pour l'ensemble des matériaux chargés à 10%, une structure coeur-peau similaire à celles obtenues avec les polypropylènes renforcés à 30% de fibres.

La Figure 1.34 présente une coupe d'un échantillon de pp10%fv4 d'une épaisseur de 3,6 mm. On remarque que l'ensemble des fibres se présente sous la forme de petites ellipses. Quelques fibres se retrouvent cependant sous forme de bâtonnets mais en très faible quantité.

L'effet de la longueur initiale des fibres et de l'épaisseur des plaques sur l'orientation dans l'épaisseur est représenté sur la figure 1.35. On constate que la structure coeur peau n'est



FIG. 1.34 - Images MEB -pp10% fv12 Position P3 Plaque de 1,8 mm-

pas bien définie, avec peu de différence entre les valeurs en peau et en coeur. D'autre part, l'analyse des tracés d'orientation présente des oscillations de la valeur de la composante  $a_{33}$ dues au faible nombre de fibres. Enfin si on s'interesse aux valeurs des autres composantes, on observe que la valeur maximale de la composante  $a_{31}$  oscille autour de 0,3 et de 0,4, les valeurs des composantes  $a_{12}$  et  $a_{23}$  sont voisines de 0.



FIG. 1.35 – Effet du taux de fibres sur l'orientation -polypropylènes chargés à 10% -position P3-

Les plaques polypropylènes renforcées de 10% de fibres de verre ne présentent pas de structure coeur peau.

#### **1.3.6.6** Influence de l'ajout de $TiO_2$

L'influence de l'apport d'oxyde de titane sur l'orientation des fibres dans l'épaisseur est représentée sur la Figure 1.36. La superposition des tracés d'orientation ne permet pas d'avancer de conclusions quant à son influence.



FIG. 1.36 – Effet de l'apport de TiO<sub>2</sub> sur l'orientation -pp30%fv12 en position P2 et P3

#### 1.3.7 Complément de mesure : la Microtomographie

On se propose de compléter les mesures 2D par des mesures de microtomographie 3D. Dans un premier temps, il nous paraît important de mesurer la reproductibilité de cette technique très récente. Les mesures ont été réalisées sur des échantillons de polypropylènes renforcés de 30% de fibres courtes (4 mm) et longues (12 mm) sur des plaques de 1,8 mm. Initialement, il était prévu de faire des mesures sur les plaques d'épaisseur de 3,8 mm. Or, il s'est avéré que la quantité d'information à traiter pour la reconstruction de l'échantillon en trois dimension était trop importante. La première difficulté rencontrée est donc d'ordre informatique.

#### 1.3.7.1 Reproductibilité des mesures liée au système de mesure

Nous avons réalisé des mesures de reproductibilité sur un même échantillon. Ces mesures vont permettre de vérifier la fiabilité de la technique : prise de radiographie et programme de reconstruction. A noter que ces mesures n'ont jamais été réalisées à l'université de Leeds.

La figure 1.37 présente les résultats de reproductibilité pour un échantillon de pp30% fv4 et d'un échantillon de pp30% fv12.



FIG. 1.37 – Mesure de la reproductibilité d'un essai de microtomographie -Polypropylène renforcé de 30% de fibres en position 3, épaisseur de 1,8 mm-

La reproductibilité liée au système de mesure est satisfaisante, les incertitudes de mesures sur les composantes du tenseur  $a_2$  sont de l'ordre de 0,01.

#### 1.3.7.2 Confrontation des mesures 2D et des mesures 3D

On se propose de confronter les mesures 2D et 3D. La figure 1.38 présente l'évolution de la troisième composante du tenseur  $a_2$  mesuré par microtomographie X et par la technique 2D de microscopie optique.

Sur cette figure deux types de résultats 3D sont présentés. L'approche notée 3D volume calcule la distribution d'orientation en prenant en compte l'ensemble des fibres contenues dans le volume de l'échantillon. Une autre représentation, notée 3D plan, calcul la distribution d'orientation dans le volume en considérant que le volume de l'échantillon est

divisée en 5 plans de coupe. Dans ce cas, l'orientation de chaque fibre coupant le plan est calculée en prenant un dixième de la longueur de la fibre de chaque coté du plan. Cette méthode présente l'avantage, en comparaison avec une mesure 2D de microscopie classique, de prendre en compte les fibres courbées.



FIG. 1.38 – Confrontation des mesures 2D avec les mesures 3D -pp30%fv12 avec une vis GFL, plaque de 1,8 mm-

Les résultats montrent que les tracés ne se superposent pas. On observe un coeur légèrement décentré et plus intense pour les mesures 3D avec une zone de peau isotrope. Cet écart entre les tracés peut s'expliquer, d'une part par les erreurs de mesure faites en 2D sur l'angle  $\theta$  et d'autre part par la possibilité d'avoir des fibres courbées.

#### 1.3.7.3 Etude d'un échantillon de pp30%fv12

On se propose d'étudier un échantillon de polypropylène renforcé de fibres longues de 12 mm.

**Représentation Graphique de l'orientation 3D** Chaque zone est divisée en un nombre déterminé de cadres rectangulaires, avec différents niveaux de gris suivant l'intensité de l'orientation dans la direction 3 (i.e direction de l'écoulement). Un cadre très clair indique une orientation privilégiée des fibres dans la direction d'écoulement. Un cadre de couleur noir correspond à une zone où les fibres sont orientées de façon transverse à l'écoulement et un cadre de couleur rouge indique une absence de fibres dans cette zone. Cette représentation permet d'avoir une vue qualitative globale de la façon dont les fibres sont alignées dans cette region. A titre d'exemple, chaque cadre de la coupe de la figure contient en moyenne une cinquantaine de fibres, soit un nombre totale de soixante mille fibres.

La figure 1.39 présente la distribution d'orientation des fibres à la position P2. Cette représentation permet de distinguer une zone de coeur bien définie (cadres sombres pour la troisième composante du tenseur  $a_2$  et des zones au niveau des parois, présentant une absence de fibres (zone rouge). Ce résultat est très intéressant dans la mesure où il



conforte les observations effectuées en vue de dessus sur un même échantillon, qui avait mis en évidence une densité de fibres moins importante en peau.

FIG. 1.39 – Cartographie de la distribution d'orientation moyenne des fibres pour les composantes  $a_{11}, a_{33}$  du tenseur  $a_2$  -pp30% fv12 injecté avec une vis GFL en position P2-

Influence de la position de l'échantillon le long du chemin d'écoulement La Figure 1.40 présente la distribution d'orientation volumique de fibres en fonction de la position de l'échantillon sur la plaque.



FIG. 1.40 – Effet de la position de l'échantillon sur l'orientation sur des plaques injectées en pp30% fv12 avec une vis GFL, plaque de 1,8 mm

L'analyse des courbes confirme les résultats issues des mesures 2D qui montraient que l'orientation restait globalement inchangée le long du chemin d'écoulement.

**Influence de la vis de plastification** On étudie ici l'influence de la vis d'injection sur la distribution d'orientation. La figure 1.41 présente l'évolution de l'orientation en position P1 et P3. La encore, les résultats confirment le fait que la vis spécifique pour fibres longues n'a pas d'effet sur la distribution d'orientation globale.



FIG. 1.41 – Influence de la vis d'injection sur l'orientation moyenne 3D des fibres pour les composantes  $a_{33}$  du tenseur  $a_2$  -pp30% fv12 injecté avec une vis standard et une vis GFL-

**Courbure des fibres** La figure 1.42 présente la proportion de fibres en fonction du rayon de courbure. On observe que 49% des fibres ont un rayon de courbure compris entre 800  $\mu$ m et 980  $\mu$ m. Sachant que la distribution de longueur des fibres dans l'échantillon est de l'ordre de 2 mm, ces mesures laissent suggérer que la majorité des fibres sont rigides. D'autre part, l'analyse des résultats montre qu'il n'y a pas d'effet de la position de l'échantillon le long du chemin d'écoulement sur la courbures des fibres. Ces mesures permettent à priori de justifier l'utilisation de tenseur d'orientation comme descripteur d'orientation.



FIG. 1.42 – Effet de la position de l'échantillon sur l'orientation sur des plaques injectées en pp30% fv12 avec une vis GFL, plaque de 1,8 mm

## 1.4 Conclusions du chapitre 1

L'objectif de ce chapitre était de caractériser l'orientation et la structure des fibres dans une pièce injectée. Cette étude a permis de mettre en évidence la complexité des phénomènes d'orientation dans le cas d'une plaque injectée en polypropylène renforcé de fibres longues.

Des observations d'incomplet ont montré la présence d'un excès de fibres au niveau du front de matière, caractéristique des produits chargés de fibres longues.

Des mesures de longueurs ont mis en evidence que la casse des fibres se fait préférentiellement durant la phase de plastification. L'analyse du taux de dégradation des fibres en fonction des paramètres d'injection a montré que 78,50% des fibres longues sont dégradées dans la vis alors que seulement 50% des fibres courtes sont cassées. D'autre part, l'étude de la distribution de longueur dans la pièce a montré qu'il y a peu de casse le long du chemin d'écoulement.

Deux techniques de mesure ont été utilisées pour quantifier la distribution d'orientation des fibres dans nos pièces injectées :

- une technique surfacique qui consiste à observer par microscopie optique des coupes micro-polies puis à les analyser avec un logiciel d'analyse d'images,
- une technique tridimensionnelle de microtomographie par rayon X, couplée à un logiciel de détection et de reconstruction des fibres.

L'observations de coupes micro-polies ont mis en évidence la présence de fibres courbées dans l'épaisseur des pièces, rendant les mesures 2D difficiles. Ces observations suggéraient la limitation de la technique surfacique pour l'étude de l'orientation de fibres longues.

L'utilisation de la microtomographie 3D a permis de lever cette incertitude en validant l'approche 2D. En effet, l'étude proposée a permis de retrouver les résultats obtenus avec l'approche surfacique.

Cette étude, réalisée sur une pièce de géométrie simple, a néanmoins mis en évidence des phénomènes d'orientation complexes. Nous retrouvons la présence d'une structure coeurpeau dans l'épaisseur, similaire à celle observée avec les composites chargés fibres courtes, pour des plaques injectées en polypropylène renforcé à 30% de fibres de verre. Cependant, dans le cas de plaque renforcée avec 10% de fibres de verre, nous n'observons pas cette structure coeur-peau caractéristique.

L'étude de l'influence des paramètres procédés, tels que la vis de plastification, la vitesse d'injection et la température du moule, montre qu'ils n'ont pas d'effet sur la distribution d'orientation dans la pièce.

Les effets nuls de la vis spécifique aux fibres longues s'expliquent par le fait que cette vis préserve peu la longueur des fibres au cours de la phase de plastification. De ce fait, la distribution de la longueur moyenne dans la pièce est sensiblement identique pour des plaques injectées avec une vis standard et une vis GFL. Ce résultat montre aussi qu'une faible variation de la distribution de longueur n'a pas d'effet sur la distribution d'orientation.

D'autre part, pour mettre en évidence les effets de la vitesse d'injection et de la température, il aurait été nécessaire de tester une plage de paramètres plus large.

L'étude de l'influence de la longueur initiale du granulé a montré que l'épaisseur de la zone de coeur augmente lorsque la distribution de longueur moyenne dans la pièce est plus grande.

L'ensemble de ces mesures d'orientation constitue une base de données d'orientation qui permettra à terme de valider un code numérique de prédiction de l'orientation.

\* \* \* \* \* \* \* \* \* \* \* \* \* \* \* \* \* \*

A l'heure actuelle, les modèles d'orientation permettant décrire l'orientation d'une population de fibres dans le cas d'une suspension concentrée sont limités. On peut citer le modèle de Folgar et Tucker [1] qui sera présenté en détail dans la chapitre 3. Or ce modèle ne permet qu'une description qualitative du mouvement des particules [29].

On peut citer plusieurs facteurs qui contribuent à une déviation des résultats :

- la matrice est en générale non newtonienne,
- les particules ne sont pas totalement rigides (surtout dans le cas des fibres longues),
- enfin, il existe des interactions mécaniques entre les particules et les parois du moule, ou encore entre les particules elles-mêmes.

Dans une optique de compréhension des phénomènes d'orientation de fibres longues, nous proposons une approche de simulation directe. Cet outil original permet d'accéder à la physique intrinsèque des écoulements fluide-particules. Cet type d'approche apparaît nécessaire pour étudier la dynamique et les propriétés macroscopiques des suspensions de fibres. En effet, la connaissance précise de l'écoulement à l'échelle des particules est déterminante dans la compréhension du mouvement global.

# Chapitre 2

# Modélisation de l'orientation des fibres en écoulement

C<sup>E</sup> chapitre porte sur la définition et la mise en oeuvre d'une méthode numérique de simulation directe capable de modéliser le mouvement de particules solides dispersées dans un fluide en tenant compte de l'ensemble des interactions hydrodynamiques.

Le chapitre 1 a souligné la complexité des phénomènes d'orientation. On a pu mettre en évidence la formation d'une structure coeur-peau caractéristique des composites chargés de fibres. L'origine de ces arrangements est complexe, elle est liée à un certain nombre d'interactions qui apparaissent au cours de l'écoulement. La difficulté réside dans la mise en évidence de ces interactions. En fait, les interactions hydrodynamiques fibres-fluide, les interactions fibres-fibres et fibres-parois, la nature de l'écoulement, la concentration de particules sont autant de phénomènes qui peuvent être à l'origine de l'orientation finale des particules.

L'intérêt d'une approche numérique ainsi décrite est double. Du point de vue de la dynamique des fluides, cette méthode peut être utilisée pour développer de nouveaux modèles diphasiques de transport de particules (fibres, sphères). En particulier, dans le cas des suspensions de fibres, elle permet de caractériser certaines grandeurs nécessaires à la résolution et à la fermeture du modèle statistique d'orientation (le  $C_i$  qui traduit les interactions entre fibres dans le modèle de Tucker [1] et les équations de fermeture). D'un point de vue rhéologique, la connaissance simultanée de la distribution spatiale des particules et des grandeurs macroscopiques, comme la viscosité, autorise la construction de lois de comportement rhéologiques en fonction de la nature de l'écoulement et de la concentration en particules. Ce dernier point sera abordé dans le chapitre 4 du manuscrit.

Après une section introductive décrivant les différents domaines où l'on rencontre des écoulements diphasiques fluide-particules, nous présentons les différentes approches permettant de modéliser les écoulements diphasiques comprenant un très grand nombre de particules. Une deuxième section présente le modèle physique développé pour simuler de manière directe l'orientation de particules. Après avoir défini les équations du mouvement de deux domaines (fluide et fibres), nous expliquons la démarche adoptée pour suivre le mouvement des particules. Une troisième section présentera les études et validations du modèle. Enfin, nous proposerons des exemples d'applications.

#### Contents

<b>2.1</b>	Enje	eux et objectifs de l'étude		
	2.1.1	Généralités sur les écoulements diphasiques	54	
	2.1.2	Changement d'échelle : du macroscopique au microscopique	54	
2.2	Etuc	de bibliographique : le système fluide-particules	<b>54</b>	
	2.2.1	Bilan des forces agissant sur les particules	54	
		2.2.1.1 Forces Hydrodynamiques	55	
		2.2.1.2 Les forces de trainées	56	
		2.2.1.3 Interactions Hydrodynamiques	57	
		2.2.1.4 Forces inter-particulaires non hydrodynamiques	58	
	2.2.2	Traitement des écoulements diphasiques	59	
		2.2.2.1 Modèle à deux fluides	59	
		2.2.2.2 Suivi Lagrangien des particules	59	
		2.2.2.3 Simulation Numérique directe	59	
<b>2.3</b>	Con	struction du modèle physique	61	
	2.3.1	Le logiciel $\operatorname{REM3D}^{\textcircled{R}}$	61	
	2.3.2	Les hypothèses du modèle	61	
	2.3.3	Le domaine fluide	61	
		2.3.3.1 Conservation de la masse	62	
		2.3.3.2 Conservation de la quantité de mouvement	62	
		2.3.3.3 Problème complet	63	
	2.3.4	Le domaine fibre	63	
	2.3.5	Discrétisation du système en vitesse-pression	64	
		2.3.5.1 Formulation variationnelle	64	
		2.3.5.2 Introduction des fonctions caractéristiques	66	
		2.3.5.3 Discrétisation et résolution numérique	67	
	2.3.6	Suivi de l'évolution des domaines	69	
		$2.3.6.1  \text{Introduction}  \dots  \dots  \dots  \dots  \dots  \dots  \dots  \dots  \dots  $	69	
		2.3.6.2 Approche Eulérienne de type Galerkin discontinue	70	
		2.3.6.3 Approche Semi lagrangienne de type Euler explicite	72	
	2.3.7	Algorithme général	75	
2.4	Etuc	les et validations du modèle	76	
	2.4.1	Conditions d'expérimentations	76	
	2.4.2	Validations	77	
		2.4.2.1 Aspect théorique : Mouvement d'une particule	77	
		2.4.2.2 Résultats numériques	79	
	2.4.3	Mouvement de corps rigide	81	
	2.4.4	Mise en évidence des interactions hydrodynamiques $\ \ . \ . \ .$ .	81	
		2.4.4.1 Sphères soumises à un écoulement de Couette	82	
		2.4.4.2 Fibres soumises à un écoulement de cisaillement simple	85	
	2.4.5	Etude de l'influence des parois sur l'orientation	86	
		2.4.5.1 Fibre initialement parallèle	86	

	2.4.5.2	Fibre initialement perpendiculaire		
2.5 App	olications	s		
2.5.1	Applica	tion à une population de fibres $\ldots \ldots \ldots \ldots \ldots \ldots 90$		
	2.5.1.1	Cas 2D		
	2.5.1.2	Cas 3D		
2.5.2	Calcul o	de l'orientation dans des zones complexes $\ldots \ldots \ldots \ldots 93$		
	2.5.2.1	Cas d'écoulement divergent		
	2.5.2.2	Cas d'écoulement convergent		
2.6 Limitations du modèle 93				
2.7 Conclusions du chapitre 2				

# 2.1 Enjeux et objectifs de l'étude

#### 2.1.1 Généralités sur les écoulements diphasiques

Les fluides constitués de particules solides dispersées au sein d'un fluide porteur représentent une variété très importante de fluides complexes en écoulement. Ils apparaissent bien sûr dans la plupart des fluides complexes industriels (les composites, génie pétrolier, génie des poudres), mais aussi dans de très nombreux écoulements naturels (sédimentation, brouillard, écoulement de protéine dans le sang).

Le très vaste domaine d'application des écoulements mixtes fluides-particules a amené un grand nombre de chercheurs à se consacrer à cette science. Mais si la compréhension de la mécanique des fluides monophasiques en régime laminaire a fortement progressé ces dernières années, la science des écoulements diphasiques et a fortiori multiphasiques reste encore un secteur de recherche en plein essor. Aussi une avancée dans la compréhension de ce type d'écoulement peut conduire rapidement à une amélioration sensible des procédés industriels.

#### 2.1.2 Changement d'échelle : du macroscopique au microscopique

L'étude des réarrangements de la microstructure a conduit les chercheurs à développer une nouvelle approche. Cette approche consiste à changer d'échelle, en passant de l'échelle macroscopique à l'échelle microscopique, et à se placer à l'échelle des particules. La rhéophysique a cet objectif. La difficulté à accéder visuellement à l'intérieur d'un écoulement diphasique limite les observations expérimentales. Il est alors nécessaire d'avoir recours à des techniques plus complexes (Résonance Magnétique Nucléaire (RMN), les traceurs radioactifs, la microtomographie, l'anémométrie laser).

Notre approche numérique est similaire. Ce type d'approche numérique présente un grand intérêt car elle permet d'accéder à certaines grandeurs physiques que l'approche expérimentale peut difficilement mesurer. Elle permet de faire des études paramétriques conséquentes et de venir compléter l'interprétation d'un phénomène physique observé expérimentalement.

L'objectif de notre étude est de développer un modèle numérique capable de simuler l'orientation d'un petit nombre de fibres dispersées dans un fluide en prenant en compte l'ensemble des interactions qui peuvent apparaître lors de l'écoulement.

## 2.2 Etude bibliographique : le système fluide-particules

## 2.2.1 Bilan des forces agissant sur les particules

Une particule solide transportée dans un écoulement subit une action du fluide qui va déterminer sa trajectoire. Nous allons décrire l'ensemble des forces agissant sur la particule.

Le mouvement d'un fluide Newtonien incompressible satisfait les équations de Stokes, tandis que le mouvement de la i-ème particule, est décrit par l'équation de Langevin qui peut s'écrire sous la forme suivante :

$$m\frac{d\vec{U_i}}{dt} = \vec{F_i}^H + \vec{F_i}^C + \vec{F_i}^B \quad \text{et} \quad \frac{d\left(I \ \vec{\omega_i}\right)}{dt} = \vec{T}_i^H + \vec{T}_i^C + \vec{T}_i^B \tag{2.1}$$

avec  $\overrightarrow{U_i}$  et  $\overrightarrow{\omega_i}$  la vitesse du centre et la vitesse angulaire de la i-ème particule.  $\overrightarrow{F_i^H}, \overrightarrow{T_i^H}$  représentent respectivement les forces et moments hydrodynamiques exercés sur les particules à cause de leur mouvement relatif par rapport au fluide,  $\overrightarrow{F_i^C}$  et  $\overrightarrow{T_i^C}$  les forces et moments inter-particulaires non hydrodynamiques et enfin  $\overrightarrow{F_i^B}, \ \overrightarrow{T_i^B}$  les forces stochastiques, et moments à l'origine du mouvement Brownien.

Dans le cadre de l'injection, on fait habituellement les hypothèses suivantes : on néglige l'effet de l'accélération de la fibre et les forces stochastiques. La première hypothèse revient à considérer que l'inertie de la fibre est très faible devant les forces qui lui sont appliquées. On fait la deuxième hypothèse car le rapport de forme des fibres est élevé, [6], [30], [31], [32]. En conclusion, la plupart des approches considèrent que le bilan des moments et des forces agissant sur la fibre est nulle. De plus, le procédé d'injection est utilisé pour des fluides ayant une grande viscosité et on néglige les termes d'inertie dans l'équation de Navier-Stokes qui décrit le comportement de la partie fluide.

La difficulté majeure réside dans la définition de ces forces et en particulier des forces hydrodynamiques. On se propose ici de donner les formes explicites généralement utilisées dans la littérature pour exprimer les forces et interactions hydrodynamiques agissant sur le système fluide-particules.

#### 2.2.1.1 Forces Hydrodynamiques

La force et le couple hydrodynamique sur un solide traduisent l'action de l'écoulement du fluide sur la surface de ce solide. On a ainsi les expressions suivantes :

$$\overrightarrow{F^{H}} = \int_{\partial\Omega_{s}} \boldsymbol{\sigma}.\overrightarrow{n} \ d\Gamma \quad ; \quad \overrightarrow{T^{H}} = \int_{\partial\Omega_{s}} [x - X] \times [\boldsymbol{\sigma}.\overrightarrow{n}] \ d\Gamma \tag{2.2}$$

où  $\partial\Omega_s$  est la surface du solide,  $\vec{n}$  la normale à cette surface, X le barycentre du solide et  $\sigma$  le tenseur des contraintes dans la partie fluide ( $\sigma$  est issu de la résolution des équations de Stokes).

Une méthode directe que nous présenterons dans la suite, consiste à calculer ces termes à partir de la solution numérique de l'équation de Stokes dans le domaine liquide. Mais de nombreux auteurs utilisent diverses approximations qui permettent d'avoir une expression analytique de ces forces hydrodynamiques. En effet le mouvement du fluide étant décrit par les équations de Stokes, on peut utiliser les méthodes classiques ("creeping flow solutions") qui permettent d'avoir la forme de l'écoulement au voisinage d'un corps solide. Par exemple, si on considère que la perturbation d'un écoulement par la présence d'un

corps solide décroit au moins en  $r^{-1}$ , (r étant la distance par rapport au barycentre du corps solide), on peut alors chercher des solutions de l'équation de Stokes en utilisant des fonctions harmoniques décroissantes [33]. Ces méthodes permettent d'obtenir une expression analytique des forces de trainée qui exprime la différence de vitesse entre la particule et le fluide.

Dans le cas des fibres, on peut utiliser la théorie des corps élancés qui permet d'obtenir une approximation des forces de trainée ([34]). Ces interactions hydrodynamiques peuvent être aussi traitées en utilisant la méthode des singularités ("stokeslet analysis") [35],[36] qui permet d'étendre la théorie des corps élancés à l'étude des interactions particule-particule. Dans le cadre des écoulements à faible nombre de Reynolds, on peut aussi utiliser le principe de lubrification qui permet de décrire l'écoulement de fluides visqueux confinés entre deux parois solides très proches. De cette manière, on peut exprimer les interactions hydrodynamiques quand les particules sont très proches et aussi les interactions particulesparoi.

Finalement, du fait de la linéarité de l'équation de Stokes, on a la possibilité d'additionner ces différents effets pour obtenir la solution plus générale. Par conséquent, on fait l'hypothèse que les forces hydrodynamiques se décomposent en trois termes,

$$\vec{F}^{H} = \vec{F}^{d} + \vec{F}^{i} + \vec{F}^{l}$$
(2.3)

où les exposants signifient "drag" pour trainée, "interaction" pour les interactions de grande portée et "lubrification" pour les interactions de courte portée.

L'expression de ces forces hydrodynamiques fait intervenir la vitesse propre et l'orientation des particules. Si on considère que le bilan des forces hydrodynamiques est nul pour chaque particule, on obtient un système d'équations qui permet d'obtenir la vitesse et l'orientation de chaque particule.

#### 2.2.1.2 Les forces de trainées

Les forces hydrodynamiques exercées à la surface de la particule par le fluide en mouvement induisent un mouvement de la particule dans le fluide. Ce mouvement comporte non seulement une translation, mais aussi une rotation autour des axes de la particule.

Considérons une particule en mouvement de translation à la vitesse  $\overrightarrow{V}$  dans un fluide immobile. La force hydrodynamique, appelée force de traînée, résultant du mouvement entre la particule et le fluide pour un mouvement de translation dans une direction quelconque est obtenue de la manière suivante :

$$\overrightarrow{F}^{H} = \zeta_{p} \overrightarrow{V}_{p} + \zeta_{t} \overrightarrow{V}_{t}$$
(2.4)

avec  $\zeta_p$  et  $\zeta_t$ , respectivement les coefficients de friction parallèle et perpendiculaire et  $\overrightarrow{V} = \overrightarrow{V}_p + \overrightarrow{V}_t$  la vitesse relative du fluide par rapport à la particule. Par exemple, pour

une fibre cylindrique avec  $\beta = L/2a >> 1$ , on a [37] :

$$\zeta_p = 2 \pi \eta \frac{L}{\ln(\beta)}$$

$$\zeta_t = 2 \zeta_p$$
(2.5)

Dans le cas de particules sphériques,  $\zeta_p$  a pour expression  $\zeta_p = 6 \pi \eta_0 d$ , avec  $\eta_0$  la viscosité de la matrice et d le diamètre de la sphère.

De la même manière, on peut calculer le couple  $\vec{T}^d$  qui résulte du mouvement relatif de rotation de la fibre par rapport au fluide. Connaissant l'expression analytique de la vitesse au voisinage du corps solide, on peut exprimer le tenseur des contraintes sur la surface du solide et calculer  $\vec{T}^d$  qui est défini par la relation 2.2. On montre que pour une fibre cylindrique de grand rapport de forme, on a

$$\vec{T}^d = \zeta_r \bar{\omega} - \omega \tag{2.6}$$

où  $\zeta_r$ , le coefficient de friction en rotation, est égal à [37]

$$\zeta_r = \frac{\pi \eta L^3}{3 \ln(\beta)} \tag{2.7}$$

Il y a dans la littérature de nombreuses expressions des coefficients  $\zeta_r$ ,  $\zeta_p$ ,  $\zeta_t$  pour différentes formes de particules (disques, ellipsoides, cylindres, ...). On pourra se reporter par exemple au livre de Happel et Brenner [36].

Lorsque plusieurs particules sont en mouvement, le problème se complique. L'écoulement du fluide et les trajectoires des particules sont fortement couplés. Le fluide exerce une action sur chaque particule, qui modifie la trajectoire des particules. Dans le même temps, la nouvelle position des fibres modifie les caractéristiques du fluide. Il est alors nécessaire de prendre en compte les interactions hydrodynamiques entre les particules, et, dans le cas de suspensions très concentrées de décrire les collisions entre particules.

#### 2.2.1.3 Interactions Hydrodynamiques

La présence de la particule dans l'écoulement apporte par ailleurs une perturbation à l'écoulement. De manière tout à fait générale en rhéologie des suspensions, la connaissance de cette perturbation, ou, ce qui est équivalent, du champ de vitesse autour de la particule, est importante à deux points de vue. La connaissance du champ de vitesse permet d'abord de remonter à la contrainte exercée par la particule sur le fluide, qui est à l'origine de l'augmentation de viscosité dans la suspension due à la présence des particules. De plus, la perturbation apportée par une particule à l'écoulement est à l'origine des interactions entre particules transmises par le fluide, **appelées interactions hydrodynamiques**; dans ce problème c'est la portée de la perturbation (son étendue spatiale) qui est déterminante. On distingue deux types d'interactions hydrodynamiques dite de courte et de longue portée.

Les interactions de courte portée interviennent lorsque deux particules sont très proches. Ces interactions peuvent être exprimées à l'aide de la théorie de la lubrification

[30], [31] [32] (i.e on considère que le mouvement du fluide s'effectue dans un canal étroit). Cette approche n'est cependant pas correcte pour traiter les collisions entre particules, qui deviennent importantes lorsque la solution est concentrée. Elle garantit uniquement la présence d'une couche de fluide entre les particules ce qui permet d'empêcher les chevauchement de particules qui sont non physiques.

Dans ce cas, la perturbation du champ de vitesse due à la présence des particules peut s'écrire comme la superposition de l'écoulement de base non perturbé (forces hydrodynamiques de traînée et de rotation) et d'une perturbation qui résulte des interactions hydrodynamiques entre particules de courte portée. Yamane et al proposent [30] d'exprimer une force à partir de la distance entre deux particules. Cette approche permet d'intégrer les interactions courtes portées. La formule proposée n'est pas correcte lorsque les fibres sont dans un même plan et lorsque l'extrémité d'une fibre est en contact avec une autre particule. Pour éviter les collisions et les recouvrements de particules, Yamane et al introduisent une force de repulsion entre les particules. Cette force s'exprime en fonction de la distance entre les particules. Ils définisent ainsi une distance écran à partir de laquelle les particules vont entrer en collision.

Glowinski [38] traite les problèmes de collisions entre des sphères, en modélisant les interactions à courte portée via des forces de répulsions, à la manière de Yamane.

Les interactions à longue portée interviennent lorsque les particules ne sont pas en contact. Elles peuvent être décrite par une loi puissance, fonction de  $r^{-n}$  avec r la distance entre particules. Différentes approches sont utilisées pour modéliser ces interactions. On peut citer :

- les méthodes des éléments frontières (BEM) et les méthodes frontières double couche (CDLBEM),
- les méthodes des développements multipolaires.

Les méthodes des éléments frontières nécessitent des ressources informatiques importantes alors que les approches de développements multipolaires sont limitées par le rapport de forme des particules (exemple Dynamique de Stokes pour des particules sphériques). Fan et al [31] utilisent la théorie des corps élancés pour modéliser ce type d'interaction.

#### 2.2.1.4 Forces inter-particulaires non hydrodynamiques

La notion de contact qui est négligeable dans le cas d'un système dilué, devient importante dans un système semi-dilué et devient le point central d'une solution concentrée. Dans un système concentré de fibres, les notions de réseaux évolutifs et d'enchevêtrements traduisent l'importance de ces collisions. Peu d'études expriment ces forces de collisions. On peut citer Thomasset [6] qui modélise le contact entre les fibres, dans des simulations 2D. Il considère que lorsque deux fibres sont en contact, il existe une force transmise d'une fibre à l'autre par l'intermédiaire du contact. Soit  $F_{crit}$  le module de la force de glissement tangentielle, et  $F_c$  la force tangentielle calculée au contact tel que :

– Si  $|\vec{F}_c| < F_{crit}$  il considère qu'il n'y pas de glissement au contact,

- Si  $|\overrightarrow{F}_c| = F_{crit}$  il a glissement de contact.

Nous avons montré la difficulté d'exprimer les forces appliquées au système fluide-particules. On s'intéresse désormais au traitement numérique appliqué pour modéliser le mouvement et l'orientation de particules.

## 2.2.2 Traitement des écoulements diphasiques

La simulation numérique des systèmes d'écoulement diphasique, fluide solide peut être classée en différentes catégories.

#### 2.2.2.1 Modèle à deux fluides

Il s'agit de l'approche la plus courante, qui consiste à considérer le système diphasé comme un milieu continu, constitué d'un mélange de deux phases, une phase liquide et une phase solide. Chaque phase est gouvernée par des lois de conservation, soit postulées, soit obtenues par des méthodes de prises de moyennes. Cette approche introduit une inconnue supplémentaire, qui décrit les interactions entre chaque phase. La difficulté majeure de cette approche est de modéliser ce terme d'interaction, afin de fermer la description du système.

#### 2.2.2.2 Suivi Lagrangien des particules

Une seconde approche de simulation repose sur un suivi Lagrangien des particules, appelée LNS (Lagrangian Numerical Simulation). Il s'agit d'une approche déterministe. Elle consiste à suivre chaque particule dans son mouvement tout en connaissant l'évolution du champ fluide. Le champ fluide est, en général, calculé à partir d'une approche eulérienne. Le calcul exact des interactions hydrodynamiques entre le fluide et les particules est indispensable pour calculer correctement la trajectoire des fibres dans ce type de modèle.

#### 2.2.2.3 Simulation Numérique directe

L'approche est appelée DNS, Direct Numerical Simulation. Cette approche numérique consiste à résoudre exactement les équations de Stokes pour le fluide, et les équations de Newton pour chaque particule, sans aucun modèle pour la phase fluide. Les méthodes de simulation directe permettent de reproduire la physique intrinsèque des écoulements fluide-solide en tenant compte de l'ensemble des interactions qui apparaissent au cours de l'écoulement. L'intérêt de cette approche est que les champs de vitesse et de pression de la phase fluide sont calculés de façon exacte sans aucune hypothèse simplificatrice. En d'autre termes, l'écoulement du fluide est directement modifié par la présence des particules. Les lignes de courant se déforment, les particules ne sont plus définies par un point et un torseur de forces associé, mais par leurs caractéristiques, c'est à dire le volume et leur forme.

Il existe peu de méthodes numériques dans la littérature permettant de traiter ce type de problème [39], [38], [40]. La difficulté réside dans le bon traitement du couplage entre la phase fluide continue et la phase solide dispersée. Intuitivement, il est possible de construire une procédure de calcul pour découpler le mouvement de chaque phase. On considère d'abord l'écoulement du fluide autour des frontières intérieures constituées par les particules. Puis on évalue le torseur des forces traduisant l'action du fluide sur chaque particule. Enfin, on transporte chaque particule dans le domaine. Le problème de cette procédure provient de la nécessité de calculer exactement l'action du fluide sur chaque

particule afin de calculer sa trajectoire. L'action du fluide est définie localement sur toute la surface de la particule et l'évaluation du champ de pression et du gradient de vitesse à la paroi est déterminante. Pour surmonter cette difficulté, Hu et al [41] ont développé une méthode numérique permettant de calculer les interactions fluide particules. A partir de la connaissance de l'ensemble des champs, ils définissent la force s'appliquant sur la  $i_{ème}$ particule. Cette méthode est à l'origine de la plupart des études de simulation directe, [39]. Johnson et Tezduyar [42] utilisent des techniques numériques performantes pour traiter cette difficulté. Ils déforment le maillage dans le temps pour se ramener au cas fixe, et ils limitent ainsi les oscillations numériques. Ils simulent le réarrangement de sphères en sédimentation. Les deux approches précitées sont liées à la méthode numérique de type éléments finis avec remailage.

Ce type d'approche est généralement utilisé pour traiter des phénomènes de sédimentation de particules sphériques. A notre connaissance, elle n'a pas été adaptée au cas de l'étude de l'injection de polymères renforcés de fibres.

Cette approche est similaire au formalisme que nous avons adopté pour simuler le mouvement d'un ensemble de particules baignant dans un fluide Newtonien incompressible. Notons que la différence réside dans le traitement de la condition de mouvement de corps rigide.

# 2.3 Construction du modèle physique

## 2.3.1 Le logiciel REM3D<sup>®</sup>

Le support informatique de notre travail est le logiciel de simulation REM3D<sup>®</sup> développé au Cemef pour la simulation de l'injection de thermoplastiques [43], [44], [45], [46], [47]. Ce logiciel est basé sur une méthode éléments finis utilisant une formulation mixte vitesse pression P1+/P1. Ce logiciel s'appuie également sur des outils de génération de maillages non structurés (tétraèdres) 2D et 3D. Les méthodes numériques mises en place pour le remplissage tridimensionnelle mono fluide ont été étendues à plusieurs fluides. Ces techniques, développées par David Daboussy [44], peuvent être utilisées pour des fluides de viscosités différentes (injection multi-fluides). Cette version multi-domaine rend possible l'étude de l'orientation d'une ou plusieurs fibres évoluant dans un polymère liquide : il est alors nécessaire que la viscosité de chaque fibre soit beaucoup plus forte que celle de la matrice polymère.

#### 2.3.2 Les hypothèses du modèle

On considère un milieu diphasique formé d'une population de fibres et d'un fluide newtonien. Les fibres sont modélisées par des bâtonnets identiques infiniment rigide, de longueur et de diamètres constants (pas de flexion, pas de rupture). La phase solide n'a pas de loi de comportement élastique : elle est assimilée à un ensemble de particules rigides.

Chaque fibre est définie par un vecteur orientation  $\overrightarrow{p}$ , et par les angles  $\theta$  et  $\phi$ . La méthode consiste à poser que l'orientation d'une fibre évolue comme la direction qui joint deux points matériels appartenant à un même domaine.

Notre domaine d'étude  $\Omega$  est décomposé en deux sous domaines, le sous domaine fluide  $\Omega_f$  et le sous domaine solide  $\Omega_s$  (les fibres), tel que  $\Omega = \Omega_f \cup \Omega_s$ . Le domaine fibre  $\Omega_s$  est constitué de plusieurs particules tel que  $\Omega_s = \bigcup_i^n \Omega_{si}$  pour *n* particules. On note  $\partial \Omega_s$  l'interface entre le domaine fluide et le domaine fibre, et  $\Gamma$  la frontière extérieure du système fluide-fibre.

Nous allons présenter les équations permettant de décrire le système constitué d'une population de particules dans un fluide. La démarche exposée est similaire à l'approche proposée par Glowinski et al [38] mais adaptée au cas de l'injection de produit chargé de fibres.

## 2.3.3 Le domaine fluide

La phase liquide  $\Omega_f$  doit satisfaire, classiquement, les lois de conservation suivantes :

- Conservation de la masse,
- Conservation de la quantité de mouvement.

Nous allons écrire ces lois de conservations en termes de champs de vites se  $\overrightarrow{u}$  et de pression p.
#### 2.3.3.1 Conservation de la masse

Le principe fondamental de la mécanique classique postule que la masse d'un système matériel que l'on suit dans son mouvement reste constante. Ce principe s'exprime par l'équation dite de continuité, qui appliquée à notre cas, s'écrit :

$$\frac{\partial \rho_f}{\partial t} + \nabla \cdot \rho_f \, \overrightarrow{u} = 0 \quad \forall (x, t) \in \Omega_f \tag{2.8}$$

où  $\rho_f$  est la masse volumique du fluide.

Nous faisons alors l'hypothèse d'incompressibilité du polymère. Sa masse volumique reste alors constante en temps et en espace. Cette hypothèse se justifie dans la mesure où le polymère fondu n'est pas soumis à de fortes pressions, et où l'on ne modélise pas le refroidissement de la suspension. La prise en compte de cette dernière étape nécessiterait d'exprimer la thermo-dépendance de la masse volumique du polymère. Ce travail a été effectué par Silva [47] pour la simulation d'un cycle complet d'injection compactage, et pourrait compléter notre modélisation de l'orientation de fibres.

Cette hypothèse permet de simplifier l'équation de continuité (2.8) en :

$$\nabla \cdot \vec{u} = 0 \quad \forall (x,t) \in \Omega_f \tag{2.9}$$

#### 2.3.3.2 Conservation de la quantité de mouvement

Les polymères fondus sont des fluides extrêmement visqueux, ce qui permet de négliger les forces d'inertie et de gravité dans le bilan de la quantité de mouvement. Dans cette étude, nous ne considérerons pas les effets thermiques. Sous ces hypothèses, l'équation de conservation de la quantité de mouvement s'écrit :

$$\vec{\nabla} \cdot \boldsymbol{\sigma} = 0 \quad \forall (x,t) \in \Omega_f \tag{2.10}$$

où  $\sigma$  est le tenseur des contraintes.

Lois de comportement du fluide On se limitera à l'étude du comportent d'un fluide Newtonien. Dans ce cas, le tenseur des contraintes  $\sigma$  s'écrit :

$$\boldsymbol{\sigma} = -p\boldsymbol{I} + 2\eta \,\dot{\boldsymbol{\epsilon}}(\overrightarrow{\boldsymbol{u}}) \tag{2.11}$$

où p est la pression,  $\eta$  la viscosité du fluide et  $\dot{\epsilon}(\vec{u})$  le tenseur des vitesse de déformation défini par

$$\dot{\boldsymbol{\epsilon}}(\overrightarrow{\boldsymbol{u}}) = \frac{1}{2} (\boldsymbol{\nabla} \overrightarrow{\boldsymbol{u}} + \boldsymbol{\nabla} \overrightarrow{\boldsymbol{u}}^T)$$
(2.12)

avec  $\overrightarrow{u}$  la vitesse du fluide.

**Conditions aux bords** Les conditions en contrainte sur  $\partial \Omega_f$  effectuent d'une part le couplage fluide-fibre, et assurent d'autre part le couplage micro-macro en exprimant la contrainte exercée par le milieu extérieur sur le volume de calcul.

On applique ainsi les conditions aux limites suivantes :

$$\vec{u} = \vec{u}_{\Gamma}$$
 sur la frontière extérieure du volume de calcul  $\Gamma$  (2.13)

$$\overrightarrow{u} = \overrightarrow{U_i} + \overrightarrow{\omega_i} \times (x - X_i) \quad \text{sur } \partial \Omega_{si}, \ i = 1, ..., N$$
 (2.14)

où la vitesse du centre  $X_i$  de la particule *i* est noté  $\overrightarrow{U_i}$  et  $\overrightarrow{\omega_i}$  sa vitesse angulaire.

La condition aux limites entre le fluide et la fibre (2.14) signifie simplement que la fibre a un mouvement de corps rigide et que la vitesse en tout point de la particule peut être calculée à partir de la vitesse de son centre et sa vitesse angulaire.

#### 2.3.3.3 Problème complet

Nous venons de formuler les hypothèses nous menant à la construction d'un modèle isotherme de calcul de l'orientation de particules dans un liquide Newtonien. Voici les équations complètes de ce modèle, valides sur le domaine  $\Omega_f$ , formulé en vitesse pression :

$$\begin{cases} \nabla(2 \eta \dot{\boldsymbol{\epsilon}}(\overrightarrow{u})) - \nabla(p\boldsymbol{I}) &= 0\\ \nabla \cdot \overrightarrow{u} &= 0\\ \overrightarrow{u} &= \overrightarrow{u_{\Gamma}} \quad \text{sur la frontiere } \Gamma\\ \overrightarrow{u} &= \overrightarrow{U_{i}} + \overrightarrow{\omega_{i}} \times (x - X_{i}) \quad \text{sur } \partial\Omega_{si}, \ i = 1, ..., N \end{cases}$$

$$(2.15)$$

#### 2.3.4 Le domaine fibre

Une particule solide transportée dans un écoulement subit une action du fluide qui va déterminer sa trajectoire. Nous allons décrire l'ensemble des forces agissant sur la particule et en déduire son mouvement. Par souci de lisibilité, ces équations sont écrites pour une seule particule.

La vitesse du centre de la particule U et sa vitesse angulaire w vérifient les équations fondamentales de la mécanique :

$$\begin{cases}
M\frac{d\vec{U}}{dt} = Mg + \mathbf{F} \\
\frac{d(I\omega)}{dt} = \mathbf{T}
\end{cases}$$
(2.16)

M et I étant la masse et le moment d'inertie de la particule,  $\mathbf{F}$  et  $\mathbf{T}$  la force et le moment dûs à l'action du fluide sur la particule défini par :

$$\mathbf{F} = \int_{\partial \Omega_s} \boldsymbol{\sigma} . \, \vec{\boldsymbol{n}} \, d\Gamma \quad \text{et} \quad \mathbf{T} = \int_{\partial \Omega_s} \left[ \boldsymbol{x} - \boldsymbol{X} \right] \times \left[ \boldsymbol{\sigma} . \, \vec{\boldsymbol{n}} \right] \, d\Gamma \tag{2.17}$$

avec X le centre de la particule et  $\vec{n}$  la normale sortante à la frontière  $\partial \Omega_s$ .

Si on néglige la masse de la fibre, les forces de gravité et les forces d'inertie, la résultantes et le moment des forces hydrodynamiques sur la particule s'annulent. On a alors :

$$\mathbf{F} = \int_{\partial \Omega_s} \boldsymbol{\sigma} . \, \vec{\boldsymbol{n}} \, d\Gamma = 0 \quad \text{et} \quad \mathbf{T} = \int_{\partial \Omega_s} \left[ \mathbf{x} - \mathbf{X} \right] \times \left[ \boldsymbol{\sigma} . \, \vec{\boldsymbol{n}} \right] \, d\Gamma = 0 \tag{2.18}$$

Finalement, la position X du centre de la masse et l'orientation  $\overrightarrow{p}$  de la particule sont données par :

$$\begin{pmatrix} \frac{dX}{dt} = \overrightarrow{u}(X) & \text{avec} \quad X_{t=0} = x_0 \\ \frac{dp}{dt} = \frac{dXP}{dt} = \overrightarrow{u}(P) - \overrightarrow{u}(X) & \text{avec} \quad \overrightarrow{p}_{t=0} = \overrightarrow{p}_0 \end{cases}$$
(2.19)

avec P, l'extrémité du vecteur  $\overrightarrow{p}$  et  $\overrightarrow{u}(P)$  la valeur de la vitesse évaluée au point P. A l'intérieur de la fibre, on a un mouvement de corps rigide. Ce qui signifie que la vitesse est connue en tout point si on connaît la vitesse angulaire et la vitesse de translation du centre de masse de la particule, ou si on connaît la vitesse en deux points quelconques de la particule. Le mouvement de corps rigide s'écrit alors :

$$\vec{U} = \vec{U} + \vec{\omega} \times (\vec{XP}) \quad \forall P \in \Omega_s$$
(2.20)

Dans ces conditions, la fibre ne se déforme pas. Cette condition qui contraint la fibre à avoir un mouvement rigide sur le domaine  $\Omega_s$  peut être remplacée par l'expression suivante :

$$\dot{\boldsymbol{\epsilon}}(\overrightarrow{\boldsymbol{u}}) = 0 \quad \text{sur} \quad \Omega_s \tag{2.21}$$

#### 2.3.5 Discrétisation du système en vitesse-pression

#### 2.3.5.1 Formulation variationnelle

Le domaine fluide : La formulation faible des équations mixtes vitesse-pression (2.15) s'obtient en effectuant le produit scalaire (au sens L<sup>2</sup>) par des fonctions test  $\overrightarrow{u^*}$  et  $p^*$ , tel que  $\overrightarrow{u^*}$  vérifie les conditions de mouvement rigide (2.14) avec V et  $\zeta$ . On définit :

$$\mathcal{H}(\Omega_f) = \left\{ (\overrightarrow{u^*}, V, \zeta) \mid \overrightarrow{u^*} \in H^1(\Omega_f), \ V \ et \ \zeta \in \mathbb{R}^3, \ \overrightarrow{u^*}|_{\partial\Omega_s} = V + \zeta \times (x - X) \ \text{sur} \ \partial\Omega_s \right\}$$

On obtient alors pour l'équation 2.10 :

$$\int_{\Omega_f} (\overrightarrow{\nabla} \cdot \boldsymbol{\sigma}). \ \overrightarrow{u^*} d\Omega = 0$$
(2.22)

ce qui devient en intégrant par partie

$$\int_{\Omega_f} \boldsymbol{\sigma} : \dot{\boldsymbol{\epsilon}}(\overrightarrow{u^*}) \, d\Omega - \int_{\partial\Omega} (\boldsymbol{\sigma}.\overrightarrow{n}).\overrightarrow{u^*} d\Gamma = 0$$
(2.23)

Les termes de bords issus de l'intégration par partie peuvent se décomposer de la sorte :

$$\int_{\partial\Omega} (\boldsymbol{\sigma}.\vec{n}).\vec{u^*} d\Gamma = \int_{\Gamma} (\boldsymbol{\sigma}.\vec{n}).\vec{u^*} d\Gamma + \int_{\partial\Omega_s} (\boldsymbol{\sigma}.\vec{n}).\vec{u^*} d\Gamma$$
(2.24)

En utilisant la contrainte de mouvement rigide définie sur  $\partial \Omega_s$  dans (2.14) et le fait que la résultante et le moment des forces hydrodynamiques sont nuls (2.18), on obtient finalement :

$$\int_{\partial\Omega_s} (\boldsymbol{\sigma}.\,\vec{n}\,).\vec{u^*} d\Gamma = V \int_{\partial\Omega_s} \boldsymbol{\sigma}.\,\vec{u^*} d\Gamma + \zeta \int_{\partial\Omega_s} (\mathbf{x} - \mathbf{X}) \times (\boldsymbol{\sigma}\,.\,\vec{n}\,) d\Gamma = 0$$

$$(2.25)$$

Après application du théorème de la divergence et prise en compte des conditions aux limites, le problème variationnel à résoudre sur le domaine  $\Omega_f$  est le suivant :

Trouver  $(\overrightarrow{u}, p)$  tel que  $\forall (\overrightarrow{u^*}, p^*) \in \mathcal{H}(\Omega_f) \times L^2(\Omega_f)$ 

$$\begin{cases} \int_{\Omega_f} 2 \eta \, \dot{\boldsymbol{\epsilon}}(\overrightarrow{u}) : \dot{\boldsymbol{\epsilon}}(\overrightarrow{u^*}) \, d\Omega & -\int_{\Omega_f} p \, \nabla \cdot \overrightarrow{u^*} &= \int_{\Gamma} (\boldsymbol{\sigma}.\overrightarrow{n}).\overrightarrow{u^*} d\Gamma \\ & -\int_{\Omega_f} p^* \, \nabla \cdot \overrightarrow{u} \, d\Omega &= 0 \end{cases}$$
(2.26)

**Le domaine fibre :** En considérant le mouvement de corps rigide dans le domaine fibre  $\Omega_s$ , on obtient de la même manière que précédemment :

$$\int_{\Omega_s} \dot{\boldsymbol{\epsilon}}(\overrightarrow{u}) : \dot{\boldsymbol{\epsilon}}(\overrightarrow{u^*}) \ d\Omega = 0 \quad \text{pour} \quad \overrightarrow{u^*} \in H^1(\Omega_s)$$
(2.27)

Problème Complet On note :

$$\mathcal{H}(\Omega) = \left\{ (\overrightarrow{u^*}, V, \zeta) \mid \overrightarrow{u^*} \in H^1(\Omega), \ V \ et \ \zeta \in \mathbb{R}^3, \ \overrightarrow{u^*}|_{\Omega} = V + \zeta \times (x - X) \ \text{sur} \ \Omega \right\}$$

Ainsi, la forme variationnelle mixte associée au problème (2.26) et (2.27) est sur tout le domaine  $\Omega$  :

$$\begin{cases} \int_{\Omega} 2\eta \dot{\boldsymbol{\epsilon}}(\overrightarrow{u}) : \dot{\boldsymbol{\epsilon}}(\overrightarrow{u^*}) d\Omega & -\int_{\Omega} p \nabla \cdot \overrightarrow{u^*} d\Omega &= \int_{\Gamma} (\boldsymbol{\sigma}.\overrightarrow{n}).\overrightarrow{u^*} d\Gamma \\ & -\int_{\Omega} p^* \nabla \cdot \overrightarrow{u} \ d\Omega &= 0 \end{cases}$$
(2.28)

Pour résoudre ce problème, nous choisissons de traiter la condition de mouvement solide (2.27) comme une contrainte qui va être imposée à l'aide d'une pénalisation. Finalement, la formulation variationnelle du problème est :

$$\int_{\Omega_{f}} 2\eta \dot{\boldsymbol{\epsilon}}(\overrightarrow{u}) : \dot{\boldsymbol{\epsilon}}(\overrightarrow{u^{*}}) d\Omega + \int_{\Omega_{s}} \alpha (\dot{\boldsymbol{\epsilon}}(\overrightarrow{u}) : \dot{\boldsymbol{\epsilon}}(\overrightarrow{u^{*}})) d\Omega - \int_{\Omega} p \nabla \cdot \overrightarrow{u^{*}} d\Omega = \int_{\partial\Omega} (\boldsymbol{\sigma}.\overrightarrow{n}).\overrightarrow{u^{*}} d\Gamma - \int_{\Omega} p^{*} \nabla \cdot \overrightarrow{u} \ d\Omega = 0$$

$$(2.29)$$

Où  $\alpha$  est un paramètre de pénalisation, qui correspond à une viscosité. Ce coefficient permet d'obtenir des champs de vitesse et de pression nulles dans le domaine solide sous la contrainte forte pour des solutions du problème de Stokes dans la partie fluide.

#### 2.3.5.2 Introduction des fonctions caractéristiques

La formulation faible (2.29) fait intervenir des intégrales définies sur les domaines  $\Omega_f$  et  $\Omega_s$ . Afin de rendre cette formulation effective dans un contexte élément fini, nous introduisons les fonctions caractéristiques.

A chaque domaine est associé une fonction caractéristique  $\mathbb{I}_{\Omega_j}$ ,  $j \in \{f, s\}$  du domaine  $\Omega_j$  définie par :

$$\mathbb{I}_{\Omega_j}(x,t) = \begin{cases} 1 & x \in \Omega_j \\ \\ 0 & x \notin \Omega_j \end{cases}$$
(2.30)

Les fonctions caractéristiques étant complémentaires, seule celle du fluide est représentée. Pour obtenir la fonction caractéristique du solide, il suffit de calculer la différence entre 1 et la fonction caractéristique du fluide.

Ces fonctions permettent de passer d'une intégrale définie sur  $\Omega_f$  ou  $\Omega_s$  à une intégrale définie sur  $\Omega$ .

$$\int_{\Omega_f} (\dots) \ d\Omega = \int_{\Omega} \mathbb{I}_{\Omega_f} \ d\Omega(\dots) \quad et \quad \int_{\Omega_s} (\dots) \ d\Omega = \int_{\Omega} \mathbb{I}_{\Omega_s} \ d\Omega(\dots)$$
(2.31)

En utilisant ces propriétés, nous réécrivons le système (2.29) sous sa forme finale :  $\forall (\overrightarrow{u^*}, p^*) \in \mathcal{V} \times \mathcal{P}$ 

$$\begin{cases} \int_{\Omega} \mathbb{I}_{\Omega_{f}} 2\eta_{f} \dot{\boldsymbol{\epsilon}}(\overrightarrow{\boldsymbol{u}}) : \dot{\boldsymbol{\epsilon}}(\overrightarrow{\boldsymbol{u}^{*}}) d\Omega &+ \int_{\Omega} \mathbb{I}_{\Omega_{s}} 2\eta_{s} (\dot{\boldsymbol{\epsilon}}(\overrightarrow{\boldsymbol{u}}) : \dot{\boldsymbol{\epsilon}}(\overrightarrow{\boldsymbol{u}^{*}})) d\Omega \\ &- \int_{\Omega} p \nabla \cdot \overrightarrow{\boldsymbol{u}^{*}} d\Omega = \int_{\partial\Omega} (\boldsymbol{\sigma}.\overrightarrow{\boldsymbol{n}}) . \overrightarrow{\boldsymbol{u}^{*}} d\Gamma \\ &- \int_{\Omega} p^{*} \nabla \cdot \overrightarrow{\boldsymbol{u}} \ d\Omega = 0 \end{cases}$$
(2.32)

La figure 2.1 illustre le couplage fluide structure associé au problème variationnel (2.32). La figure 2.1 a) représente les iso-valeurs du domaine complémentaire au domaine fibre. On observe dans ce cas que la formulation proposée permet de rendre compte de la perturbation du champ de vitesse par la présence des fibres dans le cas d'un écoulement de Couette (2.1 c) et 2.1 d)). On observe également que la contrainte imposée dans le domaine de solide est bien respectée (2.1 b) où la couleur bleu correspond à la norme de  $\dot{\epsilon}(\vec{u}) = 0$ .



c) Vitesse dans la direction de l'écoulement

d)Vitesse perpendiculaire à la direction d'écoulement

FIG. 2.1 – Mise en évidence du couplage fluide structure associé au problème variationnel

### 2.3.5.3 Discrétisation et résolution numérique

Le sous-système (2.32) est un problème de Stokes étendu si la fonction caractéristique est connue. La résolution de ce système consiste à calculer la solution non plus dans des espaces continus  $\mathcal{V}$  et  $\mathcal{Q}$  mais dans des sous espaces d'approximation de dimension finie  $\mathcal{V}_h$  et  $\mathcal{Q}_h$ . Ces sous espaces d'approximation sont définis sur une triangulation  $\mathcal{T}_h(\Omega)$  du domaine. Le domaine est décomposé en éléments tétraédriques K. Pour chaque élément K, nous associons des fonctions de base (ou fonctions d'interpolation) pour approcher  $(\overrightarrow{u}, p)$ . L'approximation est interne si et seulement si :

$$\begin{aligned}
\mathcal{V}_h \subset \mathcal{V} \\
\mathcal{Q}_h \subset \mathcal{Q}
\end{aligned} (2.33)$$

La résolution du problème de Stokes est réalisée par une méthode éléments finis mixte vitesse/pression, discrétisée à l'aide de l'élément P1+/P1. C'est à dire que la vitesse est représentée sur des éléments tétraèdriques linéaires continus enrichis par une fonction bulle pyramidale et, pour la pression, ce sont des élément tétraédriques linéaires continus qui sont utilisés. Aussi les sous-espaces d'approximation ( $\mathcal{V}_h, \mathcal{Q}_h$ ) s'expriment sous la forme :

$$\begin{aligned}
\mathcal{V}_{h} &= V_{h} \bigoplus B_{h} \\
\text{où } V_{h} &= \{ \overrightarrow{u_{h}} \in (\mathcal{C}^{0}(\Omega))^{3}; \overrightarrow{u_{h}} | K \in (P_{1}(K)^{3}) \\
B_{h} &= \{ \overrightarrow{b_{h}} \in (\mathcal{C}^{0}(\Omega))^{3}; \overrightarrow{b_{h}} = \overrightarrow{0} sur \partial K \text{ et } \overrightarrow{b_{h}} | K_{i} \in (P_{1}(K_{i})^{3}, i = 1, ..4) \\
\mathcal{Q}_{h} &= \{ p_{h} \in \mathcal{C}^{0}; p_{h} | K \in P_{1}(K) \}
\end{aligned}$$

$$(2.34)$$

avec :

–  $(K_i)_{i=1,\dots,4}$  la décomposition du tétraèdre K en quatre sous tétraèdres ayant le centre du tétraèdre pour sommet,

 $-P_1(K)$ : l'espace des polynômes de degré inférieur ou égal à 1 sur l'élément K. Finalement, la formulation faible discrétisée s'énonce :

Trouver  $(\overrightarrow{v_h}, \overrightarrow{b_h}, p_h) \in \mathcal{V}_h \bigoplus \mathcal{B}_h \bigoplus \mathcal{Q}_h$  tel que  $\forall (\overrightarrow{v_h}^*, \overrightarrow{b_h}^*, p_h^*) \in \mathcal{V}_h \bigoplus \mathcal{B}_h \bigoplus \mathcal{Q}_h$ 

$$\int_{\Omega} \mathbb{I}_{\Omega_{f}} 2\eta_{f} \dot{\boldsymbol{\epsilon}}(\overrightarrow{u}) : \dot{\boldsymbol{\epsilon}}(\overrightarrow{u_{h}^{*}}) d\Omega + \int_{\Omega} \mathbb{I}_{\Omega_{s}} 2\eta_{s} (\dot{\boldsymbol{\epsilon}}(\overrightarrow{u}) : \dot{\boldsymbol{\epsilon}}(\overrightarrow{u_{h}^{*}})) d\Omega \\
- \int_{\Omega} p \nabla \cdot \overrightarrow{u_{h}^{*}} d\Omega = \int_{\partial\Omega} (\boldsymbol{\sigma}.\overrightarrow{n}).\overrightarrow{u_{h}^{*}} d\Gamma \\
\int_{\Omega} \mathbb{I}_{\Omega_{f}} 2\eta_{f} \dot{\boldsymbol{\epsilon}}(\overrightarrow{u}) : \dot{\boldsymbol{\epsilon}}(\overrightarrow{b_{h}^{*}}) d\Omega + \int_{\Omega} \mathbb{I}_{\Omega_{s}} 2\eta_{s} (\dot{\boldsymbol{\epsilon}}(\overrightarrow{u}) : \dot{\boldsymbol{\epsilon}}(\overrightarrow{b_{h}^{*}})) d\Omega \\
- \int_{\Omega} p \nabla \cdot \overrightarrow{b_{h}^{*}} d\Omega = \int_{\partial\Omega} (\boldsymbol{\sigma}.\overrightarrow{n}).\overrightarrow{b_{h}^{*}} d\Gamma \\
- \int_{\Omega} p_{h}^{*} \nabla \cdot \overrightarrow{u} \ d\Omega = 0$$
(2.35)

Classiquement, le système d'équation (2.35) s'écrit sous la forme matricielle :

$$\begin{pmatrix} A & 0 & B \\ 0 & A_{bb} & B_b \\ B^T & B_b^T & 0 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \vec{u} \\ \vec{u}_b \\ \vec{p} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} F \\ 0 \\ 0 \end{pmatrix}$$
(2.36)

où

 $-\overrightarrow{u}$  et  $\overrightarrow{u}_b$  sont les vecteurs contenant les composantes des vitesses en chaque sommet des tétraèdres et aux noeuds internes,

- $-\overrightarrow{p}$  est le vecteur des degrés de liberté en pression,
- A est la matrice associée au terme  $\int_{\Omega} \mathbb{I}_{\Omega_f} 2\eta_f \dot{\boldsymbol{\epsilon}}(\overrightarrow{u}) : \dot{\boldsymbol{\epsilon}}(\overrightarrow{u_h^*}) d\Omega$

– B est associé au terme –  $\int_{\Omega} p \nabla \cdot \overrightarrow{u_h^*} d\Omega$ 

– Le vecteur F exprime les conditions aux limites.

Ce système est réduit par une technique de condensation de bulle sur chaque élément. En posant que

$$C^e = B_b^T (A_{bb})^{-1} B_b (2.37)$$

On obtient que :

$$\begin{pmatrix} A^e & B^e \\ B^{Te} & -C^e \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \overrightarrow{u}^e \\ \overrightarrow{p}^e \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} F^e \\ 0 \end{pmatrix}$$
(2.38)

où l'exposant e signifie que le calcul de chaque terme est local, restreint au niveau de l'élément.

## 2.3.6 Suivi de l'évolution des domaines

## 2.3.6.1 Introduction

Dans le système (2.15), le couplage fluide structure est assuré via la condition sur  $\partial \Omega_s$ . Il est donc nécessaire de connaître exactement la position de chaque particule. La bonne description de l'interface est donc capitale. La pertinence et la validité des méthodes numériques utilisées dans la discrétisation et la résolution du système (2.15) dépendent directement de leurs capacités à décrire correctement, au travers du maillage utilisé, les interfaces fluide-particules. Il existe trois grandes catégories de techniques pour gérer les interfaces :

- Les techniques dites Lagrangiennes qui consistent à déplacer les noeuds du maillage avec la vitesse de la matière. Le maillage suit donc l'interface de façon à représenter à chaque instant sa position de manière précise. Ceci permet d'imposer aisément des conditions sur cette interface. Cependant, en raison du déplacement des fibres, des remaillages seraient nécessaire, afin d'une part de garder la précision sur les interfaces et d'autre part d'éviter que le maillage ne dégénère. Enfin, dans le cas de l'orientation de particules en suspension concentrée, les contacts entre fibres seraient difficile à gérer.
- Les techniques dites Eulériennes qui consistent à travailler sur un maillage fixe. L'interface n'est alors pas suivie explicitement. Il est nécessaire d'introduire une méthode pour reconstruire l'emplacement de chaque domaine (dans notre cas le liquide et la ou les fibres). Une méthode consiste à introduire des fonctions caractéristiques de chaque domaine, solution d'une équation de transport (méthode VOF, Volume Of Fluid). La résolution numérique de cette équation entraîne une certaine diffusion numérique sur les positions des interfaces.

Les méthodes Eulériennes nécessitent alors de résoudre les équations du problème dans tout le domaine de calcul (non plus uniquement dans la partie liquide). De plus, la position des interfaces n'étant pas précisément déterminée, il est nécessaire de faire apparaître les conditions aux bords sur ces interfaces de façon naturelle dans la formulation du problème. En contre partie, les méthodes eulériennes permettent de s'affranchir des défauts des méthodes lagrangiennes (perte de précision, remaillage) lors de grands déplacement ou de fortes déformations.

- Une troisième technique consiste à déterminer la nouvelle position des domaines par une approche semi-lagrangienne. Connaissant la position et l'orientation d'une particule, il est alors possible d'imprimer une image de cette particule sur le maillage global à la nouvelle position déterminée à partir du mouvement de fluide. Cette approche permet ainsi de s'affranchir de la diffusion numérique sur la position des interfaces.

Nous allons adopter dans un premier temps une démarche Eulérienne. Nous verrons par la suite que cette approche n'est pas adaptée au suivi de petites particules. Nous présenterons alors l'approche Semi-Lagrangienne utilisée.

#### 2.3.6.2 Approche Eulérienne de type Galerkin discontinue

Cette approche permet de déterminer l'avancée de chaque domaine dans la cavité. Chaque domaine, pris en compte dans la simulation, est alors transporté séparément.

**Principe** Connaissant la vitesse du fluide  $\vec{u}$ , il est nécessaire d'ajouter au système d'équation (2.29), la formulation intégrale de l'équation de transport des fonctions caractéristiques. Le déplacement de chaque sous domaine est décrit par l'équation suivante :

$$\frac{\partial \mathbb{I}_{\Omega_j}}{\partial t} + \overrightarrow{u} . \nabla \mathbb{I}_{\Omega_j} = 0 \quad \forall \ (x, t) \in [0, \Theta]$$
(2.39)

Le vecteur  $\overrightarrow{u}$  est connu de la résolution des équations des Stokes modifiées. La démarche consiste à résoudre les équations du problème de Stokes prolongé en les couplant à l'équation de transport de la fonction caractéristique, équations écrites sous forme variationnelle discretisée. Pour résoudre cette équation, la méthode utilisée est de type Taylor-Galerkin discontinue.

Cette approche eulérienne peut entraîner un effet de diffusion numérique sur les interfaces : au lieu d'avoir uniquement des éléments où les fonctions caractéristiques valent 0 ou 1, nous avons des éléments où ces fonctions prennent des valeurs comprises entre 0 et 1. Afin de limiter cette diffusion, il est possible d'utiliser une technique de r-adaptation implémentée dans REM3D<sup>®</sup> par Bigot [45]. Cette technique consiste à déplacer les noeuds du maillage tout en respectant sa topologie. Contrairement aux approches lagrangiennes ou ALE (Arbitrairement Langrangien Eulerien), le maillage ne se déforme pas suivant le mouvement de la matière : les éléments sont contractés à l'interface liquide- fibres, avant de reprendre leurs tailles et leurs formes initiales une fois que l'interface est passée. Ce déplacement des noeuds se traduit par une vitesse du maillage que nous appellerons vitesse d'adaptation de maillage, noté  $\overrightarrow{v}_a$ . Cette vitesse d'adaptation est prise en compte dans le transport des fonctions caractéristiques en posant  $\overrightarrow{v}_c = \overrightarrow{v} - \overrightarrow{v}_a$ .

**Transport pseudo-2D d'une fibre** Nous étudions à présent l'orientation d'une fibre soumise à un écoulement de cisaillement simple. Bien que la vitesse que nous imposons soit strictement 2D, nous utilisons un domaine 3D pour des raisons techniques : nous travaillons sur un code purement 3D qui ne gère pas le 2D. Pour calculer des écoulements 2D, nous travaillons sur un maillage 3D qui possède une seule couche d'éléments dans l'épaisseur et nous imposons des conditions de symétrie dans la troisième direction. Le volume de calcul est un pavé de dimensions  $2 \times 1 \times 10^{-2}$ . Initialement, on définit un domaine fibre dans le volume de calcul, positionné perpendiculairement à l'écoulement . Nous imposons la vitesse  $\vec{v}$  suivante :

$$\overrightarrow{v_x}(x,y,z) = \dot{\gamma}y \quad \overrightarrow{v_y}(x,y,z) = 0 \quad \overrightarrow{v_z}(x,y,z) = 0 \tag{2.40}$$

Le taux de cisaillement moyen est  $\dot{\gamma} = 1 \ s^1$ . Pour plus de détails sur les conditions d'expérimentations utilisées, on peut se reporter à la section 2.4.1. Nous effectuons 250 incréments de transport du domaine fibre afin que celui-ci effectue un début de rotation. Le pas de temps est :  $\delta t = 0,01$ . La figure 2.2 montre la simulation de l'orientation d'une fibre effectuée sans adaptation de maillage. Nous avons représenté les iso-valeurs du domaine complémentaire à la fibre. Nous constatons que la diffusion des interfaces du domaine fibre est très importante et que la fibre tend à disparaître au cours du temps. Pour pallier cette diffusion, il est possible d'utiliser la r-adaptation de maillage. Cependant, pour être efficace, il est nécessaire d'avoir un maillage très fin afin de bien définir le domaine fibre et les interfaces. Ainsi la diffusion peut être sensiblement réduite. Il apparaît cependant très clairement que l'approche multi-domaines classique implémentée dans REM3D<sup>®</sup> est insuffisante pour calculer et suivre l'évolution d'une population de fibres en mouvement. Pour cela, nous adoptons une approche nouvelle, qui consiste à suivre le déplacement des fibres en utilisant une méthode particulaire.



FIG. 2.2 – Transport d'une fibre sans adaptation de maillage -Fonction caractéristique du fluide et son complément-

#### 2.3.6.3 Approche Semi lagrangienne de type Euler explicite

L'approche standard multi-domaines qui permet de suivre l'évolution des domaines dans le temps entraîne un effet de diffusion numérique sur les interfaces. Pour y remédier, nous proposons une approche de type semi-langragienne. Connaissant la position du centre de masse et le vecteur orientation de chaque particule, il est alors possible de mettre à jour les fonctions caractéristiques de chaque domaine. Pour cela, nous utilisons un outil qui permet de générer une fonction caractéristique sur un maillage à partir d'un maillage du sous domaine. Il s'agit en fait de déterminer l'intersection entre les deux domaines, cette intersection étant matérialisée par la fonction caractéristique. L'approche utilisée s'inspire des techniques utilisées en analyse d'images.

L'interpolation  $P^0$  de la fonction caractéristique d'un sous domaine j correspond à la donnée du taux de remplissage de chaque élément du maillage par j. Ainsi, on définit :

$$\mathbb{I}^{h}_{\Omega_{j}}|K = \mathbb{I}^{e} = \frac{|K| \cap |\Omega_{s}|}{|K|}$$

$$(2.41)$$

Les erreurs exactes d'interpolation sont :

$$\|(\mathbb{I}^h_{\Omega_j} - \mathbb{I}_{\Omega_j})\|_{L_1(\Omega)} = 0 \tag{2.42}$$

$$\|\mathbb{I}^{h}_{\Omega_{j}} - \mathbb{I}_{\Omega_{j}}\|_{L_{2}(\Omega)} = \sum_{K} \left( (1 - \mathbb{I}^{e})\mathbb{I}^{e}|K| \right)^{1/2}$$

$$(2.43)$$

Ainsi, l'interpolation  $P^0$  discontinue retenue est conservative (équation 2.42) et faiblement diffusive lorsque les éléments partiellement remplis sont petits (équation 2.43). On pourra se réferrer à Gruau [48], à Bigot [45] pour la démonstration des propriétés de cette interpolation.

En pratique, la fonction  $\mathbb{I}^e$  est calculée par une approximation du taux de remplissage de chaque élément. Pour calculer le taux de remplissage d'un élément K, nous échantillonnons K en un certain nombre de points de K. Puis nons comptons le nombre de points qui appartiennet à j. La figure 2.3 illustre cette méthode.



FIG. 2.3 – Échantillonnage et notations pour l'interpolation  $P^0$  calculée sur l'élément K

Le taux de remplissage approché de K est alors :

$$\frac{|K \cap j|}{|K|} \simeq \frac{nombre\ de\ points\ dans\ j}{nombre\ de\ points\ total}$$
(2.44)

**Principe en images** Nous proposons une méthode de génération de fonction caractéristique utilisant des voxels en 3D (ou des pixels en 2D). Les différentes étapes de la procédure sont résumées en image sur la figure 2.4. Par convention, on appellera domaine maître le domaine de fond, celui sur lequel est défini la fonction caractéristique du sous domaine (la fibre ou le domaine esclave). On associe au domaine maître une carte de pixels (ou voxels en 3D); cette carte de pixels couvrant l'ensemble du domaine. La résolution de la pixellisation est modifiable par l'utilisateur : plus la résolution est importante, plus l'intersection sera déterminée de façon précise.



Génération de la fonction caractéristique

#### FIG. 2.4 – Méthode de génération des fonctions caractéristiques

Cette carte de pixels est ensuite coloriée à partir du maillage esclave que l'on immerge dans la carte. Pour cela, on balaie chaque élément de ce maillage suivant une grille dont le pas est égal au pas de résolution de la carte de pixels. A chaque noeud de cette grille, on teste si les coordonnées sont incluses dans le domaine défini par la carte de pixels et si oui le pixel est colorié. Reste ensuite à parcourir les éléments du maillage maître. Chaque élément est balayé de la même façon que le maillage esclave. Le rapport entre le nombre de pixels coloriés et le nombre de pixels couvrant l'élément donne la valeur de la fonction caractéristique sur cet élément. L'algorithme utilisé est détaillé en Annexe 1.

**Application** Reprenons l'exemple de l'orientation d'une fibre dans un écoulement de cisaillement simple. Le transport s'effectue par la méthode particulaire développée précédemment. La figure 2.5 présente les résultats de la simulation. On observe dans ce cas que le volume occupé par la fibre reste constant au cours du temps. Nous disposons maintenant d'un outil permettant le suivi de petites particules en mouvement.



FIG. 2.5 – Transport d'une fibre avec la méthode particulaire -Fonction caractéristique du fluide et son complément-

## 2.3.7 Algorithme général

La figure 2.6 résume les différentes étapes à effectuer pour simuler l'orientation d'une population de fibres. Pour transporter une particule, nous allons procéder de la façon



FIG. 2.6 – Principe du calcul d'orientation de fibres

suivante :

- 1) A l'instant initial, on définit la géométrie et la concentration de fibres. On définit également l'orientation initiale de la population de fibres dans le volume élémentaire représentatif. L'orientation des particules peut être soit aléatoire, soit orientée dans une direction privilégiée.
- 2) On calcule les champs de vitesse et de pression en résolvant les équations de Stokes pénalisées par une approche multi-domaines.
- 3) A partir de la vitesse de la particule et de sa position, nous pouvons calculer la nouvelle position et orientation de la particule. Le transport de chaque particule est résolu de façon explicite.
- 4) La nouvelle position de la particule va être traduite physiquement par la mise à jour

de la fonction caractéristique du domaine fibre.

Cette procédure est effectuée pour chaque particule et renouvelée à chaque pas de temps.

## 2.4 Etudes et validations du modèle

Avant d'étudier des écoulements complexes comprenant un nombre de particules élevé, nous allons valider notre méthode par rapport à des études de références.

### 2.4.1 Conditions d'expérimentations

Les tests ont été réalisés sur des géométries dans lesquelles l'écoulement est bidimensionnel et tridimensionnel. Dans le cas des écoulements bidimensionnels, l'écoulement s'effectue sur un maillage 3D dans une tranche entre deux plans de symétrie. Dans ce cas, un parallélépipède rectangle (Figure 2.7 a), sur lequel les deux grandes surfaces sont considérées comme des plans de symétrie, permet d'annuler l'une des composantes de vitesse. Sur une autre face de cette géométrie, on impose une contrainte. La face opposée est considérée comme contact collant, on obtient ainsi un écoulement de cisaillement simple. Si on impose une contrainte négative, on obtient un écoulement de cisaillement de type couette.



FIG. 2.7 – Géométrie et conditions aux limites

Les deux dernières faces sont les faces d'entrée et de sortie sur lesquelles on applique des conditions de symétrie périodique. Lorsqu'une particule sort de la cavité, elle est toute de suite réintroduite en entrée de la cavité à la même hauteur et à la même orientation. Ces conditions périodiques permettent d'augmenter les longueurs de déplacements tout en conservant un maillage de taille raisonnable. La figure (Figure 2.8) donne un exemple 3D d'écoulement de cisaillement simple périodique.

La cavité est totalement remplie par un fluide newtonien contenant une fibre rigide. Les mêmes conditions aux limites sont appliquées pour le cas 3D (Figure 2.7 b). Les calculs présentés dans cette section ont été réalisés avec :

– pour le cas 2D, la cavité est un parallélépipède de dimension  $2 \times 1 \times 0.01$ . Le maillage, non structuré anisotrope, contient 139250 éléments et 28340 noeuds.



FIG. 2.8 – Conditions périodiques en entrée et sortie

– pour le cas 3D, la cavité est un cube de dimension 1, le maillage est structuré et contient 403200 éléments et 68921 nœuds.

Pour tous les calculs, le pas de temps est de 0.01 s, le rapport de forme  $\beta$  (rapport de la longueur de la particule sur son diamètre) est égal à 10 (sauf mention contraire), la valeur de la pénalisation assurant le mouvement rigide est 1000 Pa.s. Le taux de cisaillement  $\dot{\gamma}$  resultant est de l'ordre de 1  $s^{-1}$ . La viscosité du fluide est de 1 Pa.s

Enfin, les calculs ont été réalisés sur une station de PC de marque DELL équipé d'un processeur Intel Pentium IV cadencé à 3 GHz avec une mémoire vive dédiée de 512 Mo.

## 2.4.2 Validations

On se propose de valider notre approche en confrontant l'orientation d'une particule aux prédictions de Jeffery, valables dans le cas de suspension diluée.

## 2.4.2.1 Aspect théorique : Mouvement d'une particule

Jeffery [49] fut un des pionniers en élaborant un modèle d'orientation de particules en suspension dans un écoulement. Il propose une équation d'évolution de l'orientation dans le cas des solutions diluées de particules ellipsoïdales rigides en suspension dans un fluide newtonien.

Les hypothèses sont les suivantes :

- Le centre de l'ellipsoïde se déplace à la vitesse du fluide,
- L'écoulement est stationnaire,
- Les tenseurs des vitesses de déformation et des vitesses de rotation sont constants à une distance de la particule grande devant ses dimensions,
- Aucune interaction avec un ellipsoïde voisin ou avec une paroi n'est envisagée,

- Le fluide est supposé Newtonien,
- Pour résoudre les équations de Stokes, Jeffery pose que le contact entre l'ellipsoïde et le fluide est collant,
- Il pose que le champ de vitesse est connu à une distance du centre de la fibre grande devant ses dimensions.

La résolution des équations de Stokes en coordonnées ellipsoïdales donne le champ de vitesse autour de la particule. Jeffery en déduit le champ de contrainte autour puis à la surface de l'ellipsoïde. En écrivant que le couple résultant appliqué à l'ellipsoïde est nul, Jeffery calcule son mouvement de rotation dans un repère ayant pour axes, les axes principaux de l'ellipsoïde. La solution pour la rotation de la particule s'écrit en fonction du vecteur orientation  $\vec{p}$  et prend la forme suivante :

$$\frac{D\overrightarrow{p}}{Dt} = \mathbf{\Omega}\,\overrightarrow{p} + \lambda \Big(\dot{\boldsymbol{\epsilon}}(\overrightarrow{u})\,\overrightarrow{p} - (\dot{\boldsymbol{\epsilon}}(\overrightarrow{u}):\,\overrightarrow{p}\otimes\overrightarrow{p})\,\overrightarrow{p}\Big)$$
(2.45)

avec  $\dot{\boldsymbol{\epsilon}}(\overrightarrow{u})$  et  $\boldsymbol{\Omega}$  qui sont respectivement les tenseurs des taux de déformation et des taux de rotation. Le scalaire  $\lambda$  est une constante qui dépend du facteur de forme  $\beta$  de la fibre. Cette constante s'écrit :  $\lambda = \frac{\beta^2 - 1}{\beta^2 + 1}$ 

En utilisant la théorie des corps élancés, Burgers [50] aboutit à la même équation que Jeffery dans le cas particulier où  $\lambda = 1$ . Avec la théorie des fluides isotropes transverses d'Ericksen [51], on retrouve la même équation pour décrire l'orientation de la particule. Par ailleurs, l'équation de Jeffery peut être étendue dans le cas où les particules ne sont pas des ellipsoïdes. En effet, Bretherton [52] a montré que l'évolution de l'orientation des particules axisymétriques peut être décrite par l'équation de Jeffery, en choisissant un facteur de forme équivalent  $\beta_e$ .

Application à un écoulement de cisaillement simple Dans ce cas, la résolution de l'équation de Jeffery permet d'obtenir l'évolution des angles  $\theta$  et  $\phi$  qui sont définis sur la figure 2.9, en fonction du temps :

$$\tan \phi = \frac{1}{\beta} \left( \tan C_{\phi} - \frac{\beta}{\beta^2 + 1} \dot{\gamma} t \right)$$
(2.46)

 $\operatorname{et}$ 

$$\tan \theta = \frac{C_{\theta}}{\sqrt{\cos^2 \phi + \beta^2 \sin^2 \phi}} \tag{2.47}$$

avec

$$C_{\phi} = \arctan\left(\beta \ \tan \phi_0\right) \quad et \quad C_{\theta} = \tan \theta_0 \ \sqrt{\beta^2 \sin^2 \phi_0 + \cos^2 \phi_0} \tag{2.48}$$

 $\theta_0$  et  $\phi_0$  sont les valeurs de  $\theta$  et  $\phi$  à l'instant initial et  $C_{\theta}$  est appelé la constante d'orbite.



FIG. 2.9 – Définition des angles et du vecteur caractérisant l'orientation d'une fibre

La résolution de l'équation de Jeffery montre que l'orientation d'une particule dans un fluide newtonien est périodique. La période T de ce mouvement dépend du taux de cisaillement  $\dot{\gamma}$  et du facteur de forme  $\beta$ . Le mouvement d'une fibre a pour période :

$$T = \frac{2\pi}{\dot{\gamma}} (\beta + \frac{1}{\beta}) \tag{2.49}$$

### 2.4.2.2 Résultats numériques

Les conditions du calcul respectent les hypothèses de Jeffery. Une particule axisymétrique est placée au centre d'une cavité remplie d'un fluide Newtonien. Afin de négliger les effets de parois, on place le centre de masse de la fibre à une distance des parois supérieure à cinq fois la longueur de la particule. Dans ce cas, des études expérimentales ([53],[54]) ont montré que le mouvement périodique de fibres soumises à un écoulement de cisaillement simple n'est pas affecté par la présence des parois si la position du centre de la particule se situe à une distance L très supérieure à longueur de la fibre. Ces observations concluent que l'équation de Jeffery décrit bien le mouvement d'une particule sauf en présence d'une paroi.

On étudie ici l'orientation d'une particule, initialement positionnée perpendiculairement à l'écoulement. Les figures 2.10 et 2.11 présentent l'évolution des angles  $\phi$  et  $\theta$  en degré calculée avec le modèle et l'évolution des angles déduite des équations de Jeffery (2.46) et (2.47). Dans le cas 2D, l'orientation d'une particule est décrite uniquement par l'angle  $\phi$ .



FIG. 2.10 – Confrontation du modèle aux prédictions de Jeffery en 2D, la particule étant initialement perpendiculaire à l'écoulement,  $\beta_e = 7.2$ 

La particule est animée d'un mouvement périodique lorsqu'elle est soumise à un écoulement de cisaillement simple. L'évolution des angles suit les prédictions de Jeffery. Notre modèle est donc validé par la théorie de Jeffery.



FIG. 2.11 – Confrontation du modèle aux prédictions de Jeffery en 3D, la particule est initialement perpendiculaire à l'écoulement,  $\beta_e = 7.2$ 

## 2.4.3 Mouvement de corps rigide

Chaque fibre est animée d'un mouvement rigide. Cette condition de mouvement rigide est imposée à l'aide d'une pénalisation. Il est alors intéressant de vérifier que cette condition est bien satisfaite dans le domaine fibre, à savoir  $\dot{\boldsymbol{\epsilon}}(\vec{u}) = 0$ . Notons  $\alpha$  la valeur de la pénalisation. Pour cela, on fait varier la valeur de  $\alpha$  de 1 à 10000.

On remarque que lorsque la valeur de la pénalisation atteint 100 (Tableau : 2.1), la condition de mouvement rigide est satisfaite.

Valeur de la pénalisation	$  \dot{\boldsymbol{\epsilon}}(\overrightarrow{u})  $
1	0.99
10	0.09
100	$3.110^{-2}$
1000	$3.510^{-4}$
10000	$3.510^{-5}$

TAB. 2.1 – Influence de la pénalisation sur la condition de mouvement rigide

On s'intéresse à l'incidence de la pénalisation sur l'orientation initialement positionnée perpendiculairement à l'écoulement. On observe sur la figure 2.12 que :

- lorsque la valeur de la pénalisation est égale à 1, la fibre se comporte comme le fluide dans lequel elle est immergée. Elle débute son mouvement de rotation mais reste alignée dans la direction de l'écoulement.
- lorsque la valeur de la pénalisation est comprise entre 10 et 10000, l'orientation de la particule est sensiblement identique. En d'autres termes, si la condition de corps rigide est satisfaite, il n'y a pas d'incidence de la pénalisation sur l'orientation de la particule.

## 2.4.4 Mise en évidence des interactions hydrodynamiques

Le principal intérêt de notre approche réside dans le fait qu'il n'est pas nécessaire d'exprimer de manière directe l'ensemble des forces hydrodynamiques. Les forces hydrodynamiques exercées à la surface de la particule par le fluide en mouvement induisent un mouvement de la particule dans le fluide.

D'autre part, la présence de la particule dans l'écoulement apporte une perturbation à l'écoulement. Cette perturbation apportée par la particule à l'écoulement est à l'origine des interactions entre particules transmises par le fluide, appelées interactions hydrodynamiques.

Nous allons présenter, dans cette section, quelques exemples 2D, qui mettent en évidence ces interactions hydrodynamiques.



FIG. 2.12 – Influence de la pénalisation sur l'orientation d'une fibre initialement perpendiculaire à l'écoulement

### 2.4.4.1 Sphères soumises à un écoulement de Couette

On s'intéresse à l'étude de deux sphères rigides soumises à un écoulement de Couette. Une première sphère est placée au centre de la cavité, à la position (1; 0.5). Une autre sphère est positionnée en (0.5; 0.6).

Dans un premier temps, on vérifie que la particule placée au centre de la cavité perturbe bien l'écoulement (Figure 2.13). On observe que la vitesse dans la direction d'écoulement a des iso-valeurs (Figure 2.13 b) plus espacées au niveau de la position de la particule. La perturbation est localisée autour de la particule. La figure (2.13 d)) montre le champ de pression induit par la présence de la sphère seule.

La figure 2.16 et le graphique 2.15 décrivent le mouvement des deux sphères soumises à l'écoulement de cisaillement de Couette. Du fait de la perturbation du champ de vitesse, les deux sphères ne se heurtent pas mais s'évitent. Le mouvement de la particule initialement au centre de la cavité est modifié. La particule n'est plus animée d'un mouvement de rotation sur elle même mais se déplace vers les abscisses négatives.



FIG. 2.13 – Mise en évidence de la perturbation de l'écoulement par la présence d'une particule sphérique



FIG. 2.14 – Interactions hydrodynamiques entre deux sphères soumises à un écoulement de Couette : résultats de simulation



FIG. 2.15 – Mise en évidence des interactions hydrodynamiques entre deux sphères soumises à un écoulement de Couette : évolution de la position des centres de gravité des particules

#### 2.4.4.2 Fibres soumises à un écoulement de cisaillement simple

Le même type calcul a été réalisé avec des fibres soumises à un écoulement de cisaillement simple. Une première fibre est placée à l'entrée de la cavité perpendiculairement à l'écoulement (position  $(0.1; 0.5); \phi = 90^{\circ}$ ). Une autre fibre est placée dans la direction de l'écoulement, à la position (0.3; 0.5) avec un angle égal à 0.

On observe comme précédemment que la présence des particules perturbe le champ de vitesse qui modifie leurs trajectoires.

En effet, une des extrémités de la fibre alignée dans la direction de l'écoulement remonte afin d'éviter l'autre particule animée d'un mouvement périodique. Enfin, les particules finissent parallèles et réalisent ensemble leurs mouvements périodiques.



FIG. 2.16 – Interactions hydrodynamiques entre deux fibres soumises à un écoulement de Cisaillement simple : résultats de simulation

## 2.4.5 Etude de l'influence des parois sur l'orientation

On se propose ici d'étudier l'influence d'une paroi sur l'orientation d'une particule placée initialement à une distance L de la paroi comme l'indique la figure 2.17. Les résultats de l'étude sont présentés sous forme de graphiques, présentant l'évolution de l'angle  $\phi$  en degré en fonction du rapport  $\frac{L}{d}$  dans le cas où la fibre est initialement orientée dans la direction d'écoulement, et en fonction du rapport  $\frac{L}{l}$  dans le cas où la fibre est initialement orientée perpendiculairement à l'écoulement.

### 2.4.5.1 Fibre initialement parallèle

Les résultats les plus intéressants concernent le cas où les fibres sont orientées initialement dans la direction de l'écoulement. On fait varier la position du centre de masse telle que le rapport  $\frac{L}{d}$  soit de 2, 3, 4, 8, 10. On remarque que :

- la présence de la paroi retarde le mouvement périodique des fibres.
- lorsque le centre de masse de la particule est très proche de la paroi (distance L=0.05 et  $\frac{L}{d}=2$ ) la fibre reste alignée dans la direction d'écoulement. La paroi a donc un



FIG. 2.17 – Représentation schématique de la position initiale de la fibre par rapport à une paroi de la cavité

effet stabilisateur sur l'orientation des fibres puisque la particule n'est plus animée d'un mouvement périodique.

– lorsque  $\frac{L}{d} = 3$ , la particule entre en contact avec la paroi puis elle est éjectée à une distance de l'ordre de la demi longueur de la particule (Figure 2.20). Ce résultat est confirmé par Stover et Cohen [53] qui observent le mouvement de fibres parallèles à une paroi dans le cas d'un écoulement de Poiseuille. Ils utilisent un outillage transparent équipé de deux caméras qui leur permettent de suivre le mouvement des particules en vue de dessus et dans l'épaisseur de la cavité. Le fluide est newtonien, il s'agit d'un mélange de sirop de maïs et d'eau. Ils observent que le mouvement périodique des fibres n'est pas affecté par la présence de la paroi si la position du centre de la particule se situe à une distance L supérieure à la longueur de la fibre. Dans le cas contraire, lorsqu'il y a contact, la fibre est propulsée à une distance environ égale à la demi longueur de la fibre. Ensuite le mouvement redevient périodique. Le mouvement de la particule peut être assimilé, dans ce cas, à un mouvement de "saut de perche" comme illustré sur la figure 2.18.



FIG. 2.18 – Représentation schématique de l'influence de la paroi sur le mouvement de rotation d'une fibre rigide

Le dernier point intéressant réside dans le fait que lorsque la particule entre en contact avec la paroi, elle est expulsée. Il y a donc toujours la présence d'une couche de fluide à proximité de la paroi. Des calculs supplémentaires pourraient confirmer ces résultats. D'autre part, ce type de calcul pourrait être un moyen de vérifier les hypothèses de couches diluées au niveau des parois des capillaires, souvent évoquées en rhéologie, pour expliquer le fait que la concentration de fibres a peu d'effet sur la viscosité.



FIG. 2.19 – Effet d'une paroi sur l'évolution de l'angle  $\phi$  dans le cas d'une fibre initialement parallèle à l'écoulement

## 2.4.5.2 Fibre initialement perpendiculaire

On s'intéresse ici au cas où les fibres sont initialement positionnées perpendiculairement à la paroi. Les positions étudiées concernent les rapports  $\frac{L}{T}$ : 0.8, 1.2, 1.4 et 2.

On observe sur la Figure 2.21 que la présence de la paroi diminue la vitesse angulaire des particules.

Ces résultats sont en contradiction avec les observations effectuées par Burget et Advani [54]. Ils ont conduit le même type d'expérimentation dans le cas d'un écoulement de cisaillement simple. Ils utilisent des fibres avec des rapports de forme équivalent  $\beta_e = 27, 5, 43, 3$  et 50, 5. Ils observent que la fibre est animée d'un mouvement de rotation plus rapide que lorsqu'elle est initialement parallèle à l'écoulement. Ils modélisent l'augmentation de la vitesse angulaire de la fibre en définissant un taux de cisaillement effectif supérieur au taux de cisaillement réel. Quand la fibre n'est pas alignée dans la direction d'écoulement, l'équation de Jeffery résolue avec le taux de cisaillement effectif décrit bien le mouvement de la particule. Cependant, lorsque la fibre est alignée avec l'écoulement, son mouvement n'est plus périodique. La paroi apparaît avoir un effet stabilisateur sur le mouvement de la fibre. Des résultats similaires sont présentés dans l'article de Moses et al. [55].



FIG. 2.20 – Interaction d'une fibre initialement parallèle à la paroi $\frac{L}{d}=3$ 

# 2.5 Applications

On se propose dans cette section de présenter quelques exemples d'application du modèle.



FIG. 2.21 – Effet d'une paroi sur l'évolution de l'angle  $\phi$  dans le cas d'une fibre initialement perpendiculaire à l'écoulement

## 2.5.1 Application à une population de fibres

Nous disposons désormais d'un outil nous permettant de simuler de façon réaliste l'orientation d'une population de fibres. Les caractéristiques intrinsèques de la suspension sont définies à l'instant initial à savoir : rapport de forme  $\beta$ , orientation et concentration volumique.

## 2.5.1.1 Cas 2D

On présente ici des résultats d'un calcul bidimensionnel, aux concentration de 8% et 15% en volume. La figure 2.22 montre l'orientation dans le temps des fibres dans la direction d'écoulement.



FIG. 2.22 – Exemple d'un calcul 2D : Suspension de fibre en concentration 8% (à gauche) et 15% (à droite),  $\beta = 10$ , Écoulement Newtonien de cisaillement simple

## 2.5.1.2 Cas 3D

Le même type de calcul peut être réalisé en 3D. La suspension étudiée est une suspension Newtonienne contenant des fibres rigides 3D de rapport de forme  $\beta = 12$ , en regime de concentration semi-concentré (7,7% en volume). La figure 2.23 montre que les fibres s'orientent progressivement dans la direction d'écoulement sous l'influence du cisaillement simple.



t = 45 s

FIG. 2.23 – Exemple d'un calcul 3D: Suspension de fibre en concentration 7,7% en volume,  $\beta = 12$ , Écoulement Newtonien de cisaillement simple

## 2.5.2 Calcul de l'orientation dans des zones complexes

L'évolution de l'orientation des fibres a été observée expérimentalement par plusieurs auteurs dans diverses géométries d'écoulement.

## 2.5.2.1 Cas d'écoulement divergent

La figure 2.24 présente l'orientation de quelques fibres, initialement orientées dans la direction d'écoulement, dans une géométrie divergente. Les résultats numériques sont en accord avec les observations expérimentales effectuées par Vincent et Agassant [14] qui observent que les fibres s'orientent perpendiculairement à l'écoulement au centre de la géométrie et parallèlement le long des parois.



FIG. 2.24 – Exemple d'un calcul 2D : Calcul de l'orientation de fibres à la sortie d'une géométrie divergente

## 2.5.2.2 Cas d'écoulement convergent

La figure 2.25 présente l'orientation de quelques fibres, initialement orientées dans la direction d'écoulement, à la sortie d'une géométrie convergente. On observe que les fibres s'orientent rapidement dans la direction de l'écoulement en passant dans le convergent. Ces résultats sont en accord avec la littérature.

## 2.6 Limitations du modèle

Les exemples précédents ont permis de mettre en évidence la limitation de l'approche proposée. En effet, pour prendre en compte les interactions hydrodynamiques, il est nécessaire de définir chaque fibres avec une rangée de 3 ou 4 éléments, et d'avoir toujours une couche diluée de fluide entre les particules. Ceci implique l'utilisation de maillage très raffinée et requiert donc des ressources informatiques importante tant au niveau CPU (1 à 2 semaines de calcul) qu'au niveau de la mémoire vive.



FIG. 2.25 – Exemple d'un calcul 2D : Calcul de l'orientation de fibres à la sortie d'une géométrie convergente

D'autre part, lorsque la concentration est très importante, nous avons remarqué la formation d'amas de fibres, très marqués dans les simulations 2D. La formation de ces amas peut être réduite en réalisant des simulations tridimensionnelles. En effet dans ce cas, chaque particule dispose d'un degré de liberté supplémentaire. Pour pallier ces problèmes, il serait nécessaire d'exprimer des forces de répulsions entre les particules afin de mieux gérer les contacts entre particules.

## 2.7 Conclusions du chapitre 2

Dans ce chapitre, nous avons décrit la méthode numérique de simulation directe mise en place pour simuler la dynamique de l'orientation de fibres rigides en suspension. Cette approche permet de prendre en compte l'ensemble des interactions qui peuvent apparaître au cours de l'écoulement. La principale originalité de ce type d'approche est qu'il n'est pas nécessaire d'exprimer de manière explicite, l'ensemble des forces et interactions hydrodynamiques régissant le système.

Développé dans le cadre du logiciel REM3D<sup>®</sup>, notre approche repose sur la formulation multi-domaine, implementée par D. Daboussy [44]. La condition de mouvement rigide est obtenue en pénalisant les équations de Stokes. Cette approche permet ainsi de perturber directement les champs de vitesse et de pression d'un fluide en présence de particules rigides. La deuxième étape du calcul consiste à déplacer les particules dans la cavité. Nous proposons une méthode particulaire permettant un déplacement exact des particules. Cette méthode permet de s'affranchir des effets de diffusion numérique, sur les interfaces des domaines fibres, rencontrés lors de la résolution d'une équation de transport. Pour cela, on suit le mouvement du centre de masse de la particule ainsi que ses extrémités en supposant que la fibre a une longueur constante. Enfin, la génération des domaines s'inspire d'une technique d'analyse d'images. Cette approche consiste à imprimer le maillage transporté des particules dans le maillage "fixe" de la cavité.

Nous avons validé notre approche dans le cas d'un écoulement de cisaillement, en confrontant le mouvement d'une particule aux prédictionx de Jeffery. Le calcul permet de rendre compte du mouvement périodique d'une fibre en cisaillement simple.

Le modèle permet de calculer explicitement les interactions fluide-particules, particules-particule

Le modèle permet ainsi de rendre compte des interactions entre particules. Nous avons proposé un exemple de deux sphères soumises à un écoulement de Couette. Le calcul montre que les deux particules interagissent entre elles sans se percuter. La présence d'une couche de fluide entre les particules permet de rendre compte des interactions hydrodynamiques. D'autre part, nous avons montré que les interactions avec la paroi était bien capturées et validées par des expérimentations issues de la littérature [53]. On observe qu'une fibre initialement orientée parallèlement à l'écoulement est animée d'un mouvement périodique, retardé par rapport à la période de Jeffery, et respectant les hypothèses du modèle. Lorsque la particule entre en contact avec la paroi, elle est écartée. Enfin, lorsque la particule est initialement orientée perpendiculairement à la paroi, on observe que la présence de la paroi diminue la vitesse angulaire de la particule.

Ce modèle de simulation directe permet le calcul du mouvement d'une population de fibres soumise à un écoulement de cisaillement simple. C'est dans ce contexte que le modèle sera utilisé dans les deux chapitres suivants, afin d'étudier l'orientation, et le comportement rhéologique d'une suspension de fibres rigides.

Cependant, c'est également dans ce contexte que nous avons montré une limite de l'approche. On observe la formation d'amas de fibres lorsque la suspension est très concentrée

(ce qui se caractérise par l'absence d'une couche de fluide entre les fibres "amassées"). Une amélioration possible du modèle consisterait ainsi à exprimer une force de collision entre les particules.

De plus, le modèle peut être aussi utilisé pour étudier l'orientation des fibres dans des zones complexes (coins, sorties de divergent ou de convergent), et ainsi permettre de compléter les mesures expérimentales, difficiles à mettre en oeuvre dans ce type de zones.

Enfin, comme il a été souligné dans ce chapitre, le modèle de simulation directe reste coûteux en temps de calcul. La structuration de la librairie de programmation du logiciel REM3D<sup>®</sup> étant axée vers le calcul parallèle, le passage du modèle de simulation directe vers ce type d'architecture semble envisageable à court terme.

# Chapitre 3

# Application du modèle à l'étude numérique d'une suspension de fibres

C<sup>E</sup> troisième chapitre est consacré à l'étude numérique d'une population de fibres. Nous allons utiliser la simulation directe pour calculer, dans un volume donné, l'orientation d'une population de fibres soumise à un écoulement Newtonien de cisaillement simple. La configuration géométrique étudiée est telle que les interactions, décrites au chapitre 2 (interactions fluide-fibres, interaction fibres-paroi, interactions fibres-fibres), se combinent pour donner le mouvement global de la suspension. Cette méthode nous permet de faire varier le nombre de fibres dans le volume choisi et de balayer ainsi une plage importante de régimes de concentration. D'autre part, cette approche va nous permettre d'étudier certaines grandeurs nécessaires à la résolution et à la fermeture de l'équation d'évolution issue du modèle statistique d'orientation de Folgar et Tucker [56] : le coefficient d'interaction  $C_i$  entre fibres et la relation de fermeture.

Dans une première partie, nous présenterons les modèles qui permettent de décrire l'évolution de l'état d'orientation des fibres. Tout d'abord, il nous paraît indispensable de différencier les régimes de concentration. En effet cette notion est importante dans la mesure où elle permet de fixer le domaine de validité des modèles d'orientation. On s'intéressera ensuite à l'étude du coefficient d'interaction  $C_i$  introduit par Folgar et Tucker [56] pour décrire les interactions entre particules ainsi qu'aux expressions des approximations de fermeture nécessaires à la résolution de cette équation d'évolution. Dans une deuxième section, nous présenterons les conditions d'expérimentations numériques, ainsi que les résultats du calcul direct pour le coefficient d'interaction, et pour l'étude des équations de fermeture.

### Contents

3.1	Etuc	le Bibliographique	99	
	3.1.1	Régimes de concentration	99	
	3.1.2	Mouvement d'une population de fibres en regime dilué	101	
	3.1.3	Mouvement d'une population de fibres en regime semi-concentré	102	
		3.1.3.1 Modèle Phénoménologique	103	
		3.1.3.2 Etude du coefficient d'interaction Ci 104		
------------	----------------	---	--	--
	3.1.4	Approximations de fermeture		
		3.1.4.1 Approximation Naturelle		
		3.1.4.2 Approximation Orthotrope		
		3.1.4.3 Performance des différentes approximation de fermeture 115		
	3.1.5	Conclusions de l'étude bibliographique		
<b>3.2</b>	$\mathbf{Exp}$	ériences Numériques		
	3.2.1	Objectifs de l'étude 118		
	3.2.2	Homogénéisation		
	3.2.3	Conditions d'expérimentations 119		
<b>3.3</b>	Etuc	de de l'interaction entre fibres		
	3.3.1	Etudes des composantes d'orientation $a_2$		
	3.3.2	Influence de la concentration en fibres sur l'orientation 122		
	3.3.3	Influence du rapport de forme des fibres sur l'orientation 123		
	3.3.4	Etude du coefficient d'interaction $C_i$		
		3.3.4.1 Modèle avec coefficient de diffusion		
		3.3.4.2 Détermination de $C_i$ connaissant l'évolution de $a_2$ 130		
		3.3.4.3 Résultats et analyses 130		
		3.3.4.4 Validation de l'approche		
<b>3.4</b>	Etuc	de des approximations de fermetures		
	3.4.1	Principe		
	3.4.2	Résultats et analyses		
<b>3.5</b>	Con	clusions du chapitre 3		

# 3.1 Etude Bibliographique

### 3.1.1 Régimes de concentration

Une suspension est caractérisée, entre autres, par sa concentration en particules. La concentration en particules peut être représentée par :

- la fraction volumique  $\Phi$ , qui est le rapport entre le volume occupé par les particules et le volume de la suspension,
- le nombre n de particules par unité de volume.

La fraction volumique  $\Phi$  et le nombre n ne sont pas indépendants. En effet, sachant qu'une fibre peut être définie comme une particule cylindrique de longueur l et de diamètre d, nous pouvons écrire, dans le cas d'un volume unitaire, que :

$$\Phi = n\pi \frac{d^2 l}{4} \tag{3.1}$$

Classiquement, on distingue trois régimes de concentration :

- le régime dilué,
- le régime semi-dilué,
- le régime concentré.

Une suspension sera dans un régime dilué si il n'y a pas d'interactions entre les particules. C'est à dire que les fibres bougent indépendamment les unes des autres. Si l'espace entre deux fibres devient de l'ordre du diamètre de la fibre d, alors les particules ne peuvent plus bouger sans interagir d'un point de vue mécanique avec ses proches voisines. La suspension est alors considérée comme concentrée.

Dans le cas d'une suspension de fibres orientées de façon aléatoire, dont la distance moyenne entre deux fibres voisines est de l'ordre de h, Doi et Edwards [57] montrent que le nombre de particules par unité de volume s'écrit :

$$n = \frac{1}{hl^2} \tag{3.2}$$

De même, dans le cas de fibres alignées dans une direction, on a :

$$n = \frac{1}{lh^2} \tag{3.3}$$

Les trois régimes de concentration sont alors délimités de la manière suivante :

- le régime dilué,

$$\frac{1}{l^3} \gg n \quad ou \quad \frac{1}{\beta^2} \gg \Phi \tag{3.4}$$

- le régime semi-dilué,

$$\frac{1}{l^3} \ll n \ll \frac{1}{dl^2} \quad ou \quad \frac{1}{\beta^2} \ll \Phi \ll \frac{1}{\beta} \tag{3.5}$$

– le régime concentré.

$$n \gg \frac{1}{dl^2} \quad ou \quad \Phi \gg \frac{1}{\beta}$$
 (3.6)



FIG. 3.1 - Régimes de concentration en fonction du facteur de forme des particules et de la fraction volumique

Pour une suspension de particules de facteur de forme  $\beta$ , le graphique 3.1 nous donne le régime de concentration en fonction de la fraction volumique de fibres. Par exemple, une suspension de particules de rapport de forme  $\beta = 10$  sera considérée comme semi-diluée pour des concentrations volumiques comprises entre 1% et 10%.

Cette notion de régime de concentration permet de fixer un domaine de validité pour les lois de comportement.

## 3.1.2 Mouvement d'une population de fibres en regime dilué

Le modèle proposée par Jeffery [49] a été présentée dans le chapitre 2 au paragraphe 2.4.2.1. Nous présenterons ici deux exemples d'application.

**Application à l'élongation pure** On considère une élongation uniaxiale dans la direction  $x_3$ . Le champ de vitesse d'un tel écoulement, dans le repère  $(0,x_1,x_2,x_3)$  prend la forme suivante :

$$v = (-\frac{\dot{\alpha}}{2} x_1, -\frac{\dot{\alpha}}{2} x_2, \dot{\alpha} x_3)$$

où  $\dot{\alpha}$  est le taux d'élongation.  $\dot{\alpha}$  est supérieur à 0. La résolution de l'équation de Jeffery 2.45 montre que  $\phi$  reste constant.  $\theta$  s'obtient en résolvant :

$$\frac{D\theta}{Dt} = -\frac{3}{4}\dot{\alpha}\lambda\sin(2\theta) \tag{3.7}$$

ce qui donne, pour 0  $\,\leq\,\lambda\,\,\leq\,1$ 

$$\tan(\theta) = \tan(\theta_0)e^{\frac{-3\dot{\lambda}t}{2}} \tag{3.8}$$

On constate donc que l'orientation de la particule évolue vers une valeur finie. L'angle  $\theta$  tend vers zéro si le taux d'élongation  $\dot{\alpha}$  est positif ou vers  $\pi/2$  si le taux d'élongation est négatif.

Dans le cas d'un écoulement convergent, la particule s'aligne le long des lignes de courant, tandis que pour un écoulement divergent, la fibre se place perpendiculairement aux lignes de courant. En conclusion, les particules s'orientent dans la direction d'étirement du fluide.

**Application au cisaillement simple** Cet écoulement a été étudié dans le chapitre 2 à la section 2.4.2.

Le mouvement d'une fibre dans un fluide newtonien soumis à un cisaillement simple est périodique. La période T de ce mouvement dépend du taux de cisaillement et du facteur de forme des particules.

La figure 3.2 montre l'évolution de l'angle  $\phi$  pour différentes valeurs de  $\beta$  en fonction du paramètre  $\frac{t}{T}$ . On met ainsi en évidence le pourcentage de temps important pendant lequel la particule est alignée avec les lignes de courant. On constate aussi que ce pourcentage de temps est d'autant plus grand que la particule est élancée. Cette trajectoire est connue sous le nom d'orbite de Jeffery. D'autre part, si on considère que le facteur de forme de la particule est infini, alors les fibres s'alignent avec les lignes de courant.

Des expérimentations, respectant les hypothèses de Jeffery [58] [59], ont permis de valider l'équation d'évolution de l'orientation proposée. Cependant, dans le cas des composites, l'équation de Jeffery ne permet qu'une description qualitative du mouvement des particules.



FIG. 3.2 – Variation de l'angle  $\phi$  dans un écoulement de cisaillement

On peut citer plusieurs facteurs qui contribuent à une déviation de l'orbite de Jeffery, par exemple :

- la matrice est en générale non newtonienne,
- les particules sont en solution semi-diluée ou concentrée,
- les particules ne sont pas totalement rigides (surtout dans le cas des fibres longues),
- les particules sont grandes devant les dimensions de l'écoulement (dans le cas des fibres longues, la longueur moyenne des fibres est supérieure à l'épaisseur des pièces moulées),
- enfin, il existe des interactions entre les particules et les parois du moule, ou encore entre les particules elles-mêmes.

Ces facteurs ont été quantifiés et il semble que leurs effets soient relativement négligeables [60],[61]. Les interactions hydrodynamiques et mécaniques (interaction particules-particules et particules-parois) apparaissent comme étant les plus grandes sources de dispersions à l'orbite de Jeffery. Par ailleurs, l'orientation périodique des fibres dans un tel écoulement laisse prévoir une difficulté majeure dans la détermination de la viscosité en cisaillement des suspensions de particules.

# 3.1.3 Mouvement d'une population de fibres en regime semi-concentré

La détermination de l'orientation des particules dans des solutions semi-concentrées ou concentrées est un problème compliqué. La difficulté majeure réside dans la quantification et la prise en compte des interactions hydrodynamiques et des interactions entre fibres. On imagine facilement que pour un écoulement de cisaillement simple où les fibres ont une orientation périodique, les interactions entre les particules peuvent jouer un rôle prépondérant. Il existe peu de modèle pour décrire l'orientation des particules dans un milieu semi-dilué à concentré. On peut noter le modèle phénoménologique de Folgar et Tucker [56] et le modèle de Koch et Shaqfeh [62] issu d'une approche micromécanique.

## 3.1.3.1 Modèle Phénoménologique

Le mouvement périodique suivi par une fibre dans une suspension diluée, en cisaillement simple, n'est plus possible lorsqu'on se place dans le cas d'un régime semi-dilué à concentré. De nombreux auteurs, Dinh et Amstrong [63], Bibbo et al [64], Papanastasiou et al [65], Altan et al [66] utilisent la relation de Jeffery en négligeant le diamètre des fibres par rapport à la longueur. Ainsi le mouvement des fibres n'est plus périodique et les fibres s'orientent dans la direction de l'écoulement.

L'observation de la distribution d'orientation des fibres en suspension concentrée dans une huile silicone, et en rhéométrie de Couette, montre que la direction de l'écoulement est effectivement l'orientation préférentielle mais il existe toujours une certaine dispersion. De nombreux auteurs font aussi cette constatation, par exemple Bay [9] sur des pièces injectées en polyamide, ou Ausias [67] sur des tubes extrudés en polypropylène.

Aussi Folgar et Tucker [56] proposent d'utiliser une approche phénoménologique.

Pour ce faire, ils ajoutent à l'équation de Jeffery un terme analogue à une "pseudo" diffusivité brownienne. Ils considèrent que l'évolution de l'état d'orientation d'une population de fibre peut être modélisée comme un processus de diffusion basé sur les hypothèses suivantes : toutes les fibres en suspension sont des cylindres rigides de longueur et de diamètres égaux, les centres des particules sont distribués de façon homogène dans un liquide newtonien, les seules forces qui agissent sur les fibres sont dues au fluide et aux interactions entre fibres.

Alors, l'équation d'évolution de  $\overrightarrow{p}$  prend la forme suivante :

$$\frac{D\overrightarrow{p}}{Dt} = \mathbf{\Omega}\overrightarrow{p} + \lambda(\dot{\boldsymbol{\epsilon}}(\overrightarrow{u})\overrightarrow{p} - (\dot{\boldsymbol{\epsilon}}(\overrightarrow{u}):\overrightarrow{p}\otimes\overrightarrow{p})\overrightarrow{p} - \frac{Dr}{\Psi}\frac{\partial\Psi}{\partial\overrightarrow{p}}$$
(3.9)

où  $\Psi$  (introduit à la section 1.3.1.3 du chapitre 1) est la fonction de distribution d'orientation et Dr le coefficient de diffusion en  $s^{-1}$ , qui rend compte des interactions entre les fibres.

Cette equation est identique à celle qui décrit un mouvement Brownien. Ce sujet a été traité par de nombreux auteurs. Bien que les fibres aient été modélisées comme non Browniennes, les interactions introduisent un effet comparable à celui d'une diffusion en rotation introduite par un mouvement Brownien.

Si Dr est nul, on néglige les interactions entre fibres et on retrouve ainsi l'équation de Jeffery.

Le coefficient  $D_r$  dirige deux effets :

 L'écoulement a tendance à orienter la population de fibres dans une certaine direction, alors que la diffusion tend à ramener les fibres vers une distribution isotrope. D'après Folgar et Tucker, la distribution d'orientation atteint un état stationnaire résultant de ces deux influences contradictoires. De plus, si  ${\cal D}_r$  augmente l'orientation devient de plus en plus isotrope,

 L'ajout du coefficient de diffusion permet de rendre compte de l'irréversibilité de l'orientation en cisaillement d'une population de fibres ce qui est en accord avec les observations.

L'état stationnaire atteint dépend de l'écoulement. Par exemple, en cisaillement simple, l'orientation des fibres dans la direction de l'écoulement est d'autant plus parfaite que  $\dot{\gamma}$  est élevé. Ceci est confirmé expérimentalement par les mesures d'orientation de Mutel et Kamal [68] effectuées en rhéométrie cône-plan sur un polypropylène chargé de fibres de verre. Cela permet également d'expliquer que les fibres ont moins d'influence sur la viscosité en cisaillement quand  $\dot{\gamma}$  augmente. De plus, si Dr est indépendant de  $\dot{\gamma}$ , dans une suspension au repos, la distribution d'orientation devient rapidement isotrope ce qui n'est pas réaliste.

Pour cette raison, Folgar et Tucker proposent que la constante de diffusion dépende linéairement de la vitesse de cisaillement généralisée  $\dot{\bar{\gamma}}$  :

$$Dr = C_i \dot{\bar{\gamma}} \tag{3.10}$$

avec

$$\dot{\bar{\gamma}} = \sqrt{2\dot{\epsilon}(\vec{u})_{ij}\dot{\epsilon}(\vec{u})_{ij}} \tag{3.11}$$

 $C_i$  est appelé le coefficient d'interaction, c'est un nombre sans dimension, intrinsèque au matériau, qui doit être identifié par des essais. La détermination de la valeur de  $C_i$  est délicate.

#### 3.1.3.2 Etude du coefficient d'interaction Ci

On se propose ici de présenter les approches utilisées pour déterminer le coefficient d'interaction  $C_i$ .

**Détermination expérimentale** En première approximation, la valeur de  $C_i$  a d'abord été considérée comme une constante, indépendamment de l'état d'orientation. Des confrontations entre les résultats expérimentals et les modèles pour différents types de suspensions ont permis d'évaluer les valeurs de  $C_i$ . Parmi les études les plus significatives, on peut noter les approches suivantes.

Folgar et Tucker [56] utilisent des essais de cisaillement simple dans le cas d'une huile silicone chargée des fibres Nylon (écoulement de couette) pour identifier le paramètre  $C_i$ . Ils constatent que ce coefficient est une fonction de la fraction volumique de fibres et de leur facteur de forme, mais qu'il est indépendant de l'état d'orientation des particules. L'identification reste cependant très délicate car elle demande des moyens de mesure conséquents (détermination de l'orientation des particules dans l'espace). Ils obtiennent des valeurs de  $C_i$  comprise entre  $10^{-1}$  et  $10^{-4}$ .

La figure 3.3 montre l'influence du paramètre  $C_i$  sur la fonction de distribution des orientations. On constate que :

- Si le facteur  $C_i$  est différent de 0 alors les particules ne sont pas parfaitement alignées dans la direction de l'écoulement,
- L'augmentation du terme  $C_i$  a pour effet d'élargir la distribution de probabilité des orientations  $\Psi$ . En d'autres terme, une augmentation du facteur  $C_i$  a pour effet d'accroître le désalignement moyen des particules.



FIG. 3.3 – Influence du paramètre  $C_i$  sur la fonction de distribution des orientations pour un écoulement de cisaillement [56]

En introduisant le modèle de diffusion rotationnelle, Folgar et Tucker ont émis l'idée que la valeur de  $C_i$  était susceptible d'augmenter avec le facteur de forme et/ou avec la concentration de fibres, car l'intensité et le nombre de fibres augmentent.

Ranganathan et Advani [19] ont démontré que ce prémisse n'était valable que dans le cas d'une solution semi-diluée. Au delà, ils trouvent que le coefficient d'interaction décroît de façon exponentielle avec le produit  $\Phi\beta$ . Ils attribuent ce phénomène aux effets d'encombrement stériques qui dans des solutions concentrées, forcent les fibres à s'aligner préférentiellement avec leurs voisines dans la direction d'écoulement et donc conduisent finalement à une diffusion moins importantes. En résumé, alors que dans des solutions semi-diluées, la présence des interactions entre fibres les empêche de s'aligner complètement dans la direction de l'écoulement, dans des solutions concentrées, c'est l'inverse qui se produit, l'alignement est favorisé. Pour cela, Ranganathan et Advani proposent de relier le terme  $C_i$  à la distance moyenne entre les fibres. En effet, lorsque l'espacement entre les fibres diminue, les interactions hydrodynamiques sont plus fortes et l'espace physique pour qu'une particule puisse tourner est réduit.

Qualitativement, ils estiment que l'intensité d'interaction entre les fibres est inversement proportionnelle à la distance moyenne qui sépare deux fibres  $a_c$ . Ils basent leur approche aussi sur le fait que les contraintes entourant une fibre augmentent quand l'espace qui la sépare de ses voisines diminue, conduisant à une augmentation des interactions hydrodynamiques. Ainsi la notion de distance entre fibres comprends à la fois la notion d'interaction hydrodynamique et la notion d'espace minimum à la rotation d'une fibre dans une suspension.

Le coefficient  $C_i$  prend alors la forme suivante :

$$C_i = \frac{Kd}{a_c} \tag{3.12}$$

où K est une constante, déterminée expérimentalement à environ  $10^{-2}$  pour une solution visqueuse de polyalkylene glycol chargée de fibres en polyamide (deux rapports de forme sont étudiés à différentes concentrations). Ils obtiennent une bonne corrélation entre expérimentations et calculs.

Le facteur K est là encore identifié lors d'un essai de cisaillement de sorte que le modèle recoupe les expérimentations dans le cas stationnaire. L'expression de  $C_i$  introduite par Ranganathan et Advani permet de s'affranchir de nombreuses manipulations expérimentales (K est constant) et de rendre compte de l'orientation dynamique des particules. Cependant K est déterminé dans le cas d'une solution visqueuse, ce qui est donc différent de notre matériau.

Une approche similaire est utilisée par Kamal et Mutel [69] pour modéliser les interactions entre les fibres dans le cas des milieux semi-concentrés. La diffusivité est, cette fois, proportionnelle à la viscosité en cisaillement. Pour ce modèle phénoménologique, les coefficients de diffusion doivent être identifiés par des expérimentations.

Dans une étude détaillée de l'effet de l'interaction entre fibres sur les prédictions d'orientation des fibres dans une pièce injectée, Bay et Tucker [11] montrent que lorsque  $C_i$  décroît, à la fois le coeur et la peau (couches intermédiaires + extrême peau) sont mieux alignés (transversalement et parallèlement à la direction principale d'orientation, respectivement). Ils montrent aussi que bien que la composante  $a_{11}$  du tenseur d'orientation ((1,2) étant le plan d'écoulement et la direction 1 la direction d'écoulement) soit bien prédite, les composantes  $a_{33}$  et  $a_{13}$  ne le sont pas, dépendant fortement de la valeur choisie pour  $C_i$ . Étant donnée la qualité de la prédiction de l'orientation dans le plan de l'écoulement, les auteurs concluent que les erreurs proviennent probablement de l'approximation choisie.

Bay [9] résout l'équation d'évolution de la distribution d'orientation (introduit au chapitre 1 à la section 1.3.1.3) avec un terme de diffusion par une méthode utilisant des volumes

de contrôle, dans le cas d'écoulement de cisaillement simple, et pour un écoulement combinant élongation et cisaillement. En confrontant ces calculs à des mesures d'orientations effectuées sur des plaques et des disques injectés à différentes concentrations de fibres et pour différents thermoplastiques, Bay propose la relation empirique suivante :

$$C_i = 0.0814 e^{-0.7148\Phi\beta} \tag{3.13}$$

Dans une solution concentrée, il trouve donc que  $C_i$  décroît quand on augmente la fraction volumique de fibres dans la matrice.



FIG. 3.4 – Coefficient d'interaction en fonction du produit  $\Phi \times \beta$  obtenues par Bay [9] et confronté aux valeurs de  $C_i$  ajustées par Folgar et Tucker [56]. PC : polycarbonate  $\beta = 17$ , PBT : polybutène terephthalate  $\beta = 18$ , NYLON : polyamide 6.6  $\beta = 25$ , FOLGAR : huile silicone

La figure 3.4 présente les valeurs de  $C_i$  ajustées par Folgar et Tucker [56] pour des fibres de polyamide dans une huile silicone et celles obtenues par Bay pour du polycarbonate, du polybutylène téréphtalate et du polyamide renforcés de fibres de verre. Pour pouvoir comparer ces matériaux dont la fraction volumique de fibre  $\Phi$  et le rapport de forme  $\beta$ sont différents, Bay représente les valeurs de  $C_i$  en fonction du produit  $\Phi\beta$ .

On observe une contradiction entre les résultats obtenus par Folgar Tucker et ceux de Bay. Les valeurs ajustées par Folgar augmentent avec le produit  $\Phi\beta$  alors que celles obtenues par Bay diminuent. Cette différence peut s'expliquer par la différence de regime de concentration. Folgar et Tucker réalisent leurs expériences sur des suspensions semidiluées alors que Bay travaille avec des suspensions concentrées ( $\Phi\beta > 1$ ). D'autre part, cette tendance pour l'orientation, quand on augmente la concentration des fibres, à devenir soit plus aléatoire dans une suspension semi-concentrée soit plus alignée dans le cas d'une suspension plus concentrée sont conformes aux analyses de Ranganathan et Advani.

Une autre méthode utilise deux constantes ajustables pour prédire la rhéologie et l'état d'orientation des fibres dans les écoulements de cisaillement [70]. Il semble que les propriétés rhéologiques soient correctement décrites. En revanche, la prédiction de l'état d'orientation des particules n'est pas en accord avec les expérimentations.

Matsuoka et al [?] proposent de déterminer expérimentalement  $C_i$  à partir de valeurs de coefficients d'expansion thermique dans des plaques injectées (l'expansion thermique est directement reliée à l'orientation dans la pièce). Leurs résultats montrent que l'orientation des fibres est très peu dépendante de la valeur choisie pour  $C_i$ , mais plutôt gouvernée par la cinétique d'écoulement. Par exemple, pour un polypropylène chargé à 10% en poids de fibres de verre, la corrélation entre expérience et calcul est de 0,884 pour un  $C_i = 0,01$  et est de 0,873 pour  $C_i = 0, 1$ .

**Détermination numérique** Yamane et al [30] proposent une méthode de simulation directe pour modéliser l'interaction entre fibres dans un écoulement newtonien de cisaillement simple. Dans cette étude, seule les interactions à court rayon d'action sont pris en compte. Ces interactions sont modélisées par des forces de lubrification qui opposent une résistance au mouvement relatif des fibres lorsque les fibres sont suffisamment proches (distance de séparation entre fibres  $\leq \frac{1}{10}d$ ). Entre deux fibres voisines, la force de lubrification est normale au contact et dépend de la géométrie de ce contract. Elle dépend par ailleurs de la viscosité du fluide suspensif et du taux de réduction (homogène à une vitesse de déformation) de la distance qui sépare ces deux fibres. Avec ce modèle, ils obtiennent des des valeurs numériques de  $C_i$  comprises entre  $10^{-4}$  et  $10^{-7}$ , valeurs beaucoup plus faibles que celles déterminées expérimentalement par Folgar et Tucker.

Phan-Thien et al [31] améliorent le modèle de simulation directe proposé par Yamane, en prenant en compte les interactions à long rayon rayon d'action qui traduisent des interactions hydrodynamiques. Ces interactions sont estimées à partir de la théorie des corps élancés. Les composantes des tenseurs du second et du quatrième ordre, calculées directement à partir de l'orientation de chaque particules dans une cellule cubique avec des conditions aux frontières périodiques, sont introduites dans une version anisotrope modifiée du modèle de Folgar-Tucker afin de déterminer le coefficient d'interaction. Celuici s'exprime sous la forme d'un tenseur du second ordre symétrique. Le coefficient  $C_i$  est alors calculé en prenant la trace du tenseur anisotrope.  $C_i$  prend la forme suivante :

$$C_i = 0.03[1 - e^{-0.224\Phi\beta}] \tag{3.14}$$

 $C_i$  augmente avec la concentration et le facteur de forme. Les valeurs de  $C_i$  sont comprises entre  $10^{-2}$  et  $10^{-3}$ . Les résultats obtenus avec cette méthode sont donc en accord avec les valeurs de Folgar et Tucker et contredisent les mesures de Bay et de Raganathan et al. D'autre part, si on s'intéresse aux autres composantes du tenseur  $C_i$ , on remarque que : – les composantes  $C_{i13}$ ,  $C_{i23}$  et  $C_{i33}$  sont négligeables devant les autres composantes.

Ce dernier development est intéressant. Il montre que le coefficient d'interaction est anisotrope. La diffusion dans le plan et dans l'épaisseur est différente.

<sup>–</sup> la composante dans le plan de cisaillement  $C_{i12}$  n'est pas négligeable.

**Conclusions** Pour résumer, la diffusion permet de rendre compte de la dispersion d'orientation réellement obtenue à la suite d'écoulements, pour lesquels le modèle de Jeffery prédit une orientation trop unidirectionnelle, quand on la compare aux mesures expérimentales. Le coefficient de diffusion peut être obtenu en ajustant sa valeur pour que les prédictions d'orientation issues de mesures, ou, à l'aide de calculs numériques. Les valeurs des coefficients déterminés par les différents auteurs montrent des contradictions au niveau de la dépendance du coefficient de diffusion avec le taux de cisaillement, avec le rapport de forme des fibres, avec la fraction volumique de fibres et avec la distribution d'orientation.

#### 3.1.4 Approximations de fermeture

L'équation 3.9 peut s'exprimer en fonction du tenseur d'orientation  $a_2$  comme suit :

$$\frac{D\boldsymbol{a_2}}{Dt} = -(\boldsymbol{\Omega}\boldsymbol{a_2} - \boldsymbol{a_2}\boldsymbol{\Omega}) + \lambda(\dot{\boldsymbol{\epsilon}}(\overrightarrow{\boldsymbol{u}})\boldsymbol{a_2} + \boldsymbol{a_2}\dot{\boldsymbol{\epsilon}}(\overrightarrow{\boldsymbol{u}}) - 2\dot{\boldsymbol{\epsilon}}(\overrightarrow{\boldsymbol{u}})\boldsymbol{a_4} + Dr(I - 3\boldsymbol{a_2})) \quad (3.15)$$

Dans cette équation, on remarque que l'évolution du tenseur  $a_2$  dépend du tenseur d'ordre supérieur  $a_4$ . Il faut donc connaître l'évolution du tenseur d'ordre quatre pour déterminer l'évolution de  $a_2$ . Or, il s'avère que l'évolution du tenseur d'ordre quatre dépend du tenseur d'ordre six. Ce schéma se répète ainsi pour les tenseurs d'ordre supérieur. Pour contourner cette difficulté et permettre une description complète du comportement, on peut introduire une approximation dite de fermeture qui relie les composantes des tenseurs  $a_2$  et  $a_4$ .

Dans un premier temps, il est possible de classer les différentes équations de fermeture en trois catégories :

 Fermeture linéaire Cette relation de fermeture est exacte pour une distribution d'orientation isotrope :

$$\boldsymbol{a_{ijkl}}^{lin} = \frac{1}{7} (\boldsymbol{a_{ij}} \delta_{kl} + \boldsymbol{a_{ik}} \delta_{jl} + \boldsymbol{a_{il}} \delta_{jk} + \boldsymbol{a_{kl}} \delta_{ij} + \boldsymbol{a_{jl}} \delta_{ik} + \boldsymbol{a_{jk}} \delta_{il}) - \frac{1}{35} (\delta_{ij} \delta_{kl} + \delta_{ik} \delta_{jl} + \delta_{il} \delta_{jk})$$

$$(3.16)$$

- Fermeture quadratique Cette approximation de fermeture fournit des résultats exacts pour une orientation unidirectionnelle des fibres.  $a_{ijkl}$ .

$$\boldsymbol{a_{ijkl}}^{quad} = \boldsymbol{a_{ij}} \cdot \boldsymbol{a_{kl}} \tag{3.17}$$

Cependant, cette approximation ne respecte pas la symétrie de  $a_4$ . En effet, écrire  $a_{1122} = a_{11}a_{22}$  ou écrire  $a_{1122} = a_{12}a_{12}$  donne des résultats très différents [66].

- Fermeture hybride Adavani et Tucker [71] proposent une relation qui pondére les approximations quadratique et linéaire par un scalaire f qui dépend de l'orientation :

$$\boldsymbol{a_{ijkl}}^{hybride} = (1-f)\boldsymbol{a_{ijkl}}^{lin} + f\boldsymbol{a_{ijkl}}^{quad} \quad avec \quad f = (1-27 \, \det(\boldsymbol{a_{kl}})) \qquad (3.18)$$

f = 1 pour une orientation unidirectionnelle, et 0 pour une orientation isotrope.

Il existe des approximations de fermeture plus sophistiquées : les approximations contenant des paramètres ajustables. Dans toutes ces approches, la relation de fermeture est définie en approximant les solutions particulières de différents types d'écoulements, obtenues par le calcul de la fonction de distribution d'orientation. Ainsi les méthodes ne se différencient que par la méthode d'approximation et par le jeu de paramètres ajustables présents dans l'équation de fermeture. Il existe deux principales méthodes pour construire ce type d'approximation de fermeture :

- La première consiste à exprimer le tenseur  $a_2$  en fonction de ses invariants, c'est le cas de l'approximation naturelle NAT.
- La seconde méthode consiste à exprimer le tenseur  $a_2$  en fonction de ses valeurs propres, c'est le cas des approximations orthotropes ORS "orthotropic smooth", ORF "orthotropic fitted" ainsi que leurs versions améliorées.

#### 3.1.4.1 Approximation Naturelle

Cette approximation proposée par Verleye et Dupret [72] est élaborée à partir de la mécanique des milieux continus et certaines propriétés mathématiques. Elle est basée sur une relation *naturelle* exacte reliant les tenseurs  $a_2$  et  $a_4$  dans un cas bidimensionel. Elle est valable pour des fibres de rapport d'allongement élevé ( $\lambda = 1$ ) et dans le cas où les interactions entre les fibres sont négligées ( $C_i$  est nul).

Cette approximation est définie en supposant que la fonction de distribution appartient à un sous espace non linéaire réduit qui possède le même nombre de degrés de liberté que le tenseur d'orientation  $a_2$ . Pour cela, ils considèrent qu'à un moment passé, la suspension a été où a pu être dans un état isotrope. Dans ce cas particulier, l'orientation du vecteur  $\vec{p}$  est fonction uniquement de son état d'orientation à l'état de référence  $\vec{p}_0$  et du tenseur des gradients de déformation E (introduit par Dinh et Amstrong [63]). Il est alors possible de déterminer une solution analytique de  $\Psi(\vec{p})$  en fonction de  $\Psi(\vec{p}_0)$  et de E. Cette relation (approximation) est dite naturelle car elle est basée sur le calcul d'une solution unique.

Cette approximation établit une relation entre les tenseurs  $a_4$  et  $a_2$  et ce en fonction des invariants de  $a_2$  :

$$\boldsymbol{a_{ijkl}}^{Nat} = \beta_1 S(\delta_{ij}\delta_{kl}) + \beta_2 S(\delta_{ij}\boldsymbol{a_{kl}}) + \beta_3 S(\boldsymbol{a_{ij}a_{kl}}) + \beta_4 S(\delta_{ij}\boldsymbol{a_{ij}a_{kl}}) + \beta_5 S(\boldsymbol{a_{ij}a_{km}a_{ml}}) + \beta_6 S(\boldsymbol{a_{im}a_{mj}a_{km}a_{ml}})$$
(3.19)

où l'opérateur S transforme un tenseur d'ordre quatre en un tenseur symétrique qui satisfait les conditions de symétrie complètes.

$$S(T_{ijkl}) = \frac{1}{24} (T_{ijkl} + T_{jikl} + T_{ijlk}...)$$
(3.20)

Les coefficients  $\beta_i$  sont des fonctions du deuxième et du troisième invariant de  $a_2$ , respectivement  $II_a$  et  $III_a$ .

Pour une orientation plane des fibres, les coefficients  $\beta_4$ ,  $\beta_5$  et  $\beta_6$  sont nuls alors que  $\beta_1$ ,  $\beta_2$  et  $\beta_3$  sont calculés analytiquement. La forme bidimensionnelle de l'approximation de fermeture naturelle s'écrit :

$$a_{ijkl}{}^{Nat} = \frac{1}{3}(a_{ij}a_{kl} + a_{ik}a_{lj} + a_{il}a_{ik}) + \frac{1}{6}deta_2(\delta_{ij}\delta_{kl} + \delta_{ik}\delta_{lj} + \delta_{il}\delta_{ik})$$
(3.21)

Par contre dans le cas d'une orientation 3D, le calcul analytique de  $\Psi(\overrightarrow{p})$  n'est plus possible.

De ce fait, Verleye [72] pose que les coefficients sont des fonctions polynomiales du deuxième et du troisième invariants de  $a_2$ , ce qui permet de s'assurer que l'approximation est indépendante du repère choisi. Dans ce cas, les coefficients de cette fonction sont ajustés pour minimiser l'écart entre  $a_2$  obtenu avec l'approximation naturelle et des solutions exactes calculées pour les cas particuliers  $C_i = 0$  et  $\lambda = 1$ . Chung et Kwon en 2002 [73] proposent une approximation similaire, appelée *IBOF* : *Invariant Based Optimal Fitting* exprimant tous les coefficients  $\beta_i$  en fonction des deuxième et troisième invariants de  $a_2$ .

Cintra et Tucker [74] confrontent les prévisions de l'approximation naturelle 3D à la résolution de l'équation de la distribution d'orientation  $\Psi$  dans diverses situations d'écoulements. Dans les conditions testées (diffusion  $C_i = 0,01$  ou 0,001), l'approximation naturelle donne de très bonnes estimations des résultats "exacts".

#### 3.1.4.2 Approximation Orthotrope

Cintra et Tucker [74] ont développé des approximations de fermeture 3D, appelées approximations de fermeture orthotrope. Ce type d'approximation est plus au moins similaire à l'approximation de fermeture naturelle, tant au niveau de sa philosophie que de ses performances.

**Principe** Ce type d'approximation de fermeture est basé sur les propriétés d'orthotropie du tenseur  $a_4$ . Ces approximations sont définies de façon à satisfaire la condition d'orthotropie dans un système d'espace propre. En effet, le tenseur  $a_2$  est diagonalisable dans une base orthonormée de vecteurs propres. Les valeurs propres du tenseur dans cette base sont notées : (a(i), i = 1, 2, 3).

Il n'y a que deux valeurs propres indépendantes puisque  $tra_2 = 1$ . Chaque axe principal, défini par un vecteur propre, est un axe de symétrie pour la population de fibres puisque les coefficients extra-diagonaux sont nuls. Par conséquent on peut dire qu'une orientation des fibres décrite par  $a_2$  est toujours orthotrope. L'approximation de  $a_4$  recherchée doit être orthotrope et donc respecter les relations de symétrie contenues dans  $a_2$ .

Un tenseur d'ordre 4 orthotrope contient de nombreux coefficients nuls quand il est écrit dans le repère principal. En utilisant la contraction des indices comme ci dessous :

valeurs : $m$ ou $n$	notation tensorielle : $ij$ ou $kl$
1	11
2	22
3	33
4	23 ou 32
5	31 ou 13
6	12 ou 21

Le tenseur  $a_4$  peut s'écrire dans la base des vecteurs propres de  $a_2$  sous la forme d'une matrice (6,6) comme suit :

$$\bar{A}_{mn} = \begin{pmatrix} \bar{A}_{11} & \bar{A}_{12} & \bar{A}_{13} & 0 & 0 & 0 \\ \bar{A}_{21} & \bar{A}_{22} & \bar{A}_{23} & 0 & 0 & 0 \\ \bar{A}_{31} & \bar{A}_{32} & \bar{A}_{33} & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & \bar{A}_{44} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & \bar{A}_{55} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & \bar{A}_{66} \end{pmatrix}$$

Les symétries du tenseur  $a_4$  se traduisent par :

$$\bar{A}_{12} = \bar{A}_{66} \quad \bar{A}_{23} = \bar{A}_{44} \quad \bar{A}_{13} = \bar{A}_{55}$$

Par ailleurs, l'égalité :  $a_{ijkl} = a_{ij}$  valable dans tout système de coordonnées, se traduit par :

$$\bar{A}_{11} + \bar{A}_{66} + \bar{A}_{55} = a_1 
\bar{A}_{66} + \bar{A}_{22} + \bar{A}_{44} = a_2 
\bar{A}_{55} + \bar{A}_{44} + \bar{A}_{33} = a_3$$
(3.22)

Ainsi, en utilisant toutes les propriétés de symétries de  $a_4$  ainsi que la condition de normalisation, seuls 3 coefficients de  $a_4$  sont à déterminer dans la base des vecteurs propres de  $a_2 : \bar{A}_{11}, \bar{A}_{22}$  et  $\bar{A}_{33}$ .

Le tenseur  $a_4$  se déduit de  $\overline{A}$  en utilisant une matrice de passage ou de rotation comme suit :

$$a_{ijkl} = R_{iq}R_{jr}R_{ks}R_{lt}A_{qrst}$$

où  $a_{ijkl}$  et  $A_{qrst}$  représentent respectivement les composantes du tenseur d'orientation d'ordre 4 dans le repère classique et dans le repère constitué des vecteurs propres de  $a_2$ . La matrice de rotation  $R_{ij}$  est définie de la manière suivante :

$$R_{ij} = E_i^j$$

où  $E_i^j$  désigne la  $i^{\grave{e}me}$  composante du  $j^{\grave{e}me}$  vecteur propre de  $\boldsymbol{a_2}$  .

Relation de fermeture de type ORS Orthotropic Smooth Cette approximation est définie de façon à satisfaire la condition d'orthotropie dans un système représenté par les vecteurs propres de  $a_2$ . Les valeurs propres de  $a_2$  appartiennent à l'intervalle [0, 1]. Cintra et Tucker [74] ont montré que tous les états d'orientation possibles peuvent être représentés dans un triangle (UTB) représenté dans la base des vecteurs propres comme suit :

Les points U, B et T correspondent respectivement à un état d'orientation uniaxiale des fibres dans la direction E(1), biaxiale dans le plan (E(1), E(2)) et isotrope (triaxiale). L'approximation de fermeture ORS correspond à une "approximation lissée". Cette approximation consiste à fixer les valeurs de l'orientation aux points U, T et B et à utiliser une interpolation linéaire sur le triangle UTB.



FIG. 3.5 – Domaine décrivant l'ensemble des états d'orientation physiquement admissibles (issu de [71])  $\lambda_i$  représente les valeurs propres du tenseur  $\mathbf{a_2}$  notées dans le document ( $\mathbf{a}(i), i = 1, 2, 3$ )

$$\bar{A}_{mm}^{ORS} = \sum_{i=1}^{3} C_m^i V_i \quad \text{avec} \quad V_i = (1, a(1), a(2))^T$$
(3.23)

L'approximation de fermeture ORS s'écrit alors :

$$A_{11} = -0.15 + 1.15a(1) - 0.10a(2)$$
  

$$\bar{A}_{22} = -0.15 + 0.15a(1) + 0.90a(2)$$
  

$$\bar{A}_{33} = +0.60 - 0.60a(1) - 0.60a(2)$$
  
(3.24)

Les valeurs de  $\bar{A}_{44}$ ,  $\bar{A}_{55}$  et  $\bar{A}_{66}$  se déduisent du système 3.22.

**Relation de fermeture de type ORF** *Orthotropic Fitted* Cintra et Tucker [74] introduisent une nouvelle classe de relation de type orthotrope appelée approximation ORF. Cette approximation s'écrit :

$$\bar{A}_{mm}^{ORF} = \sum_{i=1}^{6} C_m^i V_i \quad \text{avec} \quad V = \left(1, a(1), a(1)^2, a(2), a(2)^2, a(1)a(2)\right)^T$$
(3.25)

Les coefficients sont ajustés de manière à ce que les coefficients de  $a_4$ , obtenus en utilisant l'approximation orthotrope, soient le plus proches possibles des solutions exactes, et ce pour différents types d'écoulement. Pour cela, Cintra et Tucker ont dans un premier temps calculé les tenseurs  $A_{mn}^{\Psi}$  pour différents écoulements simples en résolvant l'équation d'évolution de la fonction de distribution. Ces simulations sont réalisées avec  $C_i = 0.01$  et  $\lambda = 1$ . Les écoulements utilisés sont :

- le cisaillement simple,
- un écoulement qui combine du cisaillement et de l'élongation,
- un écoulement élongationnel uni et bi-axial.

A chaque résultat trouvé est associé une paire de valeurs propres  $a(1, \Psi)$  et  $a(2, \Psi)$ . Les 18 coefficients  $C_m^k$  de l'approximation orthotrope sont alors obtenus par moindres carrés, en minimisant pour chaque résultat le résidu R de l'expression.

L'expression des coefficients  $C_m^i$  est :

$$C_m^i = \begin{pmatrix} 0.060964 & 0.371243 & 0.555301 & -0.369160 & 0.318266 & 0.371218 \\ 0.124711 & -0.389402 & 0.258844 & 0.086169 & 0.796080 & 0.544992 \\ 1.228982 & -2.054116 & 0.821548 & -2.260574 & 1.053907 & 1.819756 \end{pmatrix}$$
(3.26)

Cette approximation donne de meilleurs résultats que les autres approximations pour différents écoulements, homogènes ou non (Figure 3.6). Cependant pour des valeurs faibles du coefficient d'interaction  $C_i$ ,  $C_i = 0$  et  $C_i = 0.001$ , elle présente des oscillations non physiques pour des écoulements en cisaillement simple et des écoulements radiaux convergents.



FIG. 3.6 – Composantes du tenseur d'orientation en écoulement de cisaillent simple pour  $C_i = 0.001$  -Performances des différentes approximations de fermeture : DFC (resolution de l'équation  $\Psi$ ), NAT (approximation naturelle), ORT, ORF, ORL (approximations orthotropes) [71]

Il est possible de développer d'autres relations de fermeture orthotrope à paramètres ajustables en utilisant des écoulement différents pour calculer les solutions exactes obtenues par intégration de la fonction de distribution d'orientation  $\Psi$ , ou en proposant une expression fonctionnelle différente de  $A_{mn}$ . Dans cette optique, Wetzel [75] propose l'approximation de fermeture ORT :

$$\bar{A}_{mm}^{ORT} = \sum_{i=1}^{15} C_m^i \, V_i \tag{3.27}$$

avec

$$V = \begin{pmatrix} 1, a(1), a(2), a(1)a(2), a(1)^2, a(2)^2, a(1)^2a(2), a(1)a(2)^2, \\ a(1)^3, a(2)^3, a(1)^2a(2)^2, a(1)^3a(2), a(1)a(2)^3, a(1)^4, a(2)^4 \end{pmatrix}^T$$

Cette approximation de fermeture est valable pour  $\lambda = 1$  et  $C_i = 0$ . Les performances des fermetures ORT et Naturelle 3D sont quasiment identiques. Les coefficients  $C_i$  sont données dans le tableau 3.1.

i	m = 1	m = 2	m = 3
1	0.02005000	0.02005000	0 74059900
1	0.03025000 1.8726630	0.03025000 3 3152730	2.74053300 0.1210650
2	-1.0720000	-0.0102700	-9.1219050
3	-4.4797080	-3.0370990	-12.257058
4	11.9589560	11.8273280	34.3199020
5	3.84459700	6.88153900	13.8294700
6	11.3420920	8.43677700	25.8684750
7	-10.958262	-15.912066	-37.702911
8	-20.727799	-15.151587	-50.275643
9	-2.1162320	-6.4872890	-10.880176
10	-12.387563	-8.6389140	-26.963691
11	9.81598300	9.32520300	27.3346790
12	3.479.1500	7.74683700	15.2650680
13	11.7492910	7.48146800	26.1134910
14	0.50804100	2.28473500	3.43213800
15	4.88366500	3.59772200	10.6117410

TAB. 3.1 – Coefficients  $C_m^i$  de l'approximation de fermeture ORT

#### 3.1.4.3 Performance des différentes approximation de fermeture

Plusieurs auteurs [66], [9], [72], [74] évaluent les performances des approximations de fermeture en comparant différents résultats obtenus par ces approximations, aux solutions exactes qui découlent d'intégrations sur la fonction de distribution d'orientation. Les travaux de ces auteurs diffèrent par les approximations testées, les écoulements utilisés, et par les paramètres calculés. Les écoulements utilisés sont souvent le cisaillement simple, l'élongation uniaxiale, biaxiale, et des écoulements qui combinent élongation et cisaillement. Les paramètres calculés sont les coefficients de  $a_2$  et  $a_4$ , parfois la viscosité élongationnelle, et la seconde différence des contraintes normales.

Les résultats de ces études montrent que l'approximation linéaire donne parfois des résultats aberrants. En cisaillement simple, avec  $\lambda = 1$ , la valeur de la première composante du tenseur  $a_2$  est oscillante, ce qui n'est pas physique. En élongation uniaxiale,  $a_{11}$  peut être supérieure à 1.

Les approximations quadratique, hybride peuvent entraı̂ner des erreurs importantes lors du calcul des coefficients de  $a_2$  et  $a_4$ .

Les coefficients des approximations naturelles et orthotropes ont été ajustés pour minimiser les écarts avec les solutions exactes obtenues pour diverses écoulements. Ces ajustement sont effectués pour  $\lambda = 1$  et des valeurs particulières du coefficient d'interaction  $C_i$ . Dans tous les cas, elles donnent de bons résultats. Par contre, on peut avoir des doutes sur leurs performances pour d'autres types d'écoulements.

# 3.1.5 Conclusions de l'étude bibliographique

Dans cette section, nous avons présenté les modèles permettant de décrire l'évolution de l'orientation de particules dans une suspension pour des régimes dilués à semi-dilués. A notre connaissance, il n'existe pas de modèle pour des solutions concentrées.

Cette étude bibliographique a mis en évidence deux difficultés dans la prédiction de l'orientation de fibres.

La première difficulté est la prise en compte des interactions hydrodynamiques et des interactions entre fibres dans une suspension semi-concentrée ou concentrée. Folgar et Tucker proposent d'utiliser une approche phénoménologique. Pour ce faire, ils ajoutent à l'équation de Jeffery un terme analogue à une diffusivité brownienne. Ce coefficient de diffusion peut être obtenu soit par des mesures expérimentales, ce qui est difficilement effectué en pratique, soit par des calculs numériques. Cependant, les résultats de la littérature montrent des contradictions dans les valeurs de ce terme. D'autre part, il est important de souligner que toutes ces méthodes qui consistent à ajouter un coefficient de diffusivité, ne sont, à priori, pas justifiées d'un point de vue physique. Elles permettent cependant, en désalignant l'orientation des fibres en moyenne, de rendre compte de l'augmentation de viscosité en cisaillement d'une suspension de particules.

La deuxième difficulté est le choix de l'approximation de fermeture qui permet de résoudre le modèle phénoménologique de Folgar et Tucker. La littérature dans ce domaine est abondante et les performances de ces approximations vont dépendre du type d'écoulement considéré, du rapport de forme des fibres et de la valeur du coefficient d'interaction.

Dans la deuxième partie de ce chapitre, nous proposons une étude numérique de l'interaction entre particules et des approximations de fermeture. L'étude bibliographique a souligné la difficulté de la modélisation de la dynamique de l'orientation de fibres dans des solutions semi-diluées à concentrées.

L'étude numérique que nous proposons ici s'inscrit donc dans une optique de compréhension des phénomènes d'orientation.

# 3.2 Expériences Numériques

## 3.2.1 Objectifs de l'étude

L'approche micromécanique adoptée a pour objectifs :

- L'étude de l'orientation d'une population de fibres. On s'intéressera notamment à l'influence de la concentration et du rapport de forme des fibres sur la dynamique d'orientation.
- L'étude du modèle statistique de prédiction de l'orientation de Folgar et Tucker en proposant une méthode de determination du coefficient  $C_i$  et une méthode pour tester la performance de certaines approximations de fermeture.

La mise en place de cette approche micromécanique passe par une étape classique d'homogénéisation spatiale qui permet d'obtenir des quantités moyennes à partir d'une situation microscopique totalement définie.

## 3.2.2 Homogénéisation

L'homogénéisation spatiale s'effectue sur une volume élémentaire représentatif (VER) du matériau, considéré ici comme une suspension de particules dans un fluide visqueux. Cette technique permet d'obtenir des grandeurs moyennes sur ce volume. Le volume élémentaire doit donc contenir un "grand" nombre de particules de volume  $V_i$  dont l'orientation est supposée connue, pour donner une statistique à l'homogénéisation. Mais il doit aussi être suffisamment "petit" devant les dimensions de l'écoulement (typiquement devant les dimensions du moule pour la mise en forme des polymères chargés) afin de définir un point matériel.

De façon classique, les grandeurs macroscopiques sont définies comme étant les moyennes spatiales sur le volume V des grandeurs microscopiques associées. Ainsi le champ des vitesses macroscopiques  $\vec{u}$  et son taux de déformations  $\dot{\boldsymbol{\epsilon}}(\vec{u})$  s'écrivent :

$$\overrightarrow{u} = \langle \overrightarrow{v} \rangle = \frac{1}{V} \int_{V} \overrightarrow{v} \, dv \tag{3.28}$$

$$\dot{\gamma} = \dot{\boldsymbol{\epsilon}}(\overrightarrow{u}) = \frac{1}{2}(\boldsymbol{\nabla}\overrightarrow{u} + \boldsymbol{\nabla}\overrightarrow{u}^{T}) = \frac{1}{V}\int_{V}\dot{\boldsymbol{\epsilon}}(\overrightarrow{v})dv = \frac{1}{2V}\int_{V}(\boldsymbol{\nabla}\overrightarrow{v} + \boldsymbol{\nabla}\overrightarrow{v}^{T})dv \qquad (3.29)$$

Le vecteur  $\vec{v}$  représente les vitesses microscopiques et  $\dot{\epsilon}(\vec{v})$  le taux de déformation associé.

D'autre part, on définit les tenseurs d'orientation  $a_2$  et  $a_4$  à partir des vecteurs orientation  $\overrightarrow{p}_k$  de chaque fibre :

$$\langle \boldsymbol{a_2} \rangle = \frac{1}{N} \sum_{k=1}^{N} \overrightarrow{p}_k \otimes \overrightarrow{p}_k \qquad et \qquad \langle \boldsymbol{a_4} \rangle = \frac{1}{N} \sum_{k=1}^{N} \overrightarrow{p}_k \otimes \overrightarrow{p}_k \otimes \overrightarrow{p}_k \otimes \overrightarrow{p}_k \quad (3.30)$$

avec N le nombre de fibres dans le volume V.



Volume V

FIG. 3.7 – Volume élémentaire représentatif (VER)

A chaque pas de temps, nous calculons les tenseurs d'orientation  $a_2$  et  $a_4$  avec les relations 3.30.

La figure 3.8 présente l'évolution de la première composante  $a_{11}$  du tenseur  $a_2$  illustré par des images du calcul. Avec ce type de représentation, nous allons pouvoir étudier l'influence du rapport de forme et de la concentration des particules en comparant le niveau d'orientation atteint à l'état stationnaire.

# 3.2.3 Conditions d'expérimentations

Les calculs ont été réalisés sur des géométries dans les quelles l'écoulement est tridimensionnel. On s'intéresse ici au calcul de l'orientation de 60 fibres sou mises à un écoulement newtonien de cisaillement simple. Les conditions aux limites appliquées à la cellule élémentaire sont les mêmes que celles décrites dans le chapitre 2 à la section 2.4.1. La force d'entraînement nécessaire à l'établissement de l'écoulement de cisaillement simple est de 1 N, on en déduit par la relation 3.29 la valeur de  $\dot{\gamma}$ . Pour tous les calculs, le pas de temps est de 0.01s et la valeur de la pénalisation assurant le mouvement rigide des particules est de 1000.

L'orientation initiale des fibres est isotrope <sup>3</sup>. Nous avons fait varier le rapport de forme  $\beta$  et la concentration  $\phi$  des particules. Le tableau 3.2 décrit les conditions d'expérimentations utilisées pour étudier l'effet de la concentration et du rapport de forme sur l'orientation d'une population de 60 fibres. Pour atteindre les différents régimes de concentration, nous avons fait varier le volume de la cellule élémentaire, afin de conserver un nombre de fibre constant. L'erreur statistique associée à cette population de fibres est



FIG. 3.8 – Exemple 3D d'un écoulement de 60 fibres de rapport de forme  $\beta = 6$  à la concentration  $\Phi = 4\%$ : évolution de la composante  $a_{11}$  du tenseur  $a_2$ , illustrée avec des images du calcul

alors donnée par l'expression suivante :

$$e_{sta} = \frac{1}{\sqrt{N}} = \frac{1}{\sqrt{60}} = 12,9\% \tag{3.31}$$

Les temps nécessaires, pour les calculs réalisés sur une station de travail équipée d'un

$\beta$	Concentration %	Régime de	$a_{11}$	$\dot{\gamma}$
	en vol.	${\bf concentration} \ {}^4$	à l'état stationnaire	$(s^{-1})$
	2	dilué	$0,\!58$	0,80
3	4	dilué	$0,\!5$	$0,\!68$
	2	dilué	0,6	0,4
6	4	semi-dilué	$0,\!65$	$0,\!59$
	8	semi-dilué	0,7	0,38
12	8	limite semi-dilué concentré	$0,\!87$	0,38
	15	concentré	0,56	0,22

#### TAB. 3.2 – Plan d'expérience numérique

processeur Intel Pentium IV cadencé à 3 GHz avec une mémoire vive dédiée de 512 Mo,

<sup>&</sup>lt;sup>3</sup>Il s'agit d'un tirage aléatoire réalisé avec le fonction random, ce qui explique que la valeur initiale de  $a_{11}$  du tenseur d'orientation  $a_2$  ne soit pas toujours égale à 0, 333.

 $<sup>{}^{4}</sup>$ Régime de concentration déterminé sur la figure 3.1

sont de l'ordre d'une semaine.

# 3.3 Etude de l'interaction entre fibres

# 3.3.1 Etudes des composantes d'orientation $a_2$

La figure 3.9 présente l'évolution dans le temps de toutes les composantes du tenseur d'orientation d'ordre deux,  $a_2$ .

On remarque que :

- l'ensemble des courbes d'évolution des composantes présente des oscillations. Ces oscillations peuvent être être associées au faible nombre de fibres (60 fibres) mais aussi aux mouvements plus au moins périodiques des particules (cisaillement simple). Ce mouvement est, bien entendu, très perturbé par la présence des particules voisines.
- les composantes  $a_{13}$  et  $a_{23}$  sont nulles, l'orientation des fibres soumises à un écoulement de cisaillement se fait donc dans le plan (1,2).
- la première composante  $a_{11}$  du tenseur  $a_2$  décrit l'orientation des fibres dans la direction d'écoulement. La courbe présente un pic d'orientation associé à l'orientation progressive des fibres dans cette direction, puis ensuite on observe un plateau autour de 0,7 qui correspond à l'état d'orientation stationnaire des fibres.
- les composantes  $a_{22}$  et  $a_{33}$  diminuent progressivement pour atteindre une valeur moyenne autour de 0,1.

L'analyse de ce tracé montre que dans le cas d'un écoulement de cisaillement simple, l'utilisation de la première composante du tenseur  $a_2$  est suffisante pour décrire la dynamique d'orientation.



FIG. 3.9 – Evolution des composantes du tenseur  $\mathbf{a_2}$  avec le temps pour une suspension de fibres, initialement orientées aléatoirement, de rapport de forme  $\beta = 6$  à la concentration de 4% (regime semi-dilué), Écoulement Newtonien de cisaillement simple

## 3.3.2 Influence de la concentration en fibres sur l'orientation

Les figures 3.10, 3.11 et 3.12 présentent l'évolution de la première composante du tenseur  $a_2$  en fonction de la concentration volumique en fibres pour un rapport de forme donné. L'analyse des tracés d'orientation montre :

- la présence d'oscillations qui peuvent être attribuées d'une part au faible nombre de fibres (60 particules soit une erreur statistique de 12,9%) et d'autre part à la formation d'amas de fibres. La figure 3.8 illustre bien ce phénomène. Si on se place au temps 20 s, on observe sur la courbe un léger décrochement qui est associé à la formation d'un amas de quelques fibres. D'autre part, on remarque que ces oscillations sont très marquées pour la suspension de fibres de rapport de forme  $\beta = 3$ . La suspension est, dans ce cas dans un régime diluée, les fibres sont donc libres de se déplacer sans interagir avec d'autres particules. Ces oscillations peuvent être attribuées à des mouvements périodiques des particules.
- un niveau d'orientation à l'état stationnaire inférieur pour les suspensions les plus concentrées quelque soit le rapport de forme des particules. Ce phénomène est néanmoins plus marqué pour les suspensions de fibres de rapport de forme  $\beta = 12$ . On obtient alors une valeur de la première composante du tenseur  $a_2$  voisine de 0,87 pour une suspension concentrée à 8% en volume et une valeur de 0,56 pour une concentration de 15% en volume.



FIG. 3.10 – Effet de la concentration en fibre sur l'orientation de 60 fibres de rapport de forme  $\beta = 3$  initialement orientées aléatoirement : évolution de la composante  $a_{11}$  du tenseur  $a_2$  dans le cas d'un écoulement Newtonien de cisaillement simple

En conclusion, lorsqu'on augmente la fraction volumique de fibres, la suspension de fibres a tendance à moins bien s'orienter dans la direction d'écoulement. Le niveau d'orientation tend alors vers l'isotropie dans le cas des suspensions concentrées. Ce résultats est intéressant dans la mesure où il va dans le sens des expérimentations Folgar et Tucker sur le coefficient d'interaction  $C_i$ 

#### 3.3.3 Influence du rapport de forme des fibres sur l'orientation

Les figures 3.13 et 3.14 présentent l'évolution de la première composante du tenseur  $a_2$  en fonction du rapport de forme des particules pour une concentration volumique donnée.

Deux concentrations ont été considérées,  $\Phi = 4$  et 8%. L'analyse des tracés d'orientation montre que le niveau d'orientation atteint à l'état stationnaire est plus important pour les suspensions de rapport de forme plus grand. On observe ainsi, un plateau au voisinage de 0,7 pour la première composante du tenseur  $a_2$  pour une suspension de fibres de rapport de forme  $\beta = 6$  alors que le niveau d'orientation atteint pour une suspension de fibres plus courtes ( $\beta=3$ ) est de l'ordre de 0,5. D'autre part, si on s'interesse à la zone transitoire de la courbe correspondant à l'orientation progressive des fibres dans la direction d'écoulement, on observe que le temps d'établissement (normalisé par la période T) du regime stationnaire est sensiblement le même pour toutes les suspensions sauf pour la suspension chargée à 8% de fibres de rapport de forme  $\beta=6$ .



FIG. 3.11 – Effet de la concentration en fibre sur l'orientation de 60 fibres de rapport de forme  $\beta = 6$  initialement orientées aléatoirement : évolution de la composante  $a_{11}$  du tenseur  $a_2$  dans le cas d'un écoulement Newtonien de cisaillement simple

Le niveau d'orientation atteint à l'état stationnaire est plus important pour les suspensions de rapport de forme plus grand.

### **3.3.4** Etude du coefficient d'interaction $C_i$

#### 3.3.4.1 Modèle avec coefficient de diffusion

Nous utilisons le modèle proposé par Folgar et Tucker [56]. L'équation d'évolution du tenseur des orientations d'ordre deux  $a_2$  s'écrit :

$$\frac{D\boldsymbol{a_2}}{Dt} = -(\boldsymbol{\Omega}\boldsymbol{a_2} - \boldsymbol{a_2}\boldsymbol{\Omega}) + \lambda(\dot{\boldsymbol{\epsilon}}(\overrightarrow{\boldsymbol{u}})\boldsymbol{a_2} + \boldsymbol{a_2}\dot{\boldsymbol{\epsilon}}(\overrightarrow{\boldsymbol{u}}) - 2\dot{\boldsymbol{\epsilon}}(\overrightarrow{\boldsymbol{u}})\boldsymbol{a_4} + C_i\dot{\bar{\gamma}}(I - d\boldsymbol{a_2})) \quad (3.32)$$

avec d la dimension de l'espace.

Nous proposons de chercher la solution stationnaire de cette équation dans le cas d'un écoulement de cisaillement et d'une approximation de fermeture quadratique.



FIG. 3.12 – Effet de la concentration en fibre sur l'orientation de 60 fibres de rapport de forme  $\beta = 12$  initialement orientées aléatoirement : évolution de la composante  $a_{11}$  du tenseur  $a_2$  dans le cas d'un écoulement Newtonien de cisaillement simple

Le champ des vitesses d'un écoulement de cisaillement simple dans le plan  $(x_1, x_2)$  s'écrit :

$$\vec{u} = \begin{vmatrix} \dot{\gamma}x_2 \\ 0 \\ 0 \end{vmatrix}$$
(3.33)

Nous en déduisons facilement le tenseur des taux de déformation :

$$\dot{\boldsymbol{\epsilon}}(\overrightarrow{\boldsymbol{u}}) = \begin{pmatrix} 0 & \frac{\dot{\boldsymbol{\gamma}}}{2} & 0\\ \frac{\dot{\boldsymbol{\gamma}}}{2} & 0 & 0\\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix}$$
(3.34)

On cherche le tenseur  $a_2$  sous la forme suivante :

$$\boldsymbol{a_2} = \begin{pmatrix} a_{11} & a_{12} & a_{13} \\ a_{21} & a_{22} & a_{23} \\ a_{31} & a_{32} & a_{33} \end{pmatrix}$$
(3.35)



FIG. 3.13 – Effet du rapport de forme des fibres sur l'orientation de 60 fibres initialement orientées aléatoirement de concentration de 4%, Evolution de la composante  $a_{11}$  du tenseur  $a_2$  dans le cas d'un écoulement Newtonien de cisaillement simple

La relation 3.32 nous donne le système d'équations suivant :

$$a_{21} (\lambda \ a_{11} - \ K_1) + \ C_i \ (3a_{11} - 1) = 0 \tag{3.36}$$

$$-K_2 a_{11} - K_1 a_{22} + 2 \lambda a_{21}^2 + 6 C_i a_{21} = 0 (3.37)$$

$$-K_1 a_{32} + 2 \lambda a_{21} a_{31} + 6 C_i a_{31} = 0 (3.38)$$

$$-K_2 a_{21} + \lambda a_{21} a_{22} + C_i (3 a_{22} - 1) = 0$$
(3.39)

$$-K_1 a_{31} + 2 \lambda a_{21} a_{32} + 6 C_i a_{32} = 0 (3.40)$$

$$\lambda \ a_{21} \ a_{33} + C_i \ (3 \ a_{33} - 1) = 0 \tag{3.41}$$

avec  $K_1 = \frac{\lambda + 1}{2}$  et  $K_2 = \frac{\lambda - 1}{2}$ .

Sachant que  $a_{11} + a_{22} + a_{33} = 1$ , on peut simplifier le problème en éliminant une des équations (3.36)-(3.39)-(3.41). En posant que  $a_{31} = a_{32} = 0$  (3.38)-(3.40), le système



FIG. 3.14 – Effet du rapport de forme des fibres sur l'orientation de 60 fibres initialement orientées aléatoirement de concentration de 8%, Evolution de la composante  $a_{11}$  du tenseur  $a_2$  dans le cas d'un écoulement Newtonien de cisaillement simple

d'équations se réduit à :

$$a_{21}(a_{11}-1) + C_i(3a_{11}-1) = 0 (3.42)$$

$$-a_{22} + 2 a_{21}^2 + 6 C_i a_{21} = 0 (3.43)$$

$$a_{21} a_{22} + C_i (3 a_{22} - 1) = 0 (3.44)$$

$$a_{11} + a_{22} + a_{33} = 1 \tag{3.45}$$

En exprimant  $a_{11}$  et  $a_{22}$  en fonction  $a_{21}$ , on obtient finalement une équation du 3ème degré en  $a_{21}$  qui a une seule solution réelle. On a alors :

$$\begin{cases} a_{11} = \frac{a_{21} (\lambda + 1) + 2 C_i}{2 (\lambda a_{21} + 3 C_i)} \\ a_{22} = \frac{a_{21} (\lambda - 1) + 2 C_i}{2 (\lambda a_{21} + 3 C_i)} \end{cases}$$

$$(3.46)$$

$$- \text{ pour } \lambda = 1, \text{ on a} \\ a_{21} = \frac{X^{2/3} + 4 C_i^2 - 4 C_i X^{1/3}}{2 X^{1/3}}$$

$$(3.47)$$

avec

$$X = 8 C_i^3 + 2 C_i + 2\sqrt{C_I^2 (8 C_i^2 + 1)}$$

$$- \text{ pour } \lambda < 1$$

$$a_{21} = \frac{X^{2/3} + 36 C_i^2 + 3 (-1 + \lambda^2) - 12 C_i X^{1/3}}{6 \lambda X^{1/3}}$$
(3.48)

$$X = 54 C_i + 216 C_i^3 + 3\sqrt{-3 \lambda^6 + 9 \lambda^4 - 108 \lambda^4 C_i^2 - 9\lambda^2 + 216 C_i^2 \lambda^2 - 1296 \lambda^2 C_i^4 + 3 + 216 C_i^2 + 3888 C_i^4}$$

$$(3.49)$$

– pour  $C_i \rightarrow 0$ , on peut approcher les coefficients par les expressions suivantes :

$$\begin{cases}
 a_{11} = 1 - (4 C_i)^{\frac{2}{3}} \\
 a_{22} = \frac{1}{2} (4 C_i)^{\frac{2}{3}} \\
 a_{21} = \frac{1}{2} (4 C_i)^{\frac{1}{3}}
 \end{cases}$$
(3.50)

– pour  $C_i = 0$ , on a les valeurs limites suivantes

$$\begin{cases}
a_{11} = \frac{1+\lambda}{3-\lambda} \\
a_{22} = a_{33} = \frac{1-\lambda}{3-\lambda} \\
a_{21} = 0
\end{cases}$$
(3.51)

Les figures 3.15 a) et 3.15 b) présentent l'évolution de  $a_{11}$  et  $a_{21}$  en fonction de  $C_i$  pour des valeurs différentes de  $\beta$ . On observe que les formules asymptotiques (3.50-3.51) sont valables pour  $C_i < 10^{-2}$ , tandis que l'on voit une influence sensible sur l'orientation pour  $C_i > 10^{-2}$ .



FIG. 3.15 – Evolution de la composante  $a_{11}$  et  $a_{21}$  du tenseur  $a_2$  avec le coefficient d'interaction  $C_i$  -Résolution analytique de l'équation de Folgar et Tucker [56] avec une approximation de fermeture quadratique dans le cas d'un écoulement Newtonien de cisaillement simple tridimensionnel

# **3.3.4.2** Détermination de $C_i$ connaissant l'évolution de $a_2$

On se propose maintenant de déterminer le coefficient d'interaction  $C_i$  à partir de l'équation de Folgar et Tucker [56].

La difficulté vient du fait que le coefficient d'interaction  $C_i$  est un scalaire et que nous avons 5 équations à résoudre. Nous avons choisi de déterminer ce paramètre à partir de l'évolution de la composante  $a_{11}$  du tenseur  $a_2$ . Pour cela, on se place à l'état stationnaire. Nous connaissons le niveau d'orientation moyen atteint à l'état stationnaire pour chaque condition. Il nous est alors possible de déterminer la valeur du  $C_i$  sur la figure 3.15 a) et b).

On considère dans ce cas que l'utilisation d'une approximation de fermeture quadratique est valable pour décrire le comportement d'une suspension de fibres soumise à un écoulement de cisaillement simple.

Dans un deuxième temps, nous avons exprimé le coefficient d'interaction  $C_i$  sous forme d'un tenseur. Connaissant l'évolution du tenseur  $a_2$ , du tenseur  $a_4$  et des taux de déformation avec le temps, nous avons pu déterminer ce tenseur d'interaction en résolvant l'équation de Folgar et Tucker. Le paramètre  $C_i$  est ensuite déduit de la moyenne de la trace de ce tenseur d'interaction. L'analyse des résultats a montré que les valeurs du coefficient d'interaction obtenues étaient du même ordre de grandeur que celles obtenues avec la première méthode.

## 3.3.4.3 Résultats et analyses

Les résultats des calculs sont présentés dans le tableau 3.3 et sur la figure 3.16.

Les valeurs calculées sont supérieures aux valeurs de la littérature. L'analyse des résultats montre que le coefficient d'interaction  $C_i$  augmente avec la fraction volumique de fibres mais diminue avec le rapport de forme (pour une concentration donnée). Les tendances obtenues sont en accord avec les mesures expérimentales de Folgar et Tucker [56] et les calculs numériques de Phan-Thien [31] mais sont en contradiction avec les prédictions de Bay [9]. Notons, cependant, que nos calculs ont été réalisés avec des suspensions de rapport de forme inférieur à 20, rapport de forme 4 à 5 fois plus petit que ceux utilisés expérimentalement par Folgar et Tucker ou encore ceux de Phan-Thien. Ce dernier point est important dans la mesure où il peut expliquer nos résultats. En effet, si le facteur de forme est supérieur ou égal à 20 alors le facteur  $\lambda$  est proche de 1. On est donc dans la configuration où  $C_i$  n'est pas une fonction du rapport de forme des fibres. Notre étude du coefficient d'interaction  $C_i$  inclut donc deux effets, l'influence de la concentration et du rapport de forme des fibres.

Rapport de forme $\beta$	Concentration $\%$ en vol.	Coefficient d'interaction $C_i$
3	2	0.0891
	4	0.1412
6	4	0.05
	8	0.07
12	8	0.0158
	15	0.1258

TAB. 3.3 – Calcul numérique du coefficient d'interaction  $C_i$ 



FIG. 3.16 – Valeurs du coefficient d'interaction  $C_i$  calculé avec le modèle directe. Confrontation avec les calculs de Phan [31], les mesures de Bay [9] et de Folgar et Tucker [56]

## 3.3.4.4 Validation de l'approche

On se propose de valider l'approche utilisée pour calculer le coefficient d'interaction  $C_i$  en confrontant l'évolution du tenseur  $a_2$  calculé par simulation directe, à l'évolution du tenseur  $a_2$  issue de la résolution de l'équation de Folgar et Tucker.

Dans le cas d'un écoulement de cisaillement simple, en utilisant une approximation de fer-

meture quadratique, il est possible d'obtenir une solution analytique pour les composantes du tenseur  $a_2$ .

Pour cela, nous intégrons les équations suivantes :

$$\dot{a}_{11} = -6 C_I a_{11} + (\lambda + 1) a_{12} - 2\lambda a_{11} a_{12} + 2 C_I$$
$$\dot{a}_{22} = -6 C_I a_{22} + (\lambda - 1) a_{12} - 2\lambda a_{22} a_{12} + 2 C_I$$
$$\dot{a}_{12} = \frac{\lambda + 1}{2} a_{11} + \frac{\lambda - 1}{2} a_{22} - 6 C_I a_{12} - 2\lambda a_{12} a_{12}$$

On s'intéresse à la suspension de fibres de rapport de forme  $\beta = 6$  et de concentration  $\Phi = 4\%$ . Nous avons calculé un coefficient d'interaction  $C_i = 0, 05$ .

La figure 3.17 présente l'évolution des composantes  $a_{11}$ ,  $a_{22}$  et  $a_{12}$ . L'évolution des composantes du tenseur  $a_2$  est confrontée aux valeurs issues de la résolution de l'équation de Folgar et Tucker (noté analytique sur la courbe) pour un coefficient d'interaction  $C_i = 0,05$  et une approximation de fermeture quadratique.



FIG. 3.17 – Comparaison de l'évolution des composantes  $a_{11}$ ,  $a_{22}$  et  $a_{12}$  issues de la simulation, avec l'évolution des composantes calculées via l'équation de Folgar et Tucker [56]  $(C_i = 0,05 + approximation orthotrope)$ 

La valeur proposée du coefficient d'interaction  $C_i$  est valable. Nous retrouvons la valeur du plateau d'orientation pour la composantes  $a_{11}$  et  $a_{22}$ . L'évolution de la composante  $a_{12}$  est inférieure aux valeurs de la solution analytique mais nous capturons le pic d'orientation liée à l'orientation des fibres dans la direction d'écoulement. Cette différence peut s'expliquer par le choix de l'approximation de fermeture.

Ce dernier point laisse envisager la possibilité d'exprimer le coefficient d'interaction  $C_i$  de manière anisotrope, c'est à dire de proposer une valeur de  $C_i$  pour chaque direction de l'espace. Or des calculs supplémentaires, considérant le coefficient d'interaction comme un tenseur anisotrope, n'ont pas montré une influence sur l'évolution de la composante  $a_{12}$ . Nous pensons donc que le choix de l'approximation de fermeture peut expliquer ce décalage.
# 3.4 Etude des approximations de fermetures

## 3.4.1 Principe

On se propose ici d'étudier la performance de différentes approximations de fermeture. Pour cela, nous allons confronter l'évolution du tenseur  $a_4$  obtenue par calcul direct, noté  $a_4 mesuré$  avec l'évolution du tenseur  $a_4$  calculé avec une relation de fermeture, on le nommera par le suite  $a_4 modèle$ . Ce dernier est une fonction du tenseur  $a_2 mesuré$ . Le principe est donc très simple, on compare :

 $a_4 mesuré$  avec  $a_4 modèle = fonction(a_2 mesuré)$ 

# 3.4.2 Résultats et analyses

On s'interesse aux composantes  $a_{1111}$  et  $a_{1212}$  du tenseur  $a_4$ . Cette dernière composante intervient dans les modèles de comportement rhéologique si on se place dans le cas d'un écoulement Newtonien de cisaillement simple.

On se propose d'étudier les approximations de fermeture quadratique, linéaire et hybride ainsi que trois approximations de fermetures orthotropes : l'approximation ORS pour *Orthotropic Smooth*, l'approximation ORF pour *Orthotropic Fitted* et sa version améliorée par Wetzel et Tucker [75] que l'on notera WET.

On s'intéresse ici à l'orientation d'une suspension de fibres concentrée à 8% de fibres de rapport de forme  $\beta = 12$ . L'écoulement étudié est un écoulement de cisaillement simple newtonien. L'état d'orientation initiale des fibres est quasiment aléatoire.

**Evolution de la composante**  $a_{1111}$  La figure 3.18 présente l'évolution de la première composante  $a_{1111}$  des tenseurs  $a_{4 mesuré}$  et  $a_{4 modèle}$  calculés avec les approximations de fermeture quadratique, linéaire et hybride (qui est une combinaison linéaire des deux dernières).

L'analyse des tracés d'orientation montre que ces approximations de fermeture sousestiment l'état d'orientation mesuré à l'état stationnaire. Les approximations de fermeture quadratique et hybride ont un comportement semblable ce qui est rassurant sachant que l'approximation quadratique est exacte dans le cas d'une orientation isotrope.

Également pour la première composante des tenseurs  $a_{4 mesuré}$  et  $a_{4 modèle}$ , la figure 3.19 concerne cette fois les approximations de fermeture orthotropes. On remarque que ces approximations capturent bien l'évolution de l'orientation sauf dans la zone d'orientation transitoire. L'état d'orientation initial est mal estimé pour les trois approximations de fermetures .

Dans ce cas, si on souhaite effectuer un calcul 3D de prédiction d'orientation en résolvant l'équation de Folgar et Tucker, avant de choisir l'approximation de fermeture, il est nécessaire d'estimer avec précision les temps de remplissage. Si on se situe dans la zone d'orientation transitoire, le choix de l'approximation de fermeture est alors délicat. L'approximation ORF apparaît être un bon compromis.



FIG. 3.18 – Evolution de la première composante  $a_{1111}$  du tenseur  $a_4$  dans le cas d'un écoulement de cisaillement simple, suspension concentrée à 8% de fibres de rapport de forme  $\beta = 12$ . Confrontation avec les approximations de fermetures Quadratique, Linéaire et Hybride

**Evolution de la composante**  $a_{1212}$  On s'intéresse maintenant à l'évolution de la composante  $a_{1212}$  du tenseur  $a_4$ . La figure 3.20 présente l'évolution de la composante  $a_{1212}$  du tenseur  $a_4$  mesuré et du tenseur  $a_4$  modèle.

L'analyse des tracés montre que :

- l'approximation linéaire, exacte pour une orientation unidirectionnelle des fibres, n'est pas valable pour décrire le comportement de la composante  $a_{1212}$  du tenseur  $a_4$ .
- les approximations quadratiques et hybride présentent un comportement similaire. Elles décrivent bien le pic d'orientation lié à l'orientation des fibres dans la direction d'écoulement mais sous estiment la valeur maximum. A l'état stationnaire, l'approximation quadratique prédit des valeurs de  $a_{1212}$  nulle, ce qui s'explique par le fait que nous ne sommes pas dans le domaine de validité de l'approximation. (Cette approximation n'est en fait valable que pour une orientation des fibres isotropes). L'approximation hybride apparaît être un bon compromis pour décrire le comportement d'une suspension soumise à un écoulement de cisaillement simple. Elle prédit correctement le pic d'orientation mais pas sa valeur maximale. De plus, elle présente un niveau d'orientation à l'état stationnaire légèrement inférieur au calcul direct, mais reste la meilleure approximation de fermeture testée



FIG. 3.19 – Evolution de la première composante  $a_{1111}$  du tenseur  $\mathbf{a_4}$  dans le cas d'un écoulement de cisaillement simple, suspension concentrée à 8% de fibres de rapport de forme  $\beta = 12$ . Confrontation avec les approximations orthotropes ORS, ORF et WET

Par ailleurs, si on trace les prédictions de la composante  $a_{1212}$  avec les trois approximations de fermeture orthotropes, le résultat de la figure 3.21 est surprenant.

On remarque que les approximations de fermetures orthopes de type "smooth" et l'approximation proposé par Wetzel ne sont pas correctes pour décrire le comportement de la composante  $a_{1212}$ . Cependant, on peut noter que l'approximation orthotrope "fitted" proposée par Adavni et Tucker [71] prédit le pic d'orientation et les mêmes tendances que l'évolution  $a_{1212}$  calculée par simulation directe mais présente des valeurs négatives.



FIG. 3.20 – Evolution de la composante  $a_{1212}$  du tenseur  $\mathbf{a_4}$  dans le cas d'un écoulement de cisaillement simple, suspension concentrée à 8% de fibres de rapport de forme  $\beta = 12$ . Confrontation avec les approximations de fermetures Quadratique, Linéaire et Hybride

# 3.5 Conclusions du chapitre 3

Dans ce chapitre, nous avons présenté l'étude numérique d'une suspension de fibres par simulation directe.

Dans une première partie, nous avons décrit les modèles dit *statistiques* de prédiction d'orientation d'une population de fibres pour des régimes de concentration dilués à semidilués. Cette étude théorique a permis de mettre en évidence deux difficultés dans la prédiction de l'orientation de fibres.

- La première difficulté est la prise en compte des interactions hydrodynamiques et des interactions entre fibres dans une suspension semi-concentrée à concentrée. Pour ce faire, Folgar et Tucker propose d'utiliser une approche phénoménologique, en ajoutant à l'équation de Jeffery un coefficient, noté  $C_i$ , qui rend compte des interactions entre particules. Toute la difficulté réside dans la détermination de ce coefficient d'interaction. Ce coefficient peut être obtenu soit par des mesures expérimentales, ce qui est difficilement effectué en pratique, soit par des calculs numériques. Or, les résultats de la littérature montrent des contradictions dans les valeurs de ce terme.
- La deuxième difficulté est le choix de l'approximation de fermeture. Cette relation est nécessaire à la résolution du modèle de Folgar et Tucker. La littérature dans ce do-



FIG. 3.21 – Evolution de la composante  $a_{1212}$  du tenseur  $\mathbf{a_4}$  dans le cas d'un écoulement de cisaillement simple, suspension concentrée à 8% de fibres de rapport de forme  $\beta = 12$ . Confrontation avec les approximations orthotropes ORS, ORF et WET

maine est abondante et les performances de ces approximations vont alors dépendre du type d'écoulement considéré, de l'état d'orientation initiale des fibres et de la valeur du coefficient d'interaction.

C'est dans ce contexte que nous avons proposé d'étudier la dynamique d'orientation d'une population de fibres lors d'un écoulement de cisaillement simple. Cette étude numérique, réalisée avec le modèle de simulation directe décrit dans le chapitre précédent, s'est décomposée en deux parties :

- Compréhension des phénomènes d'interaction : Etude de l'influence de la concentration et du rapport de forme des fibres sur les phénomènes d'interactions entre particules.
- Etude du modèle statistique de Folgar et Tucker : Détermination du coefficient d'interaction  $C_i$  et des performances des approximations de fermeture.

Etude des interactions entre particules Le calcul via la simulation directe nous a permis d'obtenir l'évolution du tenseur  $a_2$ , du tenseur  $a_4$  et du taux de cisaillement moyen dans le volume de calcul. A partir de ces données, il nous a été possible d'étudier les phénomènes d'interaction entre particules en fonction de la concentration et du rapport de forme des fibres.

Nous avons montré que :

- Le niveau d'orientation atteint à l'état stationnaire tend vers l'isotropie dans le cas de suspensions concentrées. Les fibres ont tendance à moins bien s'orienter dans la direction d'écoulement lorsque que l'on augmente la concentration de fibres. Ces résultats suivent la théorie de Folgar et Tucker sur le coefficient d'interaction  $C_i$ .
- Le niveau d'orientation atteint à l'état stationnaire est plus important pour des suspensions de fibres de rapport de forme plus grand.

#### Etude du modèle statistique

- <u>Calcul du coefficient d'interaction  $C_i$ </u> Nous avons proposé une méthode de détermination du coefficient d'interaction  $C_i$  en fonction de la concentration et du rapport de forme des fibres. Pour un écoulement stationnaire de cisaillement simple, il existe une solution analytique pour l'équation de Folgar et Tucker. En utilisant une approximation de fermeture quadratique, hypothèse satisfaisante dans le cas d'un écoulement de cisaillement simple, nous avons proposé une Abaque qui permet d'obtenir l'évolution des composantes du tenseur  $a_2$  en fonction du coefficient d'interaction  $C_i$  et ce pour différents rapport de forme. Ainsi à partir d'un calcul de simulation directe, connaissant la valeur moyenne du tenseur d'orientation atteinte à l'état stationnaire, il nous a été possible de déterminer la valeur de  $C_i$ .

Les résultats obtenus montrent que la valeur du  $C_i$  augmente avec la concentration mais diminue avec le rapport de forme des fibres (pour une concentration donnée). Les tendances sont en accord avec les valeurs expérimentales de Folgar et Tucker et les calculs numériques de Phan-Thien. Cette approche a été validée en confrontant l'évolution du tenseur  $a_2$  issue de la résolution avec une approximation de fermeture quadratique de l'équation de Folgar et Tucker avec le coefficient d'interaction  $C_i$  calculé avec le modèle. Nos résultats sont en accord avec les prédictions de Folgar et Tucker.

- Test des approximations de fermeture Nous avons proposé une méthode de test des approximations de fermeture. Cette méthode consiste à comparer deux évolutions du tenseur  $a_4$ : l'une issue de la simulation directe, et l'autre calculée en appliquant une relation de fermeture à l'évolution du tenseur  $a_2$  obtenue par la simulation. Les résultats ont montré que, dans le cas d'un écoulement de cisaillement simple, les approximations hybrides et orthotropes permettent de décrire correctement l'évolution de la première composante de  $a_4$ . Les approximations orthotropes présentent un comportement non physique pour la prédiction de la composante de  $a_{1212}$  du tenseur  $a_4$ .

Ce travail ouvre plusieurs perspectives de recherche pour la compréhension des phénomènes d'interaction entres particules. Il serait intéressant de reconduire les essais en étudiant l'influence d'autres types d'écoulements. D'autre part, afin de s'affranchir des effets du rapport de forme sur l'orientation, il serait nécessaire de travailler avec des rapports de forme plus grand  $\beta > 20$ .

# Chapitre 4

# Etude du comportement rhéologique

C<sup>E</sup> chapitre est consacré à l'étude du comportement rhéologique d'une suspension de fibres. Au cours du remplissage d'un moule d'injection, les fibres de verre s'orientent sous l'influence de l'écoulement. Réciproquement, les propriétés rhéologiques du matériau mis en forme sont très largement influencées par l'état d'orientation des fibres et celui ci affecte à son tour le profil de l'écoulement. Le comportement global de la suspension de fibres est donc un problème complexe.

Dans une première partie, nous présenterons l'état de l'art dans le domaine de la caractérisation et de la modélisation des suspensions de fibres de verre longues. Une deuxième partie présentera les mesures expérimentales réalisées sur un polypropylène renforcé de fibres courtes et longues. Enfin, nous présenterons l'approche numérique adoptée pour caractériser le comportement rhéologique d'une suspension de fibres.

#### Contents

4.1 E	tude biblio	graphique
4.1	.1 Modèles	de comportement $\ldots \ldots 143$
	4.1.1.1	Forme générale de l'équation de contrainte 143
	4.1.1.2	Approche basée sur la théorie des corps élancés 145
	4.1.1.3	Suspensions de particules sphéroïdales
	4.1.1.4	Conclusions sur les modèles de comportement 149
4.1	2 Mesures	expérimentales
	4.1.2.1	Viscosité en Cisaillement 150
	4.1.2.2	Lien avec les modèles et paradoxe
	4.1.2.3	Mesure de $N_p$
4.1		ion sur l'étude bibliographique
4.2 E	tude rhéon	nétrique des suspensions de fibres longues 154
4.2	2.1 Matéria	ux utilisés
4.2	2.2 Techniq	ues rhéométriques utilisées 154
	4.2.2.1	Rhéométrie Capillaire
	4.2.2.2	Rhéomètrie plan-plan
4.2	2.3 Résultat	58

		4.2.3.1	Rhéométrie plan-plan
		4.2.3.2	Rhéométrie Capillaire
		4.2.3.3	Choix des capillaires
	4.2.4	Conclus	ion sur l'étude rhéologique expérimentale
4.3	Etuc	le numé	rique du comportement rhéologique 168
	4.3.1	Objectif	s de l'étude
	4.3.2	Détermi	nation de la viscosité d'un volume représentatif de fibres 168
		4.3.2.1	Principe
		4.3.2.2	Evolution de la viscosité avec le temps
	4.3.3	Loi de c	omportement rhéologique
		4.3.3.1	Principe
		4.3.3.2	Evolution de la composante $a_{1122}$ du tenseur $a_4$ 177
		4.3.3.3	Mesure du paramètre $N_p$
	4.3.4	Conclus	ion de l'étude numérique 181
<b>4.4</b>	Con	clusions	du chapitre 4

# 4.1 Etude bibliographique

#### 4.1.1 Modèles de comportement

Dans cette section, nous présentons les principaux modèles rhéologiques tenant compte de la contribution des fibres au tenseur des contraintes macroscopiques. Deux approches basées sur la forme des particules sont classiquement utilisées pour mettre en place un modèle. La première approche utilise les résultats connus sur les sphéroïdes en suspension en s'appuyant sur les résultats de Jeffery. L'autre méthode, largement développée, considère les particules comme des fibres infiniment minces. D'autres théories pour calculer la contribution des fibres au tenseur des contraintes, notamment celles basées sur les travaux de Doï et Edwards, seront par la suite abordées.

#### 4.1.1.1 Forme générale de l'équation de contrainte

Dans toutes les théories, la particule est supposée petite devant les dimensions de l'écoulement. Plusieurs modèles de comportement ont été proposés pour des suspensions de fibres rigides dans un fluide newtonien. Ces modèles sont issus d'une approche micromécanique.

L'obtention de la loi de comportement se fait par des techniques d'homogénéisation classiques : les grandeurs macroscopiques sont définies comme étant les moyennes spatiales, sur un certain volume représentatif, des grandeurs microscopiques associées.

**Homogénéisation** De la même façon que dans la section 3.2.2 du chapitre 3, les grandeurs macroscopiques sont définies comme étant les moyennes spatiales sur le volume V des grandeurs microscopiques associées. Ainsi le champ des vitesses macroscopiques  $\vec{u}$  et son taux de déformations  $\dot{\epsilon}(\vec{u})$  s'écrivent :

$$\overrightarrow{u} = \langle \overrightarrow{v} \rangle = \frac{1}{V} \int_{V} \overrightarrow{v} \, dv \tag{4.1}$$

$$\dot{\boldsymbol{\epsilon}}(\overrightarrow{\boldsymbol{u}}) = \frac{1}{2} (\boldsymbol{\nabla} \overrightarrow{\boldsymbol{u}} + \boldsymbol{\nabla} \overrightarrow{\boldsymbol{u}}^T) = \frac{1}{V} \int_V \dot{\boldsymbol{\epsilon}}(\overrightarrow{\boldsymbol{v}}) d\boldsymbol{v} = \frac{1}{2V} \int_V (\boldsymbol{\nabla} \overrightarrow{\boldsymbol{v}} + \boldsymbol{\nabla} \overrightarrow{\boldsymbol{v}}^T) d\boldsymbol{v}$$
(4.2)

Le vecteur  $\vec{v}$  représente les vitesses microscopiques et  $\dot{\epsilon}(\vec{v})$  le taux de déformation associé. Si nous représentons le champ des vitesses microscopiques par l'expression :

$$\overrightarrow{v} = \overrightarrow{u} + \overrightarrow{u}' \tag{4.3}$$

où le vecteur  $\overrightarrow{u}'$  symbolise les fluctuations de vitesse tels que  $\langle \overrightarrow{u}' \rangle = 0$ , alors le tenseur des contraintes macroscopiques est défini de la manière suivante :

$$\boldsymbol{T} = \frac{1}{V} \int_{V} (\boldsymbol{\tau} - \rho \, \overrightarrow{\boldsymbol{u}}' \times \overrightarrow{\boldsymbol{u}}') d\boldsymbol{v}$$
(4.4)

avec  $\tau$  le tenseur des contraintes microscopiques et  $\rho$  la densité moyenne de la suspension considérée. Si la matrice a un comportement newtonien de viscosité  $\eta$ , alors les contraintes microscopiques dans le fluide ont pour expression :

$$\boldsymbol{\tau} = -p\boldsymbol{I_d} + 2\eta \dot{\boldsymbol{\epsilon}}(\overrightarrow{v}) \tag{4.5}$$

Le taux de déformation macroscopique s'exprime en fonction des contributions dues au fluide et à la contribution des fibres :

$$\dot{\boldsymbol{\epsilon}}(\overrightarrow{u}) = \frac{1}{V} \int_{V} \dot{\boldsymbol{\epsilon}}(\overrightarrow{v}) dv = \frac{1}{V} \int_{V-\sum V_{i}} \dot{\boldsymbol{\epsilon}}(\overrightarrow{v}) dv + \sum_{i} \int_{V_{i}} \dot{\boldsymbol{\epsilon}}(\overrightarrow{v}) dv$$
(4.6)

qui en supposant que les particules sont rigides, se réduit à :

$$\dot{\boldsymbol{\epsilon}}(\overrightarrow{\boldsymbol{u}}) = \frac{1}{V} \int_{V} \dot{\boldsymbol{\epsilon}}(\overrightarrow{\boldsymbol{v}}) d\boldsymbol{v} = \frac{1}{V} \int_{V-\sum V_{i}} \dot{\boldsymbol{\epsilon}}(\overrightarrow{\boldsymbol{v}}) d\boldsymbol{v}$$
(4.7)

En utilisant les équations 4.4, 4.5, 4.7 et en supposant que le nombre de Reynolds est petit devant 1 (ce qui est le cas en général en mise en oeuvre des polymères), le tenseur des contraintes macroscopiques prend pour expression :

$$T = -PI_d + 2\eta \dot{\boldsymbol{\epsilon}}(\overrightarrow{\boldsymbol{u}}) + \boldsymbol{\Sigma}_p \tag{4.8}$$

avec

$$\Sigma_{\boldsymbol{p}} = \frac{1}{V} \sum_{i} \int_{S_{i}} \boldsymbol{\tau} . \overrightarrow{\boldsymbol{n}} \times x ds \tag{4.9}$$

où  $\overrightarrow{n}$  est la normale extérieure à la surface  $S_i$  de la particule (i) et x représente la position du point courant.

**Forme Générale** Pour obtenir une estimation de la contribution des fibres au tenseur des contraintes macroscopique, il est nécessaire de faire des hypothèses sur la forme des particules et la concentration de la solution. Les modèles classiques sont présentés dans les sections suivantes. Dans tous les cas, la relation entre les tenseurs des contraintes et les taux de déformations macroscopiques, pour une suspension de particules axisymétriques, peut être mise sous la forme suivante d'après Tucker [1] :

$$\boldsymbol{T} = -P\boldsymbol{I_d} + 2\eta_1\{ \dot{\boldsymbol{\epsilon}}(\overrightarrow{u}) + N_s[\dot{\boldsymbol{\epsilon}}(\overrightarrow{u}) \ \boldsymbol{a_2} + \boldsymbol{a_2} \ \dot{\boldsymbol{\epsilon}}(\overrightarrow{u})] + N_p \ \dot{\boldsymbol{\epsilon}}(\overrightarrow{u}) \ : \boldsymbol{a_4} \}$$
(4.10)

Les termes  $\eta_1$ ,  $N_p$ , et  $N_s$  sont des paramètres rhéologiques qui s'expriment en fonction de la viscosité du fluide, de la concentration de la suspension et du facteur de forme des particules. Le dernier terme décrit le couplage entre les forces hydrodynamiques et l'orientation des fibres. Pour des grands facteurs de forme, le paramètre  $N_s$  est négligeable devant  $N_p$ .

On se propose dans la section suivante de donner l'expression de ces paramètres rhéologiques en fonction de approches utilisées dans la littérature.

#### 4.1.1.2 Approche basée sur la théorie des corps élancés

De nombreux modèles de suspensions incorporent dans leur développement des résultats de la théorie des **corps élancés**, Batchelor [34], Cox [76]. Les résultats de cette théorie sont utilisés afin de calculer la perturbation due à la présence d'un corps dans un écoulement de fluide visqueux à faible nombre de Reynolds (écoulement de Stokes). L'hypothèse de base de cette théorie est que la perturbation due à la présence des particules dans le fluide est décrite par une distribution linéique d'effort adequate de singularités de Stokes. Une singularité de Stokes représente l'effet d'une force appliquée en un point du fluide sur l'écoulement. Dans la théorie des corps élancés, l'effet principal du corps sur le fluide environnant provient de la distribution des forces résultantes qui s'exercent sur le contour de la section d'un élément de longueur. Dans toutes ces théories, le terme  $\eta_1$  est égal à la viscosité du fluide et le paramètre rhéologique  $N_s$  est nul.

**Cas d'un milieu dilué** Le modèle de Batchelor [34] est une extension au cas des particules de section non circulaire des travaux de Cox [76]. L'approche utilisée s'appuie sur les résultats de Burgers [50] et se divise en deux grandes étapes :

- 1) Substitution de la perturbation due à la présence de la particule par une densité linéique d'efforts d'intensité à déterminer,
- 2) Calcul de l'intensité des efforts de telle sorte que les conditions aux limites soient vérifiées au mieux.

Ainsi, Batchelor calcule la contribution  $\Sigma_p$  au tenseur des contraintes macroscopiques, pour une suspension diluée de fibres de même orientation et propose les relations suivantes :

$$\eta_1 = \eta \tag{4.11}$$

$$N_s = 0 \tag{4.12}$$

$$N_p = \frac{\beta^2 \Phi}{3\ln\beta} \tag{4.13}$$

avec

- $\eta$  est la viscosité du fluide,
- $-\beta$  est le facteur de forme des particules,
- $\Phi$  est la fraction volumique des fibres.

Cette relation n'est valable que pour les suspensions diluées de particules rigides. Pour étendre cette relation de comportement au cas semi-dilué, il faut considérer l'influence des autres fibres sur la fibre étudiée. D'autre part, il faut que le facteur de forme  $\beta$  soit très grand  $\beta \gg 1$  pour minimiser les erreurs.

**Cas d'un milieu semi-dilué** Toujours en considérant la théorie des corps élancés, Batchelor [77] étend ses travaux au cas des suspensions semi-diluées de fibres. Il modélise les contraintes dans une suspension semi-diluée de fibres lors d'un écoulement élongationnel, et dans le cas où les fibres sont alignées dans la direction d'élongation du fluide. Il propose alors d'exprimer les paramètres rhéologiques par la relation :

$$\eta_1 = \eta \tag{4.14}$$

$$N_s = 0 \tag{4.15}$$

$$N_p = \frac{\phi\beta^2}{9[\ln(2\beta) - \ln(1 + 2\beta\sqrt{\phi/\pi}) - 1.5]}$$
(4.16)

Les interactions hydrodynamiques entre les particules sont représentées par un *milieu effectif*. Il considère alors que chaque fibre est à l'intérieur d'une "cellule" créée par le milieu ambiant. Afin de déterminer l'évolution d'une perturbation hydrodynamique, Batchelor introduit le concept d'effet d'écran des interactions hydrodynamiques. L'hypothèse de base de cette approche est de supposer que la perturbation créée par une fibre va décroître avec une distance de l'ordre de l'espacement moyen entre les particules, comme si à cette distance les autres fibres en présence forment un "écran" qui empêche la propagation de la perturbation. Il montre notamment qu'il existe une longueur d'écran au delà de laquelle une perturbation hydrodynamique n'a aucun effet sur le fluide environnant.

Dinh et Armstrong [63] utilisent une approche similaire à celle de Batchelor pour étendre le modèle aux suspensions semi-diluées. Les interactions hydrodynamiques entre les fibres sont toujours prises en compte en considérant une fibre "test" dans un milieu effectif qui intègre l'influence des autres fibres (modèle cellulaire). La distance moyenne entre deux particules voisines détermine la taille de la cellule. Le paramètre rhéologique  $N_p$  prend alors la forme suivante :

$$N_p = \frac{\phi \beta^2}{3\ln(2h/d)} \tag{4.17}$$

où h représente la distance caractéristique entre deux fibres voisines. Cette distance dépend alors de l'orientation des particules et prend pour valeur :

$$h = \frac{d}{2}\sqrt{\frac{\pi}{\Phi}}$$
 pour des fibres alignées dans la direction d'écoulement  
 $h = \frac{\pi d}{4\Phi\beta}$  pour une orientation isotrope des fibres

Pour des situation intermédiaires d'orientation de fibres, Chung et Cohen [73] proposent la relation suivante :

$$h = (1 - f)h_{isotrope} + h_{align\acute{e}s} \tag{4.18}$$

où  $f = 1 - Ndet(a_2)$  avec N = 4 dans un cas bidimensionnel et N = 27 dans un cas tridimensionnel.

Shaqfeh et Fredrickson [78] déterminent la contribution au tenseur des contraintes macroscopiques pour des régimes dilués et semi-dilués. Ils utilisent aussi la théorie des corps élancés. Contrairement au modèle de Dinh et Armtrong, les interactions hydrodynamiques entre les fibres sont calculées de manière explicite et sommées par une méthode diagrammatique. Pour les suspensions diluées, Shaqfeh et Fredrickson retrouvent les résultats de Batchelor. Dans le cas semi-dilué, le calcul explicite affine les résultats de Dinh et Armstrong et montre entre autre que l'influence de l'état d'orientation des particules sur les paramètres rhéologiques est faible. La loi de comportement conserve une forme analogue aux précédentes et les paramètres rhéologiques s'écrivent :

$$\eta_1 = \eta \tag{4.19}$$

$$N_s = 0 \tag{4.20}$$

$$N_p = \frac{2\beta^2 \Phi}{3[\ln\frac{1}{\Phi} + \ln\ln(\frac{1}{\Phi}) + \xi]}$$
(4.21)

avec

- pour une orientation isotrope :  $\xi = -0.664$  pour des fibres cylindriques et  $\xi = -1.034$  pour des ellipsoïdes de révolution
- pour une orientation unidirectionelle :  $\xi = 0.1585$  pour des fibres cylindriques et  $\xi = 0.202$  pour des ellipsoïdes de révolution

L'inconvénient majeur de cette approche est que le paramètre  $\xi$  varie selon les cas avec l'orientation des fibres. Pour contourner cette difficulté, Chung et Cohen [73] proposent la relation suivante :

$$\xi = d[\frac{1}{\Phi}ln(\frac{1}{\Phi})]^{(1/2)} \tag{4.22}$$

Cette relation est valable quelle que soit l'orientation des fibres.

La différence entre la théorie de Dinh et Armstrong et celle de Shaqfeh et Fredrickson provient de l'estimation de la longueur "ecran"  $\xi$ . Dans le modèle de Shaqfeh et Fredrickson, la distance "écran" est définie comme la distance moyenne  $h_{em}$  permettant de déplacer la fibre "test" perpendiculairement à son axe sans qu'elle ne rencontre d'autre fibre. Dans le modèle de Dinh et Armstrong, la longueur "écran" est de l'ordre de la plus petite distance  $h_{pp}$  entre deux fibres voisines de la suspension. La figure 4.1 illustre les définitions que l'on vient de donner pour ces longueurs "écran".

La théorie des corps élancés a été largement utilisée pour modéliser le comportement des suspensions de particules. Cette approche permet d'incorporer les interactions hydrodynamiques entres les fibres, et de ce fait, d'étendre les modèles au cas des suspensions en régime semi-dilué. Toutefois, il ne faut pas oublier que la théorie des corps élancés n'est applicable que pour des particules ayant un grand facteur de forme ( $\beta > 20$ ).

En outre, les modèles issus de cette théorie ne prennent pas en compte l'épaisseur de la fibre et le facteur  $N_p$  est sous estimé. Afin de remédier à cela, Ranganathan et Advani [19] proposent d'utiliser les résultats de Batchelor [34] qui consistent à multiplier le terme  $N_p$  par une fonction de correction  $f(\varepsilon)$  définie de la manière suivante :

$$f(\varepsilon) = \frac{1 + 0.64\varepsilon}{1 - 0.50\varepsilon} + 1.659\varepsilon^2 \quad \text{avec} \quad \varepsilon = \frac{1}{\ln(2\beta)}$$
(4.23)

La fonction  $f(\varepsilon)$  apporte une correction significative. Pour un rapport de forme de 100  $f(\varepsilon) = 1.62$ . Toutefois, il semble que cette correction soit trop forte pour des facteurs de forme inférieurs à 10.



FIG. 4.1 – Illustration de la distance "écran" suivant les auteurs,  $h_{em}$  pour l'approche de Shaqfeh et Fredrickson et de  $h_{pp}$  pour l'approche de Dinh et Armstrong

#### 4.1.1.3 Suspensions de particules sphéroïdales

**Cas d'un milieu dilué** Dés 1906, Einstein prédit la viscosité d'une suspension diluée de sphères rigides. Il propose la relation suivante :

$$\eta = \eta_0 (1 + 2.5\phi) \tag{4.24}$$

La loi de comportement s'écrit alors :

$$T = -pI_d + 2\eta (1 + 2.5\phi) \dot{\boldsymbol{\epsilon}}(\overrightarrow{\boldsymbol{u}}) \tag{4.25}$$

En utilisant les travaux de Jeffery [49] qui donnent le champ des vitesses autour d'un ellipsoïde, Giesekus [79] calcule la viscosité en cisaillement d'une suspension diluée. Leurs résultats seront étendus par Hinch et Leal [61] en une relation de comportement pour les solutions diluées.

Les expressions exactes, mais complexes, des coefficients  $\eta_1$ ,  $N_p$ ,  $N_s$  sont données par Giesekus et Batchelor [80]. Dans le cas de sphéroïdes élancés, nous pouvons utiliser les formes asymptotiques suivantes :

$$\eta_1 = \eta(1 + 2\Phi) \tag{4.26}$$

$$N_s = \frac{\Phi 6 \ln 2\beta - 11}{1 + 2\Phi \beta^2} \tag{4.27}$$

$$N_p = \frac{\Phi\beta^2 6\ln 2\beta - 11}{1 + 2\Phi 2\ln 2\beta - 1.5} \tag{4.28}$$

Les formes asymptotiques des paramètres rhéologiques donnent de bons résultats pour des grands facteurs de forme (moins de 1 % d'erreur pour  $\beta = 50$ ). Pour un facteur de forme  $\beta = 10$ , l'erreur est de l'ordre de 15 %. Par ailleurs, pour ce modèle, le terme  $N_s$  est d'autant plus petit devant le terme  $N_p$  que le facteur de forme est grand.

**Cas d'un milieu semi-dilué** Meslin [81] a étendu les résultats connus sur les suspensions de sphéroïdes rigides aux suspensions en régime semi-dilué en utilisant des schémas autocohérents et différentiels. Ces modèles auto-cohérents et différentiels peuvent s'écrire sous la même forme que l'équation 4.10. Cependant les paramètres rhéologiques doivent être déterminés numériquement pour différentes valeurs de facteur de forme et de concentration par une méthode de Newton.

Le modèle proposé par Meslin permet de prendre en compte l'épaisseur de la fibre et est applicable aux suspensions de particules de faible facteur de forme.

Notons enfin que l'approche qui considère que les particules sont des sphéroïdes rigides, permet de rendre compte de la contribution isotrope due à la présence des particules. En effet, le terme  $\eta_1$  n'est pas égal à la viscosité  $\eta$  du fluide comme dans les modèles issus de la théorie des corps élancés.

Le modèle de Phan-Thien et Graham Phan-Thien et Graham [82], en ajoutant un terme similaire à la diffusion Brownienne, proposent d'exprimer le paramètre rhéologique  $N_p$  de la manière suivante :

$$N_p = \frac{\beta^2 (2 - \Phi/G)}{2(\ln(2\beta - 1.5)(1 - \Phi/G^2))}$$
(4.29)

avec  $G=0.53-0.013\beta.$  Cette loi est valable pour des rapports de formes compris entre :  $5<\beta<30.$ 

Notons qu'il existe d'autres modèles qui prennent en compte le comportement non Newtonien de la matrice polymère. Parmi les modèles, nous citerons le modèle de Goddard [83] qui constitue une extension des travaux de Batchelor [77], l'approche de Souloumiac [84] qui adapte le modèle de Dinh & Amstrong [63]. Cependant, ces modèles n'abordent que le problème des matrices dont le comportement est non-linéaire par le biais d'une loi puissance. D'autres modèles prennent en compte le caractère viscoélastique de la suspension. L'article de Petrie [85] présente une description de ces modèles, fluide d'Olroyd B, modèle de FENE-CR [86], modèle de Giesekus [86].

#### 4.1.1.4 Conclusions sur les modèles de comportement

Cette étude a permis de mettre en évidence la difficulté de determiner une loi de comportement à partir d'une définition de l'état microscopique du matériau. Le calcul de la contribution des fibres au tenseur des contraintes macroscopiques est un point délicat. Pour aboutir à une estimation de ce terme, les hypothèses sont nombreuses et limitent fortement le champ d'application de la relation de comportement. En particulier, la théorie des corps élancés permet de construire des modèles micromécaniques valables pour les suspensions en régime semi-dilué, mais en contre partie l'épaisseur des particules est négligée. Par ailleurs le modèle pour les suspensions de sphéroïdes est issu des travaux de Jeffery et se limite généralement aux régimes dilués.

#### 4.1.2 Mesures expérimentales

Les modèles micromécaniques présentés permettent d'évaluer les paramètres rhéologiques des lois de comportement. Ainsi, pour les suspensions diluées de fibres rigides dans un

fluide Newtonien, les facteurs  $\eta_1$ ,  $N_s$  et  $N_p$  ont une expression analytique en fonction de la viscosité de la matrice, de la concentration et du facteur de forme des particules. Or les matériaux industriels ne sont pas des fluides Newtonien, il est donc nécessaire d'identifer ces paramètres rhéologiques par des essais expérimentaux. Pour des facteurs de forme réalistes, le paramètre  $N_s$  est négligeable devant  $N_p$ . Il ne reste donc plus que deux facteurs prépondérants à identifier pour déterminer le comportement d'une suspension de fibres.

Dans cette section, on se propose de présenter les différentes méthodes utilisés pour caractériser les facteurs rhéologiques  $\eta_1$  et  $N_p$ .

#### 4.1.2.1 Viscosité en Cisaillement

Pour mesurer la viscosité en cisaillement, les auteurs utilisent généralement les moyens de mesure disponibles pour les thermoplastiques non chargés. La rhéométrie capillaire permet de mesurer la viscosité pour les plus forts taux de cisaillement. Les rhéométries de Couette, plan-plan et cône-plan sont utilisées pour les faibles taux de cisaillement.

**Mesure de**  $\eta_1$  La mesure de la viscosité en cisaillement est souvent associée à la mesure du paramètre  $\eta_1$  du modèle de comportement. En effet, si on néglige le terme  $N_s$  et que l'on considère en toute première approximation que les fibres sont alignées avec les lignes de courant dans le cas d'un écoulement de cisaillement, le terme  $\dot{\boldsymbol{\epsilon}}(\vec{u}) : \boldsymbol{a_4} = 0$  s'annule et l'équation générale 4.10 de la contrainte s'écrit :

$$\boldsymbol{T} = -p\boldsymbol{I_d} + 2\eta_1 \dot{\boldsymbol{\epsilon}}(\overrightarrow{u}) \tag{4.30}$$

La littérature sur la mesure de la viscosité en cisaillement est abondante, et bien résumée dans l'article de synthèse de Kamal et Mutel [87]. Par contre, peu d'études concernent les polymères chargés de fibres longues.

Les effets de la longueur et de la concentration des fibres sur la viscosité en cisaillement des polymères chargés de fibres courtes sont les suivants :

- la viscosité en cisaillement est une fonction croissante de la concentration en particules (voir [87], [88], [89], [90], [91], [92]) du facteur de forme des particules [93] et de la flexibilité des fibres [89],
- l'augmentation de la viscosité en cisaillement des suspensions chargées est d'autant plus forte que le taux de cisaillement est faible [88], [70],[94],[87],
- le plateau newtonien observé avec un polymère non chargé tend à disparaître lorsque le taux de charge est élevé ou pour des particules ayant un grand rapport de forme [94],[88]. On observe aussi une augmentation de la pente de la courbe de viscosité à bas taux de cisaillement

Kitano et al [88] montrent que la dépendance avec le taux de cisaillement est plus prononcée pour des suspensions très concentrées et de rapport de forme grand alors que Gananie et Powell [90] n'observent pas ces effets. Cependant, leurs mesures ont été réalisées à plus bas taux de cisaillement et à concentration plus faible.

Thomasset [6] réalise des essais en rhéométrie capillaire en ligne sur une presse à injecter. Il s'intéresse au comportement rhéologique d'un polypropylène chargé de fibres longues. Les résultats obtenus montrent que la présence des fibres n'augmente que faiblement la viscosité en cisaillement simple du polypropylène dans une gamme de vitesse s'étendant de  $10^2$  à  $10^5 s^{-1}$ . Il interprète ces résultats par un effet de migration des fibres qui crée une couche diluée en paroi du capillaire. La formation de cette couche diluée qui apparaît aux vitesses de cisaillement élevées présente un intérêt majeur : les pertes de charge en cisaillement occasionnées par l'écoulement de ces suspensions sont à peine supérieures à celles de la résine non chargée.

### 4.1.2.2 Lien avec les modèles et paradoxe

Tous les auteurs (mesures rhéologiques) s'accordent sur le fait que la viscosité en cisaillement d'une suspension de fibre augmente avec le facteur de forme des fibres. Cette constatation expérimentale n'est cependant pas vérifiée par les modèles de comportement théoriques classiques lorsque l'on considére que les fibres sont alignées dans la direction d'écoulement. Le modèle de comportement pour les particules élancées ne permet pas de décrire correctement la viscosité en cisaillement d'une suspension, même pour les régimes dilués. En effet, on montre que la viscosité en cisaillement est égale à la viscosité du fluide, ce qui est en désaccord avec les constatations expérimentales ou encore le modèle d'Einstein pour les suspensions de billes.

### 4.1.2.3 Mesure de $N_p$

Dans un écoulement de cisaillement simple, les fibres ont tendance à s'aligner suivant les lignes de courant. De ce fait, le terme de  $\dot{\epsilon}(\vec{u})$  :  $a_4 = 0$  de la relation de comportement est nul. La viscosité en cisaillement dépend alors faiblement du paramètre  $N_p$ , et les rhéométries capillaire et de Couette ne permettent pas de le mesurer.

Pour tenter d'identifier le paramètre  $N_p$ , il faut réaliser un écoulement à composantes élongationnelles. D'un point de vue pratique, les écoulements élongationnels sont difficiles à mettre en oeuvre et les résultats sont souvent discutés (dépouillement difficile). Meslin [81] propose un nouvel essai, dit "Essai en croix" qui doit permettre d'identifier ce paramètre, dans des conditions proches de celles rencontrées dans les procédés industriels. Il met au point deux prototypes pour matérialiser l'écoulement proposé. Malheureusement, à l'heure actuelle, les mesures effectuées ne sont pas assez précises pour tenter une quelconque identification et le dépouillement de cet essai reste encore discutable.

Ce paramètre peut aussi être déterminé par deux autres méthodes. La première méthode regarde l'influence des fibres sur le champ des vitesses lors d'un écoulement à travers une contraction. La deuxième méthode consiste à mesurer le pic de viscosité sur un essai de rhéométrie cône plan.

Mesure de la hauteur d'une recirculation Cette méthode propose d'observer l'influence des fibres sur la forme du champ de vitesse. Expérimentalement, Lipscomb et al [95] ont visualisé les lignes de courant dans une contraction. Ils ont constaté que l'ajout de fibres dans une matrice Newtonienne, même en concentration diluée, modifie beaucoup les lignes de courant. En particulier, les fibres en suspensions modifient la taille des recirculations.



a) Matrice Newtonienne non chargée



b) Matrice Newtonienne chargée<br/>à0.045%en volume de fibres

FIG. 4.2 – Lignes de courant dans une contraction 4,5 :1 [95](Écoulement d'un fluide modèle s'effectuant du bas vers le haut)

Pour quantifier le facteur rhéologique  $N_p$ , Mongruel [96] propose de mesurer la hauteur de la recirculation dans un écoulement à travers une contraction. Leurs résultats expérimentaux sont similaires à ceux de Lipscomb et al. Pour des régimes dilués à semidilués, les expériences mettent en évidence des recirculations dont la taille varie avec la concentration et/ou le rapport de forme des particules. Il est donc possible avec ce type d'essai de relier la taille des recirculations au facteur  $N_p$ . Toutefois, il faut noter que la détermination du paramètre  $N_p$  ne peut se faire qu'assistée par un calcul numérique. Par ailleurs, Lipscomb et al. notent que la hauteur des recirculations est d'autant plus faible que la viscosité de la matrice est grande. Enfin, ces conditions d'écoulement ne reflètent pas celles rencontrées lors de la transformation des polymères chargés et l'identification est difficile.

Viscosité au démarrage des mesures en rhéométrie cône-plan et plan-plan Pour mesurer le paramètre  $N_p$ , Ausias et al [67] proposent d'utiliser un essai de rhéométrie plan-plan. Il apparaît dans un essai de rhéométrie plan-plan, un pic de viscosité à l'établissement de la contrainte. Ce phénomène a été observé par de nombreux auteurs, [97], [87].

Ce pic de viscosité est associé au changement de la microstructure et à un alignement des fibres dans la direction de l'écoulement. On constate que :

- lorsque les fibres sont pré-orientées par un cisaillement, le pic de viscosité se réduit, [84],

- le pic de viscosité est d'autant plus prononcé que l'entrefer du rhéomètre plan-plan est grand (rotation des fibres moins gênée par les parois), [84],
- la hauteur du pic est plus importante pour des matériaux très chargés, [5]

Cependant, cette méthode pose de nombreux problèmes. La viscosité dépend fortement de l'orientation initiale des particules, or il est difficile de déterminer l'orientation des particules dans les échantillons à étudier. De plus, le pic de viscosité dépend de l'entrefer entre les plateaux et les mesures sont effectuées dans le domaine transitoire. Les effets viscoélastiques peuvent alors se superposer aux effets dus à l'anisotropie du matériau. Enfin, comme nous l'avons deja signalé, les conditions d'essais sont loin de celles rencontrées lors de la mise en forme.

### 4.1.3 Conclusion sur l'étude bibliographique

Dans cette section, nous avons mis en évidence deux difficultés dans la détermination d'une loi de comportement. Le calcul de la contribution des fibres au tenseur des contraintes macroscopiques représente le premier point délicat. Pour aboutir à une estimation de ce terme, il est nécessaire de faire des nombreuses hypothèses qui limitent le domaine de validité de ces lois.

La deuxième difficulté vient de la détermination des paramètres rhéologiques des modèles de comportement. Le facteur rhéologique  $\eta_1$  est associé à une mesure de viscosité en cisaillement. Les mesures de  $N_p$  nécessitent la mise en place d'écoulements à composantes élongationnelles. Or à l'heure actuelle, les mesures sont contestables. Deux autres méthodes existent à notre connaissance pour tenter d'identifier ce paramètre : la mesure du pic de viscosité sur un essai de rhéométrie plan-plan et la mesure de la hauteur de recirculation lors d'un écoulement dans une contraction. Là encore, les conditions d'écoulement ne reflètent pas celles rencontrées lors de la transformation des polymères chargés et les problèmes d'identification ne sont pas totalement résolus.

# 4.2 Etude rhéométrique des suspensions de fibres longues

L'objectif premier est de caractériser les matériaux dont nous disposons. Les données ainsi recueillies permettrons de préciser les résultats bibliographiques. Nous présenterons successivement les matériaux utilisés, les techniques rhéométriques (rhéométrie capillaire, plan-plan) puis les résultats.

## 4.2.1 Matériaux utilisés

Les matériaux utilisés sont décrits dans la section 1.1.1 du chapitre 1. Le tableau 4.1 récapitule les matières utilisées ainsi que leurs caractéristiques.

Désignation	Taux	Longueur
	de verre $(\%)$	des fibres (mm)
PP vierge	0	0
PP10%FV12	10	12
PP30%FV12	30	12
PP10%FV3	10	3
PP30%FV4	30	4

TAB. 4.1 – Matériaux utilisés

### 4.2.2 Techniques rhéométriques utilisées

#### 4.2.2.1 Rhéométrie Capillaire

Cette technique a été appliquée à tous les produits car elle permet de les caractériser dans des conditions de cisaillement proches de celles du procédé d'injection.

Le Rhéoplast Nous avons utilisé un rhéomètre capillaire particulier, le Rhéoplast. Ce rhéomètre (Figure 4.3) a la particularité de posséder une chambre de pré-cisaillement conique dont l'angle fait 0, 1 radians (5,7 degrés) avec le piston rotatif central (d'injection). Cette zone, dans laquelle trois paramètres influencent la casse des fibres, est un atout considérable pour la maîtrise des conditions imposées sur la matière lors de son acheminement vers le capillaire.

Ces trois paramètres sont :

- La vitesse de rotation du piston d'injection (pré-cisaillement).
- La vitesse de descente du piston d'alimentation (compression, cisaillement).
- La hauteur de fente laissée entre la chambre de pré-cisaillement et le réservoir (casse).

Le fonctionnement du Rhéoplast comprend deux phases.

Dans une première phase du cycle de fonctionnement, le matériau est plastifié par cisaillement entre le piston en rotation et le fourreau conique thermostaté. Il est, en même temps transféré dans le réservoir en dessous.



FIG. 4.3 – Schéma du Rhéoplast

La deuxième phase est la phase de mesure proprement dite. Le piston ne tourne plus mais descend à vitesse constante et injecte le matériau dans le capillaire, via un convergent demi-angle 90°. La grandeur mesurée est la pression à l'entrée du convergent pour différents débits.

**Dépouillement des mesures** Pour l'ensemble des produits étudiés, nous avons suivi la démarche habituelle de dépouillement.

**Corrections de Bagley** Il existe des pertes de pression entre le capteur amont et l'entrée effective du capillaire, ainsi qu'entre le capteur aval et la sortie effective du capillaire. Ces pertes de charges qui correspondent aux "effets d'entrée et de sortie" s'ajoutent donc à la perte de charge réelle dans le capillaire. La correction de Bagley consiste à déterminer ces pertes de charge en utilisant des capillaires de longueur variable mais de diamètre et de géométrie d'entrée et de sortie identiques.

La contrainte de cisaillement après correction de Bagley s'écrit :

$$\sigma_{cor} = \frac{\Delta P}{4(\frac{L}{D} + \frac{\Delta L}{D})} \tag{4.31}$$

où  $\sigma_{cor}$  représente la contrainte de cisaillement après correction de Bagley et  $\Delta L$  la correction de Bagley. La perte de pression totale est reportée sur un graphique en fonction du rapport L/D des capillaires. L'intersection des régressions linéaires avec l'axe des abscisses correspond aux corrections à effectuer pour corriger ces effets.

Analyse de Rabinowitch Cette correction permet de calculer le taux de cisaillement réel à la paroi  $\dot{\gamma_p}$ 

$$\dot{\gamma_p} = \frac{Q}{\pi R^3} [\frac{1}{m} + 3] \tag{4.32}$$

avec Q le débit, R le rayon du capillaire, m la pente de la courbe  $\ln(\tau_p)$  en fonction de  $\ln(Q)$ .

La viscosité  $\eta$  est donnée par la relation :

$$\tau_p = \eta \dot{\gamma_p} \tag{4.33}$$

Les courbes de viscosité obtenues avec des diamètres de capillaire différents se superposent relativement bien, même dans le cas des produits chargés en fibres très longues, ce qui signifie qu'il n'y a pas de glissement significatif.

#### 4.2.2.2 Rhéomètrie plan-plan

L'appareil utilisé est le RMS-800 de marque Rheometrics. Ce rhéomètre présente plusieurs avantages. Premièrement, il est possible de travailler en milieu chimiquement inerte, en effectuant un balayage d'azote continu (qui par ailleurs va servir de régulation en température) dans le four qui contient l'échantillon. Pour les tests en mode oscillatoire (aussi appelé mode dynamique) cela s'avère important puisque la matière reste presque 6h à température élevée. Deuxièmement il permet de relever les valeurs de couple et de force normale en mode continu.

Nous avons opté pour l'utilisation de deux plans plutôt que d'un cône et d'un plan car l'entrefer dans cette dernière configuration est limité et l'angle, si faible soit-il, occasionne des expulsions de fibres hors du système. L'inconvénient majeur de la géométrie plan-plan est la variation du taux de cisaillement selon le rayon des plans. Les avantages sont une expulsion moindre, un entrefer  $(h_p)$  aussi grand qu'on le souhaite pourvu qu'il reste très inférieur au rayon des disques  $(R_p)$ . C'est pourquoi nous utilisons le jeu de plans le plus large, de diamètre 50 mm.

La rhéométrie plan-plan a été utilisée en mode continu et mode oscillatoire. En mode continu, le taux de cisaillement est compris entre  $10^{-3}$  s<sup>-1</sup> et 1 s<sup>-1</sup>.

En mode oscillatoire, les fréquences sont comprises entre 1 et 100 rad/s. Nous utilisons le mode de dépouillement classique fourni par Rhéométrics.

**Dispositif** L'échantillon est un cylindre de hauteur  $h_p$  et de rayon  $R_p$  placé dans l'entrefer séparant deux disques de rayon  $R_p=50$  mm, (fig4.4).

Un des plateau est fixe, l'autre tourne à vitesse imposée. Le couple ainsi que la force normale sont échantillonnés au cours du temps.

**Fabrication des échantillons** Pour ce type de mesure, les granulés chargés de fibres ne sont pas directement utilisables. Il est alors nécessaire de fabriquer des disques à la dimension du dispositif expérimental.



FIG. 4.4 – Schéma simplifié du dispositif plan-plan

Nous avons réalisé deux types d'échantillons : Des pastilles fabriquées par compression à 200 bar sous une température de 220°C avec une orientation connue des fibres et des échantillons issues de plaques injectés présentés dans la section 1.3.2.1 du chapitre 1.

## 4.2.3 Résultats

#### 4.2.3.1 Rhéométrie plan-plan

**Principes et objectifs de mesures** Deux mesures nous intéressent particulièrement. En mode continu, notre objectif est de relier orientation initiale des fibres et mesures rhéologiques. Pour cela nous observons les variations du couple, de la viscosité et de la force normale (pastilles compressées) en ayant comme paramètres :

- L'orientation initiale des fibres dans l'échantillon testé.
- La hauteur de l'échantillon ou l'entrefer (valeurs égales).
- Le taux de cisaillement imposé durant l'essai (fixé à  $0.5 \text{ s}^{-1}$  après des tests préliminaires).

En mode oscillatoire nous cherchons à mesurer les caractéristiques physiques de la suspension lors d'écoulements à différentes températures (de 160°C à 220°C), puis de les comparer entre elles suivant des critères propres aux matériaux (concentration, longueur des fibres). Ces caractéristiques sont données par les modules de conservation ou élastique (G') et de perte ou visqueux (G''), la viscosité complexe  $(\eta*)$  et l'angle de déphasage  $(tan\delta = G''/G')$ . Ces propriétés sont mesurées pour des pastilles issues de pièces injectées dont la zone prélevée est connue en termes de longueur et d'orientation des fibres.

**Difficultés expérimentales** Les mesures des propriétés rhéologiques des suspensions de fibres longues présentent plusieurs difficultés :

- La longueur de fibres n'est pas négligeable devant le diamètre des plateaux et encore moins devant l'entrefer.
- Les mesures sont difficilement reproductibles.
- Dans leur mouvement, les fibres ont tendance à être expulsées de l'échantillon.

Face à ces difficultés, les mesures expérimentales présentées dans cette section donnent un ordre de grandeur des phénomènes observés et sont utilisées pour expliquer qualitativement le comportement rhéologique de ces suspensions.

**Evolution de la force normale au démarrage d'un essai plan-plan** On s'interesse à l'influence de l'orientation initiale des fibres sur la rhéologie. Le matériau d'étude est un polypropylene renforcé de 30% de fibres de longueur initiale de 4 mm, noté pp30%fv4. Trois orientations initiales sont étudiées : une répartition aléatoire des granulés dans le plan de l'échantillon, une orientation orthoradiale et radiale. La photographie 4.5a) illustre ces

deux dernières orientation.

Les essais sont réalisés en mode continu. Dans un premier temps, nous nous sommes intéresé à l'évolution du couple au cours du temps. L'anlayse des résultats montre que la superposition des couples n'est pas pertinente compte tenu de l'erreur très importante entre plusieurs essais de même nature. Aucune hiérarchisation des courbes n'est obtenue. Les superpositions des forces normales donnent en revanche des résultats intéressants. Les mesures sont reproductibles et le classement des courbes est logique. La figure 4.5 présente l'évolution de la force normale en fonction du temps pour un entrefer de 3 mm et trois orientations initiales. On observe un classement logique des courbes. Entre l'orientation orthoradiale, minimum, et l'orientation radiale, maximum, les valeurs des forces sur le



a) Pastilles fabriquées par compression
à 200 bar sous une température de 220
°C, présentant une orientation initiale
des granulés orthoradiale et radiale



b) Evolution de la force normale en fonction du temps pour un entrefer de 3mm et différentes orientations initiales

FIG. 4.5 – -*Rhéométrie plan-plan en mode continu- Influence de l'orientation initiale de fibres de longueur de 4 mm sur l'évolution des forces normales* 

plateau sont multipliées par un facteur de 1,5. La courbe pour l'orientation aléatoire se trouve entre les deux autres, plus proche de l'orthoradiale que du radiale. Ces variations de la force normale semblent indiquer une réorganisation globale à la mise en route du cisaillement liée à l'orientation des fibres dans la direction d'écoulement et à la séparation des fibres, initialement en mèches, puis une stabilisation pendant laquelle des mouvements oscillatoires dans l'épaisseur sont possibles.

**Mesures dynamiques** Les essais ont été réalisés sur des échantillons prélevés sur les plaques injectées en conditions standards. Les centres de ces disques sont situés à 85 mm de part et d'autre du seuil d'injection, sur la médiane des largeurs. Deux matériaux sont analysés : un polypropylène renforcé de 30% de fibres initialement de longueur 4 mm et un polypropylène renforcé de 30% de fibres initialement de longueur 12 mm, noté pp30%fv4 et le pp30%fv12. On fait subir à ces deux matériaux un balayage en fréquence, des fréquences les plus hautes aux plus basses, pour des températures de 160°C, 180°C, 200°C, 220°C. Une option du rhéomètre permet alors à l'entrefer de s'ajuster automatiquement en fonction de l'amincissement de l'échantillon occasionné par des expulsions de matière hors des plans de cisaillement. Cette option s'appuie sur un contrôle de la force normale appliquée sur le matériau, qu'il faut garder constante. Les essais ont été reconduits sur 3 échantillons selon la répétabilité des mesures de la viscosité complexe.

La figure 4.6 présente l'évolution du module elastique (Figure 4.6 a)), du module visqueux (Figure 4.6 b)), de la viscosité complexe  $\eta$ \* (Figure 4.6 c)) et de tangente  $\delta$  (Figure 4.6 d)).

L'analyse des résultats montre que la distribution moyenne de la longueur des fibres a une influence sur les propriétés viscoélastiques de la suspension. On observe, en effet, que



FIG. 4.6 – Rhéométrie plan-plan en mode dynamique -Evolution du module élastique, du module visqueux, de la viscosité complexe  $\eta *$  et de l'angle de perte en fonction de la fréquence à T=220°C pour des échantillons de pp30%fv4 et pp30%fv12 issues de plaques injectées d'épaisseur de 2 mm

les suspensions de fibres longues (dont la longueur moyenne en nombre est d'environ 2,2 mm, section 1.2.2 du chapitre 1) présente une composante élastique et visqueuse plus importante que les suspensions de fibres plus courtes, à faible taux de cisaillement. D'autre part, si on s'intéresse à l'évolution du module de perte en fonction de la fréquence, on observe une légère "bosse" autour de 5 rad/s qui peut être reliée à un ré-arrangement de la microstructure.

Les courbes de viscosité 4.6 c) sont en accord avec les tendances rencontrées dans la littérature. Un plateau Newtonien est en effet présent pour le polypropylène vierge mais n'existe plus en présence des fibres. La viscosité de la suspension est plus grande lorsque la fraction volumique de fibres est grande. On observe, d'autre part, que les courbes des matériaux chargés présentent une forte augmentation de leurs pentes en dessous de 1 rad/s.

#### 4.2.3.2 Rhéométrie Capillaire

**Conditions de plastification** Les conditions de plastification sont décrites dans le tableau 4.2. Le critère de choix des paramètres de plastification est la distribution moyenne de fibres dans les extrudats qui doit être proche des distributions de longueurs rencontrées en injection. Ces mesures de distribution de longueur ont été réalisées après pyrolyse et analyse d'image.

	Ω	Vitesse du piston	Hauteur	Longueur moyenne
	(tr/min)	d'alimentation $(mm/s)$	de fente (mm)	des fibres (mm)
pp30%fv4	250	3	5	1.13
pp30%fv12	250	5	10	1.83

Тав. 4.2 –	Conditions	de	plastification
------------	------------	----	----------------

Pour les polypropylènes renforcés de 10% de fibres de verres, les conditions de plastification sont les mêmes que celles appliquées aux polypropylènes renforcés de 30% de fibres de verres.

#### 4.2.3.3 Choix des capillaires

Des essais préliminaires ont permis de mesurer la viscosité de la matière vierge pour une gamme de taux de cisaillement importante. Plusieurs essais corrélés ont montré la reproductibilité des résultats pour cette matière. Pour les composites, il était plus délicat de déterminer les capillaires à utiliser, étant donnés les doutes quant au glissement à la paroi. Finalement, les jeux de capillaires utilisés sont récapitulés dans le tableau 4.3.

	Diamètre (mm)	Rapport L/D
PP renforcé de fibres de verres de 4 mm	$2,\!3,\!4$	0, 4, 8, 16, 32
PP renforcé de fibres de verres de 12 mm	$2,\!3,\!4$	0, 4, 8, 16, 32

Tab.	4.3 -	Jeux	de	Capillaires
------	-------	------	----	-------------

Cycle d'injection et températures d'essais Le cycle d'injection dans le cas des composites fibres courtes (granulé de polypropylène de longueur 4 mm) comporte 10 valeurs de vitesse d'injection, de  $0.1 \text{ mm.s}^{-1}$  à 5 mm.s<sup>-1</sup>. Dans le cas des fibres longues, il est nécessaire de modifier le cycle d'injection pour prendre en compte certains phénomènes nouveaux ou amplifiés par rapport aux matériaux à fibres "courtes". Il n'est en effet plus possible d'atteindre des vitesses d'injection supérieures à 2 mm.s<sup>-1</sup> sans rencontrer de grandes difficultés dans la lecture des pressions relevées. A partir de cette vitesse soit on vide un réservoir entier et cela occasionne des variations importantes dans le comportement rhéologique du composite, soit on réduit le temps de mesure et le régime stationnaire n'est pas atteint. Le tableau 4.4 résume le cycle de vitesse et les températures d'essais pour les deux composites étudiés.

	Vitesse d'injection (mm/s)	Température (°C)
PP renforcé de fibres de verres de 4 mm	0.1 à 5	200
PP renforcé de fibres de verres de 12 mm	0.1 à 2	220

TAB. 4.4 – Cycle d'injection et températures d'essais

Signaux de pression en fonction du temps Les signaux des capteurs de pression, qui sont obtenus en fonction du temps, sont enregistrés puis analysés. Le signal du capteur d'entrée présente un régime transitoire correspondant à l'arrivée du front de matière à l'entrée du capillaire. Ce signal se stabilise ensuite au bout d'un certain temps correspondant au régime permanent de l'écoulement. Quand le régime permanent est atteint, la perte de charge est calculée à partir des signaux lissées. Lorsque ce régime est atteint, on observe des oscillations de la pression en fonction du temps.

L'analyse des résultats montre que les fluctuations de pression augmentent avec le rapport L/D et le diamètre D des capillaires. D'autre part, l'amplitude de ces oscillations augmente avec la longueur et la concentration des fibres. On observe que pour le polypropylène renforcé de 30% de fibres courtes (granulé de 4 mm), l'amplitude de ces fluctuations est environ deux fois plus petite que celles observées pour le polypropylène renforcé de 30% de fibres longues. L'origine de ces oscillations peut être attribuée au passage de la matière dans la contraction précédent le capillaire (Figure 4.3). On peut ainsi penser que l'amplitude des oscillations est liée à la mobilité des fibres. En effet, plus le nombre de fibres est important, plus la probabilité de collision augmente et plus la mobilité individuelle d'une fibre diminue. Or pour passer la contraction, les fibres doivent pouvoir s'orienter très rapidement dans la direction de l'écoulement. On peut alors facilement imaginer que le matériau n'a pas le temps de "se conformer" à la géométrie de l'écoulement, à la vitesse imposée. Le matériau passe alors la contraction de façon irrégulière, ce qui crée les oscillations observées.

Par ailleurs, on observe des baisses de pression anormales en fin de réservoir, d'autant plus marquées que la concentration est forte. Ce phénomène peut être attribué à la casse et à la ségrégation des fibres immédiatement en contact avec le piston d'injection. Pour cela, les mesures seront réalisées avec la première moitié du réservoir.

**Correction de Bagley** La perte de charge qui est obtenue est tracée en fonction du rapport L/D des capillaires et pour différentes vitesses d'injection. Lors du dépouillement des données, peu de difficultés se sont présentées. Les droites de corrections de Bagley ainsi que l'équation de Rabinowitch sont bien corrélées. Néanmoins, on peut noter qu'il est d'autant plus difficile d'obtenir des résultats répétables que la vitesse d'injection est élevée et que la longueur du capillaire est faible. Les moins bonnes corrections de Bagley sont obtenues pour les vitesses d'injection les plus lentes et pour les diamètres de capillaires les plus petits.

Dans le cas des composites chargé de 10% de fibres, on obtient de très bonnes corrections de Bagley.



Les figures 4.7 a) et b) présentent les corrections de Bagley pour un diamètre de 4 mm pour le composite chargé de 10% et 30% de fibres courtes.

FIG. 4.7 – Droites de correction de Bagley

Les figures 4.7 c) et d) présentent les corrections de Bagley pour un diamètre de 4 mm pour le composite chargé de 10% et 30% de fibres longues.

La figure 4.8 présente l'évolution de la correction de Bagley pour le composite chargé de 30% de fibres longues en fonction de la contrainte. On observe que l'évolution de la correction de Bagley est *linéaire* avec l'augmentation de contrainte.

Viscosité en cisaillement On observe que les courbes d'écoulement (Figure ??) se superposent mieux pour les matériaux chargés de 30% de fibres que pour les matériaux chargés de 10% (pour le polypropylène vierge elles se superposent parfaitement). Il est possible que du glissement ait lieu dans le cas du pp10%fv3 et du pp10%fv12 du fait, de la formation pendant l'écoulement, d'une couche peu concentrée à la paroi. Cependant le classement des courbes n'est pas physique (d'où les vitesses de glissement négatives). La méthode de Mooney ne nous permet pas d'interpreter ce phénomène.

Finalement, il ne nous reste plus qu'à tracer les courbes de viscosité en fonction du taux



FIG. 4.8 – Correction de Bagley en fonction de la contrainte dans le cas du composite pp30%FV12 à 220°C

de cisaillement pour les deux composites et pour tous les diamètres de capillaires étudiés. Dans le cas des fibres courtes, on obtient une superposition correcte des courbes pour différents diamètres. Cependant, il reste des points assez éloignés les uns des autres pour un même matériau. L'analyse mathématiques des écarts entre ces points conduit à un pourcentage d'erreur maximal de 20% pour le pp10%fv3, cet écart peut provenir du fait que nous avons réglé les paramètres de pré-cisaillement pour une longueur initiale de 4 mm et non de 3 mm. Or la répartition des longueurs obtenues est un facteur déterminant pour la rhéologie.



a) polypropylène renforcé de 10% de fibres de longueur initiale de 3 mm à  $T=200^{\circ}C$ 



 $T = 200^{\circ}C$ 

c) polypropylène renforcé de 10% de fibres de longueur initiale de 12 mm T=  $220^{\circ}$ C

d) polypropylène renforcé de 30% de fibres de longueur initiale de  $12 \text{ mm T} = 220^{\circ}\text{C}$ 

a) polypropylène renforcé de 30% de

fibres de longueur initiale de 4 mm à

FIG. 4.9 - Courbes d'écoulement pour les polypropylènes chargés de fibres courtes et longues

**Influence de la concentration de fibres** La figure 4.10 a) présente l'évolution de la viscosité en fonction du taux de cisaillement pour le composite chargé de fibres courtes et le polypropylène vierge.

On peut noter que les tendances observées concordent avec celles rencontrées dans la littérature. Un plateau Newtonien est en effet présent pour le polypropylène vierge. On observe également que les courbes à faibles cisaillement (de l'unité à quelques dizaines de s<sup>-1</sup>) se classent clairement par ordre de concentration croissante, la courbe pour le polypropylène renforcé de 10% de fibres de 3 mm, pp10%fv3, étant plus proches du polypropylène vierge que du polypropylène renforcé de 30% de fibres de 4 mm, pp30%fv4. Pour les cisaillement importants (au delà de 500 s<sup>-1</sup>) les courbes se rapprochent pour presque se confondre au dessus de 1000 s<sup>-1</sup>.

La figure 4.10 b) présente l'évolution de la viscosité en fonction du taux de cisaillement

pour le composite chargé de fibres longues. On observe dans ce cas, que la viscosité est moins affectée par la concentration des fibres que dans le cas des fibres courtes.



a) Viscosités superposées pour deux concentrations en fibres de polypropylène chargé de fibres courtes et la matière vierge à  $T = 200^{\circ}C$ 

b) Viscosités superposées pour deux concentrations en fibres de polypropylène chargé de fibres longues de 12 mm et la matière vierge à T=220 °C

FIG. 4.10 – Viscosités superposées pour les polypropylènes chargés de fibres courtes et longues et le polypropylène vierge

### 4.2.4 Conclusion sur l'étude rhéologique expérimentale

Les mesures de viscosité obtenues avec les rhéométries plan-plan et capillaire sont en accord avec les résultats issus de la littérature. Nous constatons que :

- Comme beaucoup d'auteurs [88], [97], nous trouvons que la viscosité en cisaillement est une fonction croissante de la concentration.
- L'augmentation de la viscosité est d'autant plus marquée que le taux de cisaillement est faible. Ceci corrobore entre autres les résultats de Becraft [70]. Il en résulte une augmentation de la pseudoplasticité avec le taux de cisaillement.
- Il semble que le plateau newtonien tend à disparaître. Ce point a déjà été signalé par Mutel et Kamal, qui affirment que le plateau newtonien disparaît totalement lorsque le facteur de forme des fibres est supérieur à 10. Toutefois, les effets des parois (interactions fibres/parois) ne sont pas négligeables, ainsi que les phénomènes migratoires ce qui rend les mesures difficiles. Par ailleurs, la disparition du plateau newtonien pourrait être imputée à la présence d'un seuil d'écoulement, difficile à mesurer [6].
- Les résultats issus des expérimentations avec les rhéomètres capillaires et plan-plan ne se recoupent pas. Plusieurs facteurs peuvent être à l'origine de cette différence. Il est possible qu'il y est du glissement à la paroi. Dans la gamme de taux de cisaillement considérée (zone de superposition des courbes), nous sommes à la limite des moyens de mesures (fibres trop longues, pressions faibles, expulsion des fibres au cours de la mesure). D'autre part, les distances caractéristiques et les efforts mis en jeu dans les deux procédés ne sont pas identiques. De ce fait, les interactions entre les fibres et les parois (blocage du mouvement des fibres) ne sont pas du même ordre de grandeur.

En conclusion, les essais de rhéomètrie capillaire, simples dans leur principe, sont délicats à mettre en oeuvre dans le cas de suspensions de particules. Il est difficile d'obtenir des résultats répétables et quantitatifs. Ainsi, il nous paraît difficile d'identifer les paramètres clés des lois de comportement décrit dans la partie bibliographique.

Dans une optique de compréhension du comportement rhéologique, on se propose de mener une étude numérique de rhéologie, en utilisant le modèle de simulation directe proposé dans le chapitre 2. Ces simulations nous permettront d'accéder à l'évolution de la viscosité dans le temps. Nous tenterons ensuite d'estimer le terme rhéologique  $N_p$ , indispensable à la modélisation du comportement rhéologique global de la suspension.

# 4.3 Etude numérique du comportement rhéologique

### 4.3.1 Objectifs de l'étude

Dans la première section de ce chapitre, nous avons souligné la difficulté de mener expérimentalement des mesures rhéologiques avec des produits chargés de fibres. Nous proposons, dans cette section, une méthode pour calculer numériquement la viscosité d'une suspension de particules.

L'étude numérique proposée s'inscrit dans une optique de compréhension du comportement rhéologique d'une suspension de fibres rigides baignant dans un fluide newtonien.

L'approche de micro-rhéologie adoptée a pour objectifs :

- d'étudier l'influence de la concentration et du rapport de forme de particules rigides sur le comportement rhéologique d'une suspension Newtonienne,
- d'étudier les modèles de comportement issus de la théorie des corps élancés et d'identifier le paramètre  $N_p$ .

# 4.3.2 Détermination de la viscosité d'un volume représentatif de fibres

#### 4.3.2.1 Principe

Nous proposons, dans ce paragraphe, une méthode pour calculer numériquement la viscosité d'une suspension de particules.

On se propose de décrire le *comportement homogène d'une suspension Newtonienne*. Cette approche permet de prendre en compte directement la structure de la suspension dans son comportement. Cette approche est statistique, et suppose que l'échantillon simulé soit représentatif de la structure d'une suspension de fibres rigides.

Considérons un volume représentatif dans le quel on veut décrire un comportement homogène (Figure : 4.11) :





On impose une contrainte  $\tau$  au volume représentatif et on calcule la vites se U. La viscosité  $\eta$  de cisaillement d'un fluide newtonien est définie par cisaillement d'un cube :

$$\eta_{apparent} = \frac{\tau_{impos\acute{e}}}{\dot{\gamma}_{apparent}} \tag{4.34}$$

On définit  $\dot{\gamma}_{apparent}$  comme la moyenne du taux de déformation sur le volume de calcul.

$$\dot{\gamma}_{apparent} = \frac{1}{V} \int_{V} \dot{\boldsymbol{\epsilon}}(\overrightarrow{u}) dv = \frac{1}{V} \int_{V_{fluide}} \dot{\boldsymbol{\epsilon}}(\overrightarrow{u}) dv + \frac{1}{V} \int_{V_{fibre}} \dot{\boldsymbol{\epsilon}}(\overrightarrow{u}) dv \tag{4.35}$$

Or la condition de mouvement rigide imposée sur le domaine fibre conduit à un taux de déformation nul sur ce domaine. Ainsi, on obtient l'expression suivante :

$$\dot{\gamma}_{apparent} = \frac{1}{V} \int_{V_{fluide}} \dot{\boldsymbol{\epsilon}}(\overrightarrow{u}) dv \tag{4.36}$$

L'analyse du tenseur des taux de déformation sur le volume montre que seules les composantes dans le plan de cisaillement sont non nulles.

Une étude supplémentaire a permis de montrer que (dans les domaines de concentrations testés) :

$$\dot{\gamma}_{apparent} = \frac{U}{h} \tag{4.37}$$

Dans toutes nos simulations, nous avons pris la viscosité du fluide égale à  $1 \text{ Pa.s}^{-1}$ .

#### 4.3.2.2 Evolution de la viscosité avec le temps

Les essais ont été réalisés avec le plan d'expérience numérique décrit dans la section 3.2.3 du chapitre 3.

Validation du modèle micromécanique pour le calcul de la viscosité en cisaillement On se propose de valider le calcul de la viscosité en confrontant nos mesures au modèle d'Einstein. Ce modèle théorique permet de déterminer simplement la viscosité d'une suspension de sphères rigides par la relation suivante :

$$\eta_{suspension} = \eta_{fluide} (1+2, 5\Phi) \tag{4.38}$$

La viscosité de la suspension depend alors uniquement de la concentration de sphères et de la viscosité de la matrice. Cette théorie décrit le comportement Newtonien d'une suspensions diluée de sphères rigides.

La figure 4.12 présente l'évolution de la viscosité relative en fonction de la concentration en sphères.

Nos résultats sont en accord avec le modèle d'Einstein dans des régimes de concentration allant du dilués au semi-concentrés. Lorsqu'on se place dans le domaine concentré, le modèle d'Einstein devient non valide et prévoit une viscosité plus faible que celle obtenue avec le modèle numérique.


FIG. 4.12 – Confrontation du calcul avec la théorie d'Einstein. Évolution de la viscosité avec la concentration en sphères

Influence de la concentration de fibres Les figures 4.13, 4.14 et 4.15 présentent l'évolution de la viscosité  $\eta_{apparente}$  en fonction de la déformation  $\gamma$  dans le cas d'un écoulement Newtonien de cisaillement simple, en fonction de la concentration volumique en fibre pour un rapport de forme donné.

Nous trouvons que la viscosité en cisaillement est une fonction croissante de la fraction volumique de fibres. Ce résultat est en accord avec les résultats de la littérature, [88].



FIG. 4.13 – Effet de la concentration sur la viscosité apparente d'une suspension de 60 fibres initialement orientées aléatoirement. Evolution de la viscosité  $\eta$  en fonction de la déformation  $\gamma = \dot{\gamma}_{apparent}t$  dans le cas d'un écoulement Newtonien de cisaillement simple pour rapport de forme  $\beta = 3$ 



FIG. 4.14 – Effet de la concentration sur la viscosité apparente d'une suspension de 60 fibres initialement orientées aléatoirement. Evolution de la viscosité  $\eta$  en fonction de la déformation  $\gamma = \dot{\gamma}_{apparent}t$  dans le cas d'un écoulement Newtonien de cisaillement simple pour rapport de forme  $\beta = 6$ 



FIG. 4.15 – Effet de la concentration sur la viscosité apparente d'une suspension de 60 fibres initialement orientées aléatoirement. Evolution de la viscosité  $\eta$  en fonction de la déformation  $\gamma = \dot{\gamma}_{apparent}t$  dans le cas d'un écoulement Newtonien de cisaillement simple pour rapport de forme  $\beta = 12$ 

Influence de la longueur des fibres Les figures 4.16 et 4.17 présentent l'évolution de la viscosité  $\eta$  en fonction de la déformation  $\gamma$  dans le cas d'un écoulement Newtonien de cisaillement simple, en fonction du rapport de forme des particules et de la concentration volumique. Deux concentrations ont été considérées,  $\Phi = 4$  et 8% pour différentes valeurs de rapport de forme  $\beta$ .

L'analyse des tracés montre que l'influence du rapport de forme est moins marquée que l'effet de la fraction volumique. On note cependant que la viscosité est plus importante pour les suspensions de rapport de forme 6 par rapport à la suspension de rapport de forme 3.



FIG. 4.16 – Effet du rapport de forme des fibres sur la viscosité apparente d'une suspension de 60 fibres initialement orientées aléatoirement de concentration  $\phi = 4$  %. Evolution de la viscosité  $\eta$  en fonction de la déformation  $\gamma = \dot{\gamma}_{apparent}t$  dans le cas d'un écoulement Newtonien de cisaillement simple



FIG. 4.17 – Effet du rapport de forme des fibres sur la viscosité apparente d'une suspension de 60 fibres initialement orientées aléatoirement de concentration  $\phi=8$  %. Evolution de la viscosité  $\eta$  en fonction de la déformation  $\gamma = \dot{\gamma}_{apparent}t$  dans le cas d'un écoulement Newtonien de cisaillement simple

Influence de l'orientation initiale des fibres Nous avons réalisé un essai numérique comparable à l'essai de mesure du pic de viscosité effectué par Souloumiac [84]. Pour cela, nous avons soumis un échantillon, dont les fibres sont initialement orientées dans une direction privilégiée, à un écoulement de cisaillement simple. Deux configurations ont été testées :

- échantillons dont les fibres sont orientées dans la direction d'écoulement,
- échantillons dont les fibres sont orientées perpendiculairement à l'écoulement.

Les figures 4.18, 4.19 et 4.20 présentent l'évolution de la viscosité apparente en fonction du temps pour différentes orientations initiales et différentes concentrations.

Plusieurs points ressortent de ces courbes :

\* Nous confirmons que la viscosité en cisaillement est une fonction croissante de la fraction volumique de fibres. Les figures 4.18 et 4.19 illustrent bien ce phénomène.



FIG. 4.18 – Effet de l'orientation initiale des fibres sur la viscosité apparente en fonction du temps dans le cas d'un écoulement Newtonien de cisaillement simple -Fibres initialement orientées dans la direction d'écoulement  $\beta = 10$ -

- \* Pour une même concentration de fibres, on mesure une viscosité plus importante pour les fibres initialement orientées perpendiculairement à l'écoulement (Figure 4.20). On note également qu'à l'instant initial, il n'y pas de différence de viscosité pour les deux orientations testées.
- \* Lorsque les fibres sont initialement perpendiculaires à l'écoulement, on observe au début de l'essai, un pic de viscosité. Ce pic de viscosité est associé à la ré-orientation des fibres dans la direction d'écoulement (cas des suspensions concentrée à  $\Phi = 6, 25$  et 14%). Pour la suspension de fibres la plus concentrée ( $\Phi = 36, 56\%$ ), les fibres forment un obstacle à l'écoulement.
- \* Lorsque la suspension de fibres est plus concentrée ( $\phi = 14\%$ ) et orientée initialement



FIG. 4.19 – Effet de l'orientation initiale des fibres sur la viscosité apparente en fonction du temps dans le cas d'un écoulement Newtonien de cisaillement simple -Fibres initialement orientées perpendiculairement à l'écoulement  $\beta = 10$ -



FIG. 4.20 – Effet de l'orientation initiale des fibres sur la viscosité apparente en fonction du temps dans le cas d'un écoulement Newtonien de cisaillement simple -Influence de l'orientation initiale des fibres  $\beta = 10$  et  $\Phi = 14\%$ -

dans la direction d'écoulement, on montre que le mouvement périodique des fibres est retardé (Figure 4.20) du fait de l'interaction entre particules.

#### 4.3.3 Loi de comportement rhéologique

#### 4.3.3.1 Principe

I

Considérons une suspension de particules en écoulement de cisaillement simple dans le plan (1,2). Le champ de vitesse prend la forme suivante :

$$\vec{u} = \begin{vmatrix} \dot{\gamma}_{apparent} x_2 \\ 0 \\ 0 \end{vmatrix}$$
(4.39)

Le tenseur des taux de déformations n'a que deux composantes non nulles et le terme de cission s'écrit d'après l'équation 4.10:

$$T_{12} = \eta_1 \dot{\gamma}_{apparent} (1 + N_s + 2N_p < a_{1122} >) \tag{4.40}$$

Si on considère que  $N_s$  est négligeable devant  $N_p$  pour des grands facteurs de forme et que  $\eta_1$  est la viscosité de la matrice. Alors la viscosité en cisaillement d'une suspension de fibres s'exprime par la relation suivante :

$$\eta_{apparent} = \frac{T_{12}}{\dot{\gamma}_{apparent}} = \eta_1 (1 + 2N_p < a_{1122} >) \tag{4.41}$$

La viscosité en cisaillement de la suspension dépend alors de la moyenne des orientations (ie du terme  $\langle a_{1122} \rangle = \langle p_1^2 p_2^2 \rangle$ ) dans le plan de cisaillement. Connaissant l'évolution avec le temps du tenseur d'orientation  $a_4$  et la valeur de la viscosité apparente calculée avec la relation 4.34, nous pouvons déduire la valeur du paramètre  $N_p$  comme suit :

$$N_p = \frac{\eta_{apparent} - \eta_1}{2\eta_1 < a_{1122} >} = \frac{\tau_{impos\acute{e}} - (\eta_1 < \dot{\gamma}_{apparent} >)}{2\eta_1 < a_{1122} > < \dot{\gamma}_{apparent} >}$$
(4.42)

L'expression de  $N_p$  proposée laisse suggérer que ce paramètre évolue avec le temps comme la composante  $a_{1122}$  du tenseur  $a_4$  et le taux de déformation. Or ce paramètre est un scalaire. Nous avons donc choisi de l'exprimer en fonction de la moyenne dans le temps du taux de déformation  $\dot{\gamma}_{apparent}$  et de  $a_{1122}$ .

#### 4.3.3.2 Evolution de la composante $a_{1122}$ du tenseur $a_4$

L'étude bibliographique sur les modèles de comportement Newtonien pour fibres rigides a montré que l'évolution de la viscosité en cisaillement était associée à l'évolution de la composante  $a_{1122}$  du tenseur  $a_4$ . Ce dernier terme décrit la désorientation des fibres lors de l'écoulement.

On se propose de corréler l'évolution de la viscosité avec le temps en fonction de l'évolution de la composante  $a_{1122}$  du tenseur  $a_4$ .

La figure 4.22 b) présente l'évolution de la viscosité apparente en fonction du temps pour une orientation des fibres initialement alignées dans la direction d'écoulement (Figure : 4.21 a)) (régime de concentration  $\Phi{=}6~\%$ ,  $\beta=12$ )

L'analyse des courbes présente l'évolution de  $a_{11}$ , de  $a_{1122}$  et de la viscosité de cisaillement  $\eta_{apparent}$  en fonction du temps. Corrélée aux images du calcul, elle montre que :

- \* Les fibres débutent ensemble leurs mouvements de rotation dans le sens des aiguilles d'une montre à t = 3.8 s (Figure : 4.21 b)). Ce changement d'orientation des fibres entraı̂ne une augmentation de la viscosité comme le traduit la figure 4.22 b) entre 3 et 4s.
- \* Au temps t = 4,9 s, une partie des fibres a réalisé une demi période de rotation (Figure : 4.21 c)).
- \* Autour de 9 s, on observe un deuxième pic de viscosité associé à un pic de la composante  $a_{1122}$  (Figure : 4.21 d)).
- \* A 12,2 s, on observe visuellement que la majeure partie des fibres semblent alignée dans la direction d'écoulement (Figure : 4.21 e)), la valeur de  $a_{11}$  tend vers 0,9 (Figure : 4.22 a)). Cet état d'orientation correspond à une diminution de la viscosité globale.

L'analyse des tracés montre que la connaissance de l'évolution de la composante  $a_{1122}$  permet de rendre compte des évolutions de la viscosité liée à la réorganisation de l'état d'orientation durant l'écoulement. La méthode proposée est donc valable pour déterminer, dans le cas d'un écoulement de cisaillement simple, la valeur du paramètre  $N_p$ 



FIG. 4.21 – -Images du calcul- Écoulement Newtonien de cisaillement simple cas d'une suspension de fibres initialement orientées dans la direction de l'écoulement  $\Phi = 6\%$ 



a) Evolution de la première composante  $a_{11}$  du tenseur  $a_2$  et de la composante  $a_{1122}$  du tenseur  $a_4$ 



b) Evolution de la viscosité en cisaillement et de la composante  $a_{1122}$  du tenseur  $a_4$ 

FIG. 4.22 – Écoulement Newtonien de cisaillement simple cas d'une suspension de fibres initialement orientées dans la direction d'écoulement  $\Phi = 6\%$ 

#### 4.3.3.3 Mesure du paramètre $N_p$

Le tableau 4.5 présente les valeurs de  $N_p$  mesurées pour un écoulement de cisaillement simple.

Rapport de forme $\beta$	Concentration $\%$ en vol.	Paramètre rhéologique $N_p$
3	2	2,19
	4	4,79
6	4	6,9
	8	19,54
12	8	24,40
	15	54,71

TAB. 4.5 – Calcul numérique du paramètre rhéologique  $N_p$ 

Les valeurs de  $N_p$  mesurées sont croissantes avec la fraction volumique et le rapport de forme des fibres. Ces valeurs ont été comparées aux valeurs de  $N_p$  issues de la théorie des corps élancés. Le tableau 4.6 présente une confrontation entre les modèles de :

- Batchelor [77],
- Dinh et Armstrong [63] ( $N_p$  est exprimé dans le cas d'une orientation isotrope),
- Shaqfeh et Fredrickson [78] corrigé pour prendre en compte l'épaisseur des fibres,
- Phan-Thien et Graham [82].

Nous avons traité le cas de trois facteurs de forme  $\beta$  : 3, 6 et 12.

$\beta$	Φ	$N_{p}[77]$	$N_p[63]$	$N_p[78]$	$N_p[82]$
	% en vol.	Batchelor	Dinh et Armstrong	Shaqfeh et Fredrickson	Phan-Thien et Graham
3	2	$0,\!0546$	-0,0254	0,069	0,0919
	4	0,109	-0,0719	$0,\!109$	$0,\!179$
6	4	0,267	-0,49	0,522	0,368
	8	0,535	-3,39	$1,\!354$	$0,\!573$
12	8	$1,\!54$	9,38	$4,\!67$	1,797
	15	$2,\!89$	6,92	12, 11	$3,\!37$

TAB. 4.6 – Comparaison des modèles issus de la théorie des corps élancés

L'analyse des résultats met évidence trois points :

- \* Les valeurs de  $N_p$  mesurées sont très supérieures aux valeurs de  $N_p$  issues de la théories des corps élancés. Néanmoins, on remarque que les tendances sont respectées. La valeur du paramètre rhéologique est croissante avec le rapport de forme et la concentration de fibres et ce pour toutes les théories.
- \* Les modèles de Batchelor et Phan-Thien et Graham donnent des résultats proches.

\* Le modèle de Shaqfeh et Fredrickson donne des valeurs de  $N_p$  beaucoup plus fortes que les autres théories.

Il est difficile de conclure sur les valeurs de  $N_p$  mesurées par le calcul de simulation directe. La méthode proposée permet de capturer les tendances. Ces résultats sont encourageants mais restent limités à des facteurs de forme petits comparés à ceux rencontrés dans une pièce injectée.

#### 4.3.4 Conclusion de l'étude numérique

Cette étude numérique a permis de tester la faisabilité d'une approche numérique de rhéologie. Nous disposons d'un outil d'étude du comportement rhéologique d'une suspension de particules. Cette approche a été validée par la théorie d'Einstein. Nous trouvons que la viscosité en cisaillement d'une suspension de fibres est une fonction croissante de la fraction volumique. La viscosité est par contre peu sensible au rapport de forme des particules. Nous avons montré que, sauf à l'instant initial, la dynamique d'orientation des particules peut être reliée à la viscosité. Nous disposons, d'autre part, d'un outil d'identification des paramètres de loi de comportement. Nous avons présenté des premiers résultats d'identification du paramètres  $N_p$ . Les calculs pourront être affinés en prenant en compte les effets de collisions pour les suspensions concentrées et en considérant d'autres types écoulements. D'autres part, en considérant des rapports de forme supérieurs à 20, nous pourrions comparer nos mesures aux modèles issus de la théorie des corps élancés.

### 4.4 Conclusions du chapitre 4

Ce dernier chapitre a porté sur l'étude du comportement rhéologique d'une suspension de fibres longues.

L'étude bibliographique a mis en évidence deux difficultés dans la détermination d'une loi de comportement.

- Le calcul de la contribution des fibres au tenseur des contraintes macroscopiques représente le premier point délicat. Pour aboutir à une estimation de ce terme, il est nécessaire de faire des nombreuses hypothèses qui limitent le domaine de validité de ces lois.
- La deuxième difficulté vient de la détermination des paramètres rhéologiques des modèles de comportement. Le facteur rhéologique  $\eta_1$  est associé à une mesure de viscosité en cisaillement. Les mesures de  $N_p$  nécessitent la mise en place d'écoulements à composantes élongationnelles. Toutefois, il est possible de le mesurer lors d'un essai en le reliant au pic de viscosité.

L'approche expérimentale a permis de caractériser le comportement d'un polypropylène renforcé de fibres longues. Ces résultats expérimentaux sont en accord avec les résultats issus de la littérature. Cependant, nous constatons que les essais de rhéomètrie capillaire, simples dans leur principe, sont délicats à mettre en oeuvre dans le cas de suspensions de particules. Il est donc difficile d'obtenir des résultats répétables et quantitatifs. Pour cela, nous avons proposé une approche numérique d'étude du comportement rhéologiques. La dernière partie de ce chapitre était consacrée à la description et l'exploitation de l'outil numérique de rhéologie. Nous avons mis au point un outil de :

- rhéologie numérique qui permet l'étude du comportement rhéologique d'une suspension en fonction de la concentration volumique, du rapport de forme et de l'orientation des fibres,
- identification des paramètres de loi de comportement.

Afin de se rapprocher des conditions de mise en oeuvre de ces composites, il serait intéressant d'étudier :

- des suspensions plus concentrées en prenant en compte les effets de collisions entre fibres,
- l'effet du comportement non linéaire de la matrice sur l'orientation des fibres et sur le comportement rhéologique de la suspension, en considérant que le comportement de la matrice peut être décrit par une loi puissance ou par une modèle viscoélastique,
- les effets d'une distribution de longueur de la population de fibres sur la rhéologie,
- les effets de ségrégation (formation d'amas) sur l'évolution du comportement rhéologique

## **Conclusions** & **Perspectives**

L'objectif de cette thèse était de contribuer à la compréhension et à la modélisation des phénomènes d'orientation dans des thermoplastiques renforcés de fibres. Deux approches ont été utilisées :

- <u>une étude expérimentale</u> permettant de caractériser l'orientation et la structure des fibres dans une pièce injectée.
- <u>une étude numérique</u> de modélisation de l'orientation des fibres basée sur le calcul direct du mouvement d'orientation d'une population de fibres en écoulement (approche micromécanique).

**Caractérisation de l'orientation et de la structure des fibres** Une étude expérimentale a permis de montrer l'influence des paramètres technologiques sur la structure et de quantifier l'orientation des fibres. Cette étude a été réalisée sur une plaque, d'épaisseur modulable, injectée en pleine peau en polypropylène renforcé de fibres de verre d'une longueur initiale de 4 mm et de 12 mm.

L'analyse de *la distribution de la longueur* des fibres dans la pièce a permis de montrer que le passage des granulés (mèches de fibres enrobées de polymère) dans la vis de plastification induit une diminution de la longueur des fibres d'environ 70% pour les fibres initialement de 12 mm et de 50 % pour les fibres de 4 mm. L'étude de la distribution de longueur des fibres dans la pièce a d'autre part indiqué qu'il y avait peu de casse le long du chemin d'écoulement.

La quantification de *la distribution de l'orientation* des fibres dans l'épaisseur des plaques a été réalisée avec une technique de mesure surfacique complétée par des mesures tridimensionnelles de microtomographie par rayon X. Ces mesures complémentaires ont révélé que la technique surfacique était valide et suffisante pour décrire l'orientation de fibres de verres longues dans une plaque : l'erreur commise par les techniques 2D, due à la présence des fibres courbées, s'est avérée négligeable. L'observation et la quantification de l'orientation dans l'épaisseur des pièces a permis de mettre en évidence la présence d'une structure **coeur-peau**, similaire à celle observée avec les composites chargés fibres courtes.

L'étude de l'influence des paramètres procédés, tels que la vis de plastification, la vitesse

d'injection et la température du moule, n'a pas indiqué d'influence significative sur la distribution d'orientation dans la pièce.

Cette étude expérimentale, réalisée sur une pièce de géométrie simple, a néanmoins permis de mettre en évidence des phénomènes d'orientation complexes. Il en ressort que la *concentration de fibres* est un paramètre déterminant sur la "formation" et les caractéristiques de la structure coeur-peau. Ainsi, les plaques injectées en polypropylène renforcé de 10% de fibres de verre ne présentent pas de structure coeur-peau; et nous avons également observé que la densité de fibres dans l'épaisseur n'était pas constante.

L'origine de ces arrangements est complexe. Elle est liée aux interactions qui apparaissent au cours de l'écoulement, mais aussi aux propriétés de la matrice (comportement rhéologique) et des fibres elles-mêmes (concentration, longueurs). La difficulté réside dans la mise en évidence de ces interactions : s'il est d'usage de considérer les interactions hydrodynamiques fibres-fluide, les interactions fibres-fibres et fibres-parois, l'observation expérimentale de ces phénomènes est difficile (des mesures dynamiques 3d permettraient de voir l'évolution d'une orientation mais doivent être encore améliorées techniquement)

D'autre part, une étude expérimentale du comportement rhéologique nous a permis de caractériser le comportement du polypropylène renforcé de fibres longues. Ces essais ont montré que les essais de rhéomètrie capillaire, simples dans leur principe, étaient délicats à mettre en oeuvre dans le cas de suspensions de particules. Il a été difficile d'obtenir des résultats reproductibles et quantitatifs. Dans la gamme de taux de cisaillement considérée (zone de superposition des courbes), nous sommes à la limite des moyens de mesures (fibres trop longues, pressions instables, expulsion des fibres au cours de la mesure). Néanmoins, nos mesures de viscosité obtenues avec les rhéométries plan-plan et capillaire sont en accord avec les résultats issues de la littérature. Nous constatons que la viscosité en cisaillement est faible. Cependant, dans des gammes de vitesses de cisaillement proches de celles rencontrées en injection, nous n'observons pas d'effet de la concentration sur la viscosité en cisaillement.

L'étude expérimentale a permis de quantifier, plus ou moins difficilement, l'orientation de fibres sur une géométrie simple et suivant plusieurs paramètres. Nous avons également pu déterminer le comportement rhéologique de la matrice chargée en fonction de plusieurs paramètres. L'ensemble des résultats met cependant clairement en évidence la nécessité de disposer d'un outil numérique de modélisation et de compréhension des mécanismes d'orientation en écoulement

#### Modèle de Simulation Directe

Dans une optique de compréhension des phénomènes d'orientation de fibres longues, nous avons proposé une approche de simulation directe. Ces travaux de recherche s'inscrivent dans un thème nouvellement défini dans le groupe de recherche Calcul Intensif en Mise en forme. Le groupe souhaite développer un pôle de compétence dans la caractérisation de fluides complexes. Notre contribution à ce développement a été de construire un modèle capable de décrire l'orientation d'une population de fibres en quantifiant l'ensemble des interactions hydrodynamiques apparaissant dans un écoulement fluide-particules. Cet outil original nous a permis d'accéder à la physique intrinsèque des écoulement fluide-particules. Ce type d'approche est nécessaire pour étudier la dynamique et les propriétés macroscopiques des suspensions de fibres, en complément des mesures expérimentales. En effet, la connaissance précise de l'écoulement à l'échelle des particules est déterminante dans la compréhension du mouvement global.

Cette méthode présente l'intérêt d'être basée sur un minimum d'hypothèses restrictives et de modèles. Le mouvement du fluide newtonien est régi par les équations de Stokes. Le mouvement des particules suit les lois de Newton. En construisant *un système unique d'équations, valable dans les deux milieux simultanément*, l'approche ne nécessite pas d'exprimer explicitement les interactions entre le fluide et les particules. A partir d'un modèle de deux fluides non miscibles, nous avons fait dégénérer l'un d'eux en un milieu dispersé rigide en modifiant sa loi de comportement. En imposant une viscosité "infinie" à la phase dispersée, nous sommes en mesure de décrire le comportement de particules indéformables. La deuxième étape du calcul vise à assurer le transport des particules dans la cavité. Nous proposons une méthode "particulaire" permettant un déplacement exact des particules. Pour cela, on suit le mouvement du centre de masse de la particule ainsi que de ses extrémités en supposant que la fibre a une longueur constante. Enfin, la génération des domaines (ie définition de zones "fibres" sur le maillage eulérien du domaine) s'inspire d'une technique d'analyse d'images. Cette approche consiste à imprimer le maillage transporté des particules dans le maillage "fixe" de la cavité.

Les différentes validations qui ont été effectuées soulignent un bon comportement de cette méthode pour modéliser l'écoulement de particules rigides dans un fluide. Nous avons validé notre approche dans le cas d'un écoulement de cisaillement, en confrontant le mouvement d'une particule aux prédictions de Jeffery. Le calcul permet de rendre compte du mouvement périodique d'une fibre en cisaillement simple. Enfin, le modèle permet de calculer explicitement les interactions fluide-particules, particules-particules et particules-paroi.

#### Etude Numérique du comportement d'une suspension de fibres

L'approche proposée a fait l'objet d'une application à une population de 60 fibres. Nous nous sommes intéressés à la dynamique de l'orientation ainsi qu'au comportement rhéologique de cette suspension soumise à un écoulement de cisaillement simple.

#### – Approche Micro-mécanique

Lorsqu'on applique un cisaillement à l'échantillon, le calcul de simulation directe nous a permis d'obtenir l'évolution des tenseurs  $a_2$  et  $a_4$ . Il s'est avéré que l'évolution du tenseur  $a_2$  était un descripteur statistique, pertinent, de l'orientation d'une population de fibres. A partir de ces données, il nous a été possible d'étudier les phénomènes d'interaction entre particules en fonction de la concentration et du rapport de forme des fibres.

Nous avons montré que :

 Le niveau d'orientation atteint à l'état stationnaire tend vers l'isotropie dans le cas de suspensions concentrées. Les fibres ont tendance à moins bien s'orienter dans la direction d'écoulement lorsque l'on augmente la concentration de fibres. Ces résultats suivent la théorie de Folgar et Tucker sur le coefficient d'interaction  $C_i$ .

 Le niveau d'orientation atteint à l'état stationnaire est plus important pour des suspensions de fibres de rapport de forme plus grand.

Partant du constat que la littérature consacrée aux modèles de prédiction de l'orientation révélait la difficulté de déterminer les paramètres des lois statistiques, nous nous sommes ensuite intéressés à l'étude des paramètres de la loi de Folgar et Tucker.

#### – Application à l'étude du modèle de prédiction de Folgar et Tucker

#### \* <u>Coefficient d'interaction</u>

Nous avons proposé une méthode de détermination du coefficient d'interaction  $C_i$  en fonction de la concentration et du rapport de forme des fibres. Les résultats obtenus montrent que la valeur du  $C_i$  augmente avec la concentration mais diminue avec le rapport de forme des fibres (pour une concentration donnée). Cette approche a été validée en confrontant l'évolution du tenseur  $a_2$  issue de la résolution avec une approximation de fermeture quadratique de l'équation de Folgar et Tucker. Les tendances sont en accord avec les valeurs expérimentales de Folgar et Tucker et les calculs numériques de Phan-Thien.

#### \* Approximation de Fermeture

Nous avons proposé une méthode de test des approximations de fermeture. Cette méthode consiste à comparer deux évolutions du tenseur  $a_4$ : l'une issue de la simulation directe, et l'autre calculée en appliquant une relation de fermeture à l'évolution du tenseur  $a_2$  obtenue par la simulation. Les résultats ont montré que, dans le cas d'un écoulement de cisaillement simple, les approximations hybrides et orthotropes permettent de décrire correctement l'évolution de la première composante de  $a_4$ . Les approximations orthotropes présentent un comportement non physique pour la prédiction de la composante de  $a_{1212}$  du tenseur  $a_4$ .

#### – Approche de rhéologie numérique

La détermination de la loi de comportement de milieux dispersés nécessite la comprehension des mécanismes de réarrangements locaux. Les propriétés macroscopiques de cette suspension dépendent de l'évolution de la microstructure. Dans cette optique, nous avons proposé une méthode permettant de calculer la viscosité de la suspension soumise à un cisaillement simple en fonction de la concentration locale. Les résultats obtenus sont en accord avec les observations expérimentales. Notamment, on a montré que la viscosité de cisaillement était une fonction croissante de la concentration et de la longueur de fibres. D'autre part, cette étude nous a permis de mettre en évidence le fait que la viscosité de cisaillement pouvait être décrite par l'évolution de la composante  $a_{1212}$  du tenseur  $a_4$ . Ces résultats très encourageants, nous ont permis de proposer par la suite une méthode de calcul du paramètre d'une loi de comportement issue de la théorie des corps élancés. L'analyse des résultats montre que les résultats obtenus sont en accord avec la littérature.

Ce travail ouvre plusieurs perspectives de recherche.

#### D'un point de vue numérique

Au vue des diverses expériences numériques menées, il apparaît clairement qu'une des limitations du modèle est le *domaine de concentration* exploré. Pour lever cette limitation, il convient d'utiliser des maillages plus fin. Ceci passe à notre avis, et dans le but d'améliorer les performances du code, par le passage du modèle de simulation directe à une structuration parallèle.

Une seconde limitation, observée lors de calculs dans les regimes de "fortes concentrations" (ie 10%), est la *formation d'agrégats de fibres*. Il semble donc nécessaire d'orienter les recherches à venir vers le *traitement du contact* entre fibres. Cette caractéristique permettrait d'étudier des écoulements fortement chargés.

Il serait également nécessaire de mener une étude plus poussée sur la détermination du Volume Élémentaire Représentatif (VER) : dépendance au pas de temps, à la taille de maille et au nombre de fibres.

Concernant les méthodes numériques a proprement dites, plusieurs alternatives aux méthodes implémentées existes :

- Méthodes LevelSet ou Domaines fictifs pour le calcul du taux de présence de fibres
- Méthode de Lagrangien Augmenté pour imposer la condition de mouvement rigide

**Concernant le comportement des fibres** Tout d'abord, notre étude numérique a été limitée au cas d'une suspension de fibres rigides soumise à un écoulement Newtonien de cisaillement simple. Il serait alors intéressant d'étudier l'influence d'autres types d'écoulement.

L'étude expérimentale a mis en évidence la présence de fibres courbées. L'extension du modèle à ce type de comportement est facilement réalisable. L'ensemble de la méthode serait inchangée, mis à part le transport de fibres. En passant la représentation de la fibre (durant cette étape du calcul) de deux à trois points, on rendrait compte de la flexibilité de celle-ci.

D'autre part, les composites commerciaux ne sont pas des fluides modèles. Une fois injectée, la longueur de fibres n'est pas unique. Dans une pièce, on observe une distribution de longueurs dont il serait intéressant de simuler le comportement. De plus, afin d'améliorer les propriétés thermo-mécaniques de ces composites, de nombreux fournisseurs matières ajoutent en plus des fibres des charges minérales de forme diverses (lamellaire, circulaire). Il serait alors intéressant de simuler des écoulements de mélanges bi-dispersés ou polydispersés afin de mettre en évidence la redistribution spatiale de chacun des constituants. D'un point de vue rhéologique, il est possible de modifier la loi de comportement du fluide porteur (fluide d'Olroyd par exemple) pour étudier les réarrangements d'une dispersion de particules dans un tel fluide. Certains points seront traités dans le cadre de la thèse de Gregory Beaume qui porte sur l'étude d'un "Écoulement d'un fluide complexe, de la phase de remplissage à la phase de refroidissement". Enfin l'ensemble de ces travaux et données numériques présentés et issus de la physique à l'échelle des fibres permettront d'alimenter les paramètres de lois macroscopiques d'orientation de Folgar et Tucker et de comportement rhéologique. Ces modèles ont été implémentés dans le cadre de la thèse d'Abla Redjeb dont le sujet est : "Simulation numérique de l'orientation de fibres en injection de thermoplastiques renforcés".

### Annexe 1

#### Algorithme d'impression de la classe écran

Cette annexe décrit l'algorithme adoptée pour imprimer un maillage donné (la fibres) dans un maillage globale et ainsi mettre à jour les fonctions caractéristiques.

#### Notations

- 1. La notation x[j] signifie que l'on considère la jème composante de x avec  $0 \le j < d$ (d étant la dimension spatiale du problème, = 1, 2 ou 3).
- 2. On veut imprimer un maillage dans une boite définie par un point origine Min et les longueurs L.
- 3. La résolution en pixel dans chaque direction est donnée par le vecteur  $(resol[j] + 1)_{j=0;j < d}$ .
- 4. La position  $x_k[j]$  du pixel no k (  $0 \leq k \leq resol[j])$  dans la direction j est donnée par la relation

$$x_k[j] = a[j] \ k + b[j]$$
 avec  $a[j] = \frac{L[j]}{resol[j]}$  et  $b[j] = Min[j]$ 

La distance,  $\Delta_x[j]$ , entre deux pixels dans la direction j est donc a[j].

5. Le pixel le plus proche du point défini par les coordonnées ( $x[j], 0 \leq j \leq \mathtt{d})$  est donnée par la relation

$$pix[j] = (\texttt{int}) \operatorname{round}(A[j] x[j] + B[j]) \quad \text{avec} \quad A[j] = \frac{1}{a[j]} \quad \text{et} \quad B[j] = -\frac{Min[j] \operatorname{resol}[j]}{L[j]}$$

$$(43)$$

On a rajouté la fonction round qui transforme un double en son plus proche int.

6. On peut paramétrer un Simplex qui a D<br/> sommets,  $(x_s^l, \ 0 \leq l < D)$  par la formule

$$x = x_s^0 (1 - \sum_{l=1}^{D-1} \alpha_l) + (\sum_{l=1}^{D-1} x_s^l \alpha_l)$$

avec  $\alpha_l \leq 1 - \sum_{m=1}^{l-1} \alpha_m$ . Ce qui donne pour un segment de droite (d = 1, D = 2):

$$x = x_s^0 (1 - \alpha_1) + x_s^1 \ \alpha_1$$

et pour un triangle (d = 2, D = 3)

$$x[j] = x_s^0[j](1 - \alpha_1 - \alpha_2) + x_s^1[j] \ \alpha_1 + x_s^2[j] \ \alpha_2$$

etc .....

7. On peut prendre (  $\alpha_l = i/N_l, 1 \leq l < D)$  avec les contraintes suivantes sur les indices :

$$0 \leq i \leq N_i$$
  

$$0 \leq j \leq N_2 (1 - \frac{i}{N_1}) = \frac{N_2}{N_1} (N_1 - i)$$
  

$$0 \leq k \leq N_3 (1 - \frac{i}{N_1} - \frac{j}{N_2}) = \frac{N_3}{N_1 N_2} (N_1 N_2 - N_2 i - N_1 j)$$

.....

L'ensemble des points obtenus en faisant varier les indices i, j, k appartient au Simplex

#### L'impression d'un Simplex

On va détailler comment imprimer un simplex du maillage dans la boîte. L'étape principale consiste à trouver les voxels qui se trouvent à l'intérieur du simplex.

La méthode naturelle qui consiste à regarder si les coordonnées d'un pixel est à l'intérieur d'un simplex est assez coûteuse en temps (il faut calculer les coordonnées barycentriques dans le simplex de ce point (les  $\alpha_l$ ) et vérifier qu'ils sont positifs ou nuls).

On va plutôt balayer l'ensemble des points appartenant au simplex et déterminer le pixel associé à chacun de ces points par la relation (43). La principale difficultée étant de choisir des nombres de point,  $N_l$ , optimaux pour ne pas faire de calcul inutile et ne pas manquer de pixel.

Dans le cas 1D, le simplex est un segment de droite  $[x_s^0, x_s^1]$  et les points qui parcourent ce segment s'écrivent

$$x_i = x_s^0 (1 - \frac{i}{N_1}) + x_s^1 \frac{i}{N_1}$$

et  $\Delta_i = x_{i+1} - x_i = \frac{x_s^1 - x_s^0}{N_1}$  qui doit être inférieur ou égal au pas,  $\Delta_x$  entre deux pixels. Il faut prendre

$$N_1 = \frac{x_s^1 - x_s^0}{\Delta_x} = \frac{x_s^1 - x_s^0}{a[0]}$$

Dans le cas 2D, le simplex est un triangle et on a

$$\begin{array}{rcl} x_{i,j}[l] &=& x_s^0[l](1-\frac{i}{N_1}-\frac{j}{N_2})+x_s^1[l] \; \frac{i}{N_1}+x_s^2[l] \; \frac{j}{N_2}, & 0 \le l < 2 \\ x_{0,0}[l] &=& x_s^0[l], & 0 \le l < 2 \\ x_{N_1,0}[l] &=& x_s^1[l], & 0 \le l < 2 \\ x_{0,N_2}[l] &=& x_s^2[l], & 0 \le l < 2 \end{array}$$

Lorsque, on fait varier les indices i et j, on déplace les point  $x_{i,j}$  de

$$\Delta_{1}[l] = |x_{i+1,j}[l] - x_{i,j}[l]| = \frac{|x_{s}^{1}[l] - x_{s}^{0}[l]|}{N_{1}}, \ l = 0, 1$$
  
$$\Delta_{2}[l] = |x_{i,j+1}[l] - x_{i,j}[l]| = \frac{|x_{s}^{2}[l] - x_{s}^{0}[l]|}{N_{2}}, \ l = 0, 1$$

les conditions pour ne pas manquer de pixel sont

$$\max(\Delta_1[0], \Delta_2[0]) \le \Delta_x[0]$$
 et  $\max(\Delta_1[1], \Delta_2[1]) \le \Delta_x[1]$ 

ce qui donne

$$N_1 = \max_{l=1,2} \left( \left| \frac{x_s^1[l] - x_s^0[l]}{a[l]} \right| \right) \text{ et } N_2 = \max_{l=1,2} \left( \left| \frac{x_s^2[l] - x_s^0[l]}{a[l]} \right| \right)$$

On peut déduire la formule générale

$$N_l = \max_{0 \le k < d} \left( |\frac{x_s^l[k] - x_s^0[k]}{a[k]}| \right), \quad 0 < l < D$$

où d est la dimension spatiale et D est la dimension topologique.

Dans la pratique, on remplace dans cette formule a[k] par  $\alpha a[k]$ ,  $\alpha$  étant un coefficient inférieur à 1, car on n'arrive pas à récuperer tous les pixels à cause de problème d'arrondis. on a pris .5 pour l'impression et .9 pour la création de la fonction caractéristique.

## Bibliographie

- C.L. Tucker. Flow regimes for fibers suspensions in narrow gaps. Journal of Non-Newtonian Fluid Mechanics, 39:239, 1991.
- [2] F. Truckenmuller and H.G Fritz. Injection moulding of long fibre reinforced thermoplastics : a comparaison of extruded and pultruted materials with direct addition of roving strands. *Polymer Engineering Sciences*, 39:239, 1991.
- [3] M. Akay and D. Barkley. Flow aberrations and weld lines in glass fibre reinforced thermoplastic injection moulding. *Plastic Rubber Composite Processing Applications*, 20:137, 1993.
- [4] L. Averous, J.C Quantin, and A. Crespy. Evolution of the three-dimensional orientation of glass fibres injected isotactic polypropylene. *Polymer Engineering and Science*, 37:239, 1997.
- [5] M. Sepehr. Etude rhéologique de composites thermoplastiques fibres longues. Rapport dea, École Nationale Supérieure des Mines de Paris, 1998.
- [6] J.Thomasset. Rhéologie du polypropylène fondu renforcé par des fibres de verre longues. Thèse de doctorat, Université de Montreal, 1994.
- [7] A. Quibat. Etude de l'orientation de fibres de verre dans des plaques injectées en polypropylène. Stage ingénieur, Esigec, 2003.
- [8] S. Kenig. Fiber orientation development in moulding of polymer composites. *Polymer Composite*, 7(1):50, 1986.
- [9] R.S Bay. Fiber orientation in injection molded composites : A comparaison of theory and experiment. Thèse de doctorat, University of Illinois at Urbana-Champaign, 1991.
- [10] R.S Bay and C.L III Tucker. Fiber orientation in simple injection moulding. part i : Theory and numerical methods. *Polymer Composite*, 13:317, 1992.
- [11] R.S Bay and C.L III Tucker. Fiber orientation in simple injection moulding. part ii : Experimental results. *Polymer Composite*, 13:332, 1992.
- [12] M. Gupta and K.K Wang. Fiber orientation and mechanical properties of short fibre reinforced injection moulding composites : simulated and experimental results. *Polymer Composite*, 14 :367, 1993.
- [13] M.R Kamal and T.D Papathanasiou. Filling of a complex-shaped mould with a viscoelastic polymer ,part ii : a comparaison with experimental data. *Polymer En*gineering Sciences, 33 :410, 1993.
- [14] M. Vincent and J.F Agassant. Experimental study and calculations of short glass fibre orientation in centre gated molded disks. *Polymer Composite*, 7:76, 1986.

- [15] M.W Darlington and A.C Smith. Some features of the injection moulding of short fibre reinforced thermoplastics in centre sprue-gated cavities. *Polymer Composite*, 8(1):16, 1987.
- [16] A. Bouti and F. Fisa. Injection moulding of glass flake reinforced polypropylen : flake orientation and stiffness. *Polymer Composite*, 10:352, 1978.
- [17] J.W Gillepsie and R.B Pipes J.A Vanderschuren. Process induced fibre orientation : numerical simulation with experimental verification. *Polymer Composite*, 6:82, 1984.
- [18] P.F Britgh, F.Crowson, and M.J Flokes. A study of the effect or injection speed on fibre orientation in simple moulding of short glass fiber-filled polypropylene. *Journal* of Material Sciences, 13:2497, 1978.
- [19] S. Ranganathan and S. Advani. A simultaneous solution for flow and fiber orientation in axisymmetric, diverging radial flow. *Journal of Non-Newtonian Fluid Mechanics*, 47, 1993.
- [20] L. Tang and M.C Altan. Entry flow of the fibre suspensions in a straight channel. Journal of Non-Newtonian Fluid Mechanics, 56:183, 1995.
- [21] K Friedrich D.E Spahr and R.S Bailey. Microstructure and fracture behavior of short and long fiber reinforced polypropylene composite. *Journal of Materials Sciences*, 25:4427, 1990.
- [22] R.P Hegler and G. Menning. Phase separation effects in processing of glass-bead and glass fibre filled thermoplastics by injection moulding. *Polymer Engineering Sciences*, 76 :395, 1985.
- [23] S.O Oghadho and T.D Papathanasiou. Particle rearrangement during processing of glass reinforced polystyrene by injection moulding. *Composite Part A*, 27:57, 1996.
- [24] N.C Davidson, A.R Clarke, and G. Archenhold. Large area, high resolution image analysis of composite materials. *Journal of Microscopy*, 185(2):233, 1997.
- [25] A. Clarke, N. Davidson, and G. Archenhold. Measurements of fibre direction in reinforced polymer composites. *Journal of Microscopy*, 171(1):69, 1993.
- [26] C. Eberhardt and A.R Clarke. Fibre orientation measurements in short glass fiber composites : I automated high angular resolution measurement by confocal microscopy. *Composite Sciences Technology*, 61 :1389, 2001.
- [27] A. Clarke and C. Eberhardt. Microscopy techniques for materials science. Woodhead Publishers, Cambridge, 2002.
- [28] S. Toll and P.O Andersen. Microstructure of long and short-fiber reinforced injection molded polyamide. *Polymer Composite*, 14:239, 1993.
- [29] J. Wang and C.L Tucker III. Improved fiber orientation predictions for injectionmolded composites. Proceeding Polymer Processing Society, 212, 2004.
- [30] Y. Yamane, Y. Kaneda, and M.Doi. Numerical simulation of semi-dilute suspensions of rodlike particles in shear flow. *Journal of Non-Newtonian Fluid Mechanics*, 54 :405, 1994.
- [31] X. Fan, N. Phan-Thien, and R. Zeng. A direct simulation of fibre suspensions. Journal of Non-Newtonian Fluid Mechanics, 74:113, 1998.

- [32] C.G Joung, N. Phan-Thien, and X. Fan. Viscosity of curved fibers in suspension. Journal of Non-Newtonian Fluid Mechanics, 102, 2002.
- [33] G.K. Batchelor. An introduction to fluid dynamics. Cambridge University Press, 1967.
- [34] G.K Batchelor. Slender-body theory for particules of arbitrary cross-section in stokes flow. *Journal of Fluid Mechanics*, 44 :419, 1970.
- [35] G. Pozrikidis. Boundary Integral and Singularity Methods for linearized Viscous Flow. Cambridge University Press, 1992.
- [36] J. Happel and H. Brenner. Low Reynold Number Hydrodynamics.
- [37] M. Doi and S.F. Edwards. The Theory of Polymer Dynamics. Clarendon Press, Oxford, 1986.
- [38] G. Glowinski, T-W Pan, T.I Hesla, and D.D Joseph. A distributed lagrange multiplier/fictitious domain method for particulate flows. *International Journal of Mul*tiphase Flow, 25:755, 1999.
- [39] H.H. Hu. Direct simulations of flows of solid-liquid mixtures. Int. J. Multiphase Flow, 22:335, 1996.
- [40] H.H. Hu, N.A. Patankar, and M.-Y Zhu. Direct numerical simulations of fluid-solid systems using the Arbitrary -Langrangian-Eulerian technique. J. of Computational Physics, 169 :427–462, 2001.
- [41] H.H. Hu, D.D. Joseph, and M.J. Crochet. Direct simulations of flows of fluid particle motions. *Theor. Comput. Fluid Dyn.*, 3 :285, 1992.
- [42] A. Johnson and T.E Tezduyar. 3d simulation of fluid-particle interactions with the number of particles reaching 100. Computer Methods in Applied Mechanics and Engineering, 145 :301, 1995.
- [43] E. Pichelin. Calcul par éléments finis du remplissage 3D pour des fluides visqueux incompressibles. Application à l'injection. Thèse de doctorat, École Nationale Supérieure des Mines de Paris, 1998.
- [44] D. Daboussy. Calculs 3D multi-fluides appliqués à la co-injection et à l'injection assistée gaz. Thèse de doctorat, École Nationale Supérieure des Mines de Paris, 2000.
- [45] E. Bigot. Simulation tridimensionnelle du remplissage de corps minces par injection. Thèse de doctorat, École Nationale Supérieure des Mines de Paris, 2001.
- [46] S.Batkam. Thermique multidomaines en simulation numérique du remplissage 3D. Thèse de doctorat, École Nationale Supérieure des Mines de Paris, 2001.
- [47] L. Silva and T. Coupez. A unifed model of the filling and post filling stages in 3d injection moulding simulation. *Polymer Processing Society*, 18, 2002.
- [48] C. Gruau and T. Coupez. 3d tetrahedral unstructured and anisotropic mesh generation with adaptation to natural and multidomain metric. *Computed Methods Applications Mechanical Engineering*, accepted 2005.
- [49] G.B Jeffery. The motion of ellipsoidal particules in a viscous fluid. Proceeding Royal Society of London, A102 :161, 1922.

- [50] J.M Burgers. On the motion of small particles of elongated form, suspended in a viscous fluid. Verh.K.Akad, 16, 1938.
- [51] J.L Ericksen. Transversely isotropic fluids. Kolloids Z., 173:117, 1960.
- [52] F.P Bretherton. The motion of rigid particles in a shear flow at low reynolds number. Journal of Fluid Mechanics, 14 :2497, 1962.
- [53] C.A Stover, D Koch, and C. Cohen. Observations of fiber orientation in simple shear flow of semi-dilute suspensions. *Journal of Fluid Mechanics*, 238, 1992.
- [54] K. Burget and S. G. Advani. An experimental investigation of fiber-wall interactions in simple shear flow. ASME FED, 189, 1994.
- [55] K. B Moses, S.G Advani, and A. Reinhardt. Investigation of fiber motion near solid boundaries in simple shear flow. *Rheology Acta*, 296(3):306, 2001.
- [56] F. Folgar and C.L. Tucker. Orientation behavior of fibers in concentrated suspensions. Journal of Reinforced Plastics and Composites, 3:98, 1984.
- [57] M. Doi and D. Chen. Simulation of aggregating colloids in shear flow. Journal of Chemical Physics, 10, 1989.
- [58] S.G Mason and R.St.J Menley. Particle motion in sheared suspensions in complex geometries. Journal of Non-Newtonian Fluid Mechanics, A238 :117, 1957.
- [59] B.J Trevelyan and S.G Mason. Particles motions in sheared suspensions i.rotations. Journal of Colloid Science, 6:354, 1951.
- [60] F. Gauthier, H.L Goldsmith, and S.G Mason. Particles motions in non-newtonian media. ii : Poiseuille flow. Trans. Soc; Rheol., 15 :297, 1971.
- [61] E.J Hinch. Constitutive equations in suspensions mechanics. part 1 : Approximate forms for a suspension of rigid particles affected by brownian rotations. *Journal of Fluid Mechanics*, 74 :187, 1976.
- [62] D.L Koch and E.S.G Shaqfeh. The average rotation rate of a fiber in the linear flow of a semi-dilute suspension. *Physics of Fluid*, A2 :2093, 1990.
- [63] S.M Dinh and R.C Amstrong. A rheological equation of state for semi-concentrated fiber suspensions. *Journal of Rheology*, 28:207, 1984.
- [64] M.A Bibbo, S.M Dinh, and R.C Amstrong. Shear flow properties of semiconcentrated fiber suspensions. *Journal of Rheology*, 29:905, 1985.
- [65] T.C Papanastasiou and A.N Alexandrou. Isothermal extrusion of non dilute fiber suspensions. *Journal of Non-Newtonian Fluid Mechanics*, 25, 1987.
- [66] M.C Altan, S.G Guceri S.G Advani, and R.B Pipes. On the description of the orientation state for fiber suspensions in homogeneous flows. *Journal of Rheology*, 33:1129, 1989.
- [67] G Ausias. Etude de l'extrusion de tubes en polymères thermoplastiques chargés de fibres courtes. Thèse de doctorat, École Nationale Supérieure des Mines de Paris, 1991.
- [68] A.T Mutel and M.R Kamal. Measurement of fiber orientation distribution in simple shear flows od fiber reinforced melts. *SPE Technical Papers*.
- [69] M.R Kamal and A.T Mutel. The prediction flow and orientation behavior of short fiber reinforced melts in simple flow system. *Polymer Composite*, 10:337, 1989.

- [70] M.L Becraft and A.B Metzner. The rheology, fiber orientation, and processing behavior of fiber-filled fluids. *Journal of Rheology*, 36 :143, 1992.
- [71] S.G Advani and C.L Tucker. Closure approximations for three-dimensional structure tensors. *Journal of Rheology*, 34:367, 1990.
- [72] V.Verleye. Simulation Numérique de l'orientation de fibres en moulage par injection de pièces complexes en matériaux composite. Thèse de doctorat, Université de Catholique de Louvain, 1995.
- [73] B. Chung and C.Cohen. Glass fiber filled thermoplastics i. wall and processing effects on rheological properties. *Polymer Engineering Sciences*, 25 :1001, 1985.
- [74] J.S Cintra and C.L Tucker. Orthotropic closure approximations for flow-induced fiber orientation. *Journal of Rheology*, 39 :1095, 1995.
- [75] E.D Wetzel and C.L Tucker. Area tensors for modeling microstructure during laminar liquid-liquid mixing. *Journal Multiphase Flow*, 25:35, 1999.
- [76] R.G Cox. The motion of long slender bodies in a viscous fluid. part i : General theory. *Journal of Fluid Mechanics*, 44:791, 1970.
- [77] G.K Batchelor. The stress generated in non-dilute suspension of elongated particules by pure straining motion. *Journal of Fluid Mechanics*, 46:813, 1971.
- [78] E. Shaqfeh and G. Fredrickson. The hydrodynamic stress in a suspension of rods. *Physics of Fluid*, A2 :7, 1990.
- [79] P. Giesekus. Elast-vikose flüssigkeiten, für die in stationären schichtströmungen sämtiche normaspannungskomponenten verschieden gross sind. *Rheology Acta*, 2:50, 1962.
- [80] G.K Batchelor. The stress system in suspension of force free particules. *Journal of Fluid Mechanics*, 41:545, 1970.
- [81] F.Meslin. Propriétés rhéologiques des composites fibres courtes à l'état fondu. Thèse de doctorat, École Normale Supérieure de Cachan, 1997.
- [82] N. Phan Thien and A.L Graham. A new constitutive model for fiber suspensions. *Rheology Acta*, 30:44, 1991.
- [83] J.D Goddard. Tensile stress contribution of flow-oriented slender particles in nonnewtonian fluids. Journal of Non-Newtonian Fluid Mechanics, 1:1, 1976.
- [84] B. Souloumiac. Etude rhéologique, modélisation et simulation numérique de l'écoulement des thermoplastiques chargés de fibres courtes. Thèse de doctorat, École Nationale Supérieure des Mines de Paris, 1996.
- [85] C.J.S. Petrie. The rheology of fibre suspensions. Journal of Non-Newtonian Fluid Mechanics, 87 :369, 1999.
- [86] J. Azaiez. Constitutive equations for fiber suspensions in viscoelastic media. *Journal* of Non-Newtonian Fluid Mechanics, 66:35, 1996.
- [87] M.R Kamal and A.T Mutel. Rheological properties of suspensions in newtonian and non-newtonian fluids. *Journal Polymer Engineering*, 5:293, 1985.
- [88] T. Kitano and T. Kataoka. The rheology of suspensions of vinyle fibers in polymer liquids. i. suspensions in silicone oil. *Rheology Acta*, 20:390, 1981.

- [89] S. Goto, D.L Nagazono, and H. Kato. The flow behavior of fiber suspensions in newtonian fluids and polymer solutions. ii. capillary flow. *Rheology Acta*, 25:246, 1986.
- [90] E.Ganani and R.L Powell. Rheological behavior of rodlike particles in newtonian and non-newtonian fluids. *Journal of Rheology*, 30 :9995, 1986.
- [91] L. Czarnecki and J.L White. Shear flow rheological properties fiber damage and mastification characteristics of aramid, glass and cellulose fibre reinforced polystyrene melts. *Journal of Applied Polymer*, 25 :1217, 1980.
- [92] J.P Greene and J.O Wilkes. Steady state and dynamic properties of concentrated fiber filled thermoplastics. *Polymer Engineering Sciences*, 35 :1670, 1995.
- [93] J.A Harding and J.A. Razenberg. A comparaison of viscoelastic properties between selected long and short glass reinforced thermoplastics. In *Antec'89*, 1989.
- [94] R.J Crowson, A.J Scott, and D.W Saunders. Rheology of short fiber reinforced thermoplastics and its applications to injection moulding : Use a high shear rate capillary rheometer in the injection molding shear rate range. *Polymer Engineering Sciences*, 21 :748, 1981.
- [95] G.G Lipscom, M.M Denn, D.U Hur, and D.V Boger. The flow of fiber suspensions in complex geometries. *Journal of Fluid Mechanics*, 26:297, 1988.
- [96] A. Mongruel. Etude expérimentale de suspensions de particules anisotropes en écoulement élongationnel. Thèse de doctorat, École Nationale des Ponts et Chaussées, 1994.
- [97] H.M Laun. Orientations effects and rheology of short glass fiber-reinforced thermoplastics. *Coilloid Polymer*, 262 :257, 1984.
- [98] T.D Papathanasiou and C Guell. Flow induced alignment in composite materials. Woodhead Publishers, Cambridge, 1997.
- [99] S. Yamamoto and T. Matsuoka. Viscosity of dilute suspensions of rodlike particles : A numerical simulation method. *Journal of Chemical Physics*, 100(4) :3317, 1994.
- [100] S. Yamamoto and T. Matsuoka. Dynamic simulation of fiber suspensions in shear flow. Journal of Chemical Physics, 116(13) :2254, 1995.
- [101] S. Yamamoto and T. Matsuoka. Dynamic simulation of flow-induced fracture. Polymer Engineering and Science, 35(12):1024, 1995.
- [102] S. Yamamoto and T. Matsuoka. Dynamic simulation of microstructure and rheology of fiber suspensions. *Polymer Engineering and Science*, 36(19):2096, 1996.
- [103] X. Fan, R.I Tanner N. Phan-Thien, and R. Zeng. Short communication : Folgartucker constant for a fibre suspension in a newtonian fluid. *Journal of Non-Newtonian Fluid Mechanics*, 103 :251, 2002.
- [104] C.G Joung, N. Phan-Thien, and X. Fan. Direct simulation of flexible fibers. Journal of Non-Newtonian Fluid Mechanics, 99 :1, 2001.
- [105] F. Ross and D.J Klingenberg. Dynamic simulation of flexible fibers composed of linked rigid bodies. *Journal of Chemical Physics*, 106 :2949, 1997.
- [106] R.R Sundararajakumar and D.L Koch. Structure and properties of sheared fiber suspensions with mechanical contacts. *Journal of Non-Newtonian Fluid Mechanics*, 73 :205, 1997.

- [107] P. Singh, D.D Joseph, T.I Hesla, and G. Glowinski. A distributed lagrange multiplier/fictitious domain method for viscoelastic particulate flows. *Journal of Non-Newtonian Fluid Mechanics*, 91 :165, 2000.
- [108] P. Singh and D.D Joseph. Sedimentation of a sphere near a vertical wall in an oldroyd-b fluid. Journal of Non-Newtonian Fluid Mechanics, 94 :179, 2000.
- [109] Z. Yu, N Phan-Thien, Fan, and R.I Tanner. Viscoelastic mobility problem of a system of particles. *Journal of Non-Newtonian Fluid Mechanics*, 104:87, 2002.
- [110] M. Fortin and R. Glowinski. Augmented Lagrangian Methods : applications to the Numerical solution of boundary-value problems. Bordas, Amsterdam, 1983.
- [111] G.Akay. Rheology of reinforced thermoplastics and its application to injection molding : Transient injection capillary flow and injection molding. *Polymer Engineering Sciences*, 22(16), 1982.
- [112] R.A MAlloy, S.M Chang, and S.J Chen. A method for determining the flow properties of long fiber reinforced thermoplastics. In *Pric*, 1st Japan International SAMPE Synopsium, 1989.
- [113] A.N McClelland and A.G Gibson. Rheology and fibre orientation in the injection moulding of long fibre reinforced nylon 66 composites. *Composites Manufacturing*, 1, 1990.
- [114] S.R Nanguneri, N.S Rao, and N. Subramanian. Rheological characteristic of glass fibre filled polypropylene melts. *Rheology Acta*, 26, 1987.
- [115] D.M Binding. Capillary and contraction flow of long-glass fiber filled polypropylene. Composites Manufacturing, 2:427, 1991.
- [116] A.T Mutel and M.R Kamal. Characterization of the rheological behavior of fiberfilled polypropylene under steady and oscillatory using cone and plate and rotational parallel rheometry. *Polymer Composite*, 7 :283, 1986.
- [117] G.L Hand. A theory of anisotropic fluids. Journal of Fluid Mechanics, 13:33, 1962.
- [118] T. Matsuoaka, J. Inoue, and H. Yakahashi. Prediction of fiber orientation in injection molded of short fiber reinforced thermoplastics. *Polymer Engineering Sciences*, 30:957, 1990.

# Table des figures

1	Propriétés mécaniques d'une structure en polyamide 6,6 renforcé de fibres courtes (SF en gris clair) et longues (LF en gris foncé) -Données Arkema	2
1.1	Granulé fibres longues de 12 mm, chargé à 30%	7
1.2	Schéma du seuil d'injection	8
1.3	Observation du front de matière d'un incomplet	10
1.4	Empreinte	11
1.5	Visualisation du remplissage d'une cavité d'un polypropylène renforcée à	
	30% de fibres longues	12
1.6	Prélèvement des échantillons sur la plaque	14
1.7	Mesures de longueur	15
1.8	Orientation d'une fibre dans un écoulement de cisaillement simple : la fibre	
	a un temps de séjour privilégié dans le sens de l'écoulement	17
1.9	Orientation d'une fibre dans un écoulement élongationnel convergent : la	
	fibre tends vers une position stable	17
1.10	Orientation des particules dans un disque injecté par le centre, d'après des	10
1 1 1	observations experimentales de Woebcken en 1971 et de Bay [9]	18
1.11	Definition des angles et du vecteur caracterisant l'orientation d'une fibre	21
1.12	Exemples de tenseurs $a_2$ pour differentes orientations en 2D	21
1.13	Representation de l'orientation d'une fibre, ambiguite sur l'angle $\phi$ en 2D .	23
1.14	Probabilité qu'une fibre de longueur l, et de diametre d soit coupee par une	25
1 15	Section plane $\dots$ sector plane $\dots$	20
1.15	de 500000 fibres dans un volume de 2 mm $\times$ 2 mm $\times$ 3 mm	26
1.16	Position des échantillons sur la plaque	27
1.17	Principe de la prise d'image a)Image MEB b) Image microscope optique .	$\frac{-}{28}$
1.18	Tracé type du tenseur d'orientation $a_2$ dans l'épaisseur de la plaque : pp $30\%$ FV1	2
1.10	injecté en conditions standards dans une cavité de 1,8 mm	29
1.19	Observation en peau de fibres en vue de dessus -pp30%fv12 P2	31
1.20	Observation à 1 mm de la peau de fibres en vue de dessus -pp30%fv12 P2	31
1.21	Observation à coeur de fibres en vue de dessus -pp30%fv12 P2	32
1.22	Observation de la structure coeur-peau. Vue dans l'épaisseur d'une coupe	
	perpendiculaire à la direction d'écoulement -pp $30\%$ FV12 à la position P3	
	d'une plaque de 1,8 mm	32

1.23	Observation de la structure coeur-peau. Vue dans l'épaisseur d'une coupe dans la direction d'écoulement -pp30%FV12 à la position P3 d'une plaque	
	de 1,8 mm-	33
1.24	Schéma d'un échantillon et des plans d'observation	33
1.25	Evolution de la composante $a_{33}$ pour une coupe à 0° et une coupe à 90°.	33
1.26	Mesure de reproductibilité liée au système de mesure	34
1.27	Mesure de reproductibilité liée à l'échantillonnage	35
1.28	Comparaison des deux méthodes	35
1.29	Effet de la position de l'échantillon sur l'orientation sur des plaques de 3,8 mm	37
1.30	Effet de la vis de plastification sur l'orientation -pp30%fv12 Position P3	37
1.31	Influence de la vitesse d'injection a) et de la température b) -pp30%fv4 Position P3 Plaque de 3.8 mm-	38
1.32	Influence de l'épaisseur de la plaque sur l'orientation	39
1.33	Effet de la longueur des granulés sur l'orientation -Polypropylènes chargés à 30% en position P3-	40
1 34	Images MEB -pp10%fv12 Position P3 Plaque de 1.8 mm-	41
1.35	Effet du taux de fibres sur l'orientation -polypropylènes chargés à 10% -	
1.00	position P3-	41
1.36	Effet de l'apport de $TiO_2$ sur l'orientation -pp30%fv12 en position P2 et P3	42
1.37	Mesure de la reproductibilité d'un essai de microtomographie -Polypropylène	
1.01	renforcé de 30% de fibres en position 3. épaisseur de 1.8 mm-	43
1.38	Confrontation des mesures 2D avec les mesures 3D -pp30%fv12 avec une vis	-
	GFL, plaque de 1.8 mm	44
1.39	Cartographie de la distribution d'orientation moyenne des fibres pour les	
	composantes $a_{11}, a_{33}$ du tenseur $a_2$ -pp30%fv12 injecté avec une vis GFL en	
	position P2	45
1.40	Effet de la position de l'échantillon sur l'orientation sur des plaques injectées	
	en pp30%fv12 avec une vis GFL, plaque de 1,8 mm	45
1.41	Influence de la vis d'injection sur l'orientation moyenne 3D des fibres pour	
	les composantes $a_{33}$ du tenseur $a_2$ -pp30%fv12 injecté avec une vis standard	
	et une vis GFL	46
1.42	Effet de la position de l'échantillon sur l'orientation sur des plaques injectées	
	en pp30%fv12 avec une vis GFL, plaque de 1,8 mm	47
9.1	Mice en ávidence du couplere fluide structure esseció en problème veriationnel	67
2.1 2.2	Transport d'une fibre cans adaptation de maillage. Fongtion caregtéristique	07
2.2	du fluide et son complément	71
2.3	Échantillonnage et notations pour l'interpolation $P^0$ calculée sur l'élément	11
	<i>K</i>	72
2.4	Méthode de génération des fonctions caractéristiques	73
2.5	Transport d'une fibre avec la méthode particulaire -Fonction caractéristique	
	du fluide et son complément-	74
2.6	Principe du calcul d'orientation de fibres	75
2.7	Géométrie et conditions aux limites	76
2.8	Conditions périodiques en entrée et sortie	77

2.9 2.10	Définition des angles et du vecteur caractérisant l'orientation d'une fibre . Confrontation du modèle aux prédictions de Jeffery en 2D, la particule	. 79
2.11	étant initialement perpendiculaire à l'écoulement, $\beta_e = 7.2$ Confrontation du modèle aux prédictions de Jeffery en 3D, la particule est	. 80
2.12	initialement perpendiculaire à l'écoulement, $\beta_e = 7.2$	. 80
2 13	pendiculaire à l'écoulement	. 82
2.10	particule sphérique	. 83
2.14	Interactions hydrodynamiques entre deux sphères soumises à un écoulement de Couette : résultats de simulation	. 84
2.15	Mise en évidence des interactions hydrodynamiques entre deux sphères sou- mises à un écoulement de Couette : évolution de la position des centres de	
0.10	gravité des particules	. 85
2.16	Interactions hydrodynamiques entre deux fibres soumises a un ecoulement de Cisaillement simple : résultats de simulation	. 86
2.17	Représentation schématique de la position initiale de la fibre par rapport à une paroi de la cavité	. 87
2.18	Représentation schématique de l'influence de la paroi sur le mouvement de rotation d'une fibre rigide	87
2.19	Effet d'une paroi sur l'évolution de l'angle $\phi$ dans le cas d'une fibre initia-	
	lement parallèle à l'écoulement	. 88
2.20	Interaction d'une fibre initialement parallèle à la paroi $\frac{L}{d} = 3$	. 89
2.21	Effet d'une paroi sur l'évolution de l'angle $\phi$ dans le cas d'une fibre initia- lement perpendiculaire à l'écoulement	. 90
2.22	Exemple d'un calcul 2D : Suspension de fibre en concentration 8% (à gauche) et 15 % (à droite) $\beta = 10$ Écoulement Newtonien de cisaillement simple	91
2.23	Exemple d'un calcul 3D : Suspension de fibre en concentration 7,7% en un calcul 3D : Neutonieu de significant simple	. 01
2.24	Volume, $\beta = 12$ , Ecomement Newtonien de cisaliement simple Exemple d'un calcul 2D : Calcul de l'orientation de fibres à la sortie d'une	. 92
2.25	géométrie divergente	. 93
	géométrie convergente	. 94
3.1	Régimes de concentration en fonction du facteur de forme des particules et	100
	de la fraction volumique	. 100
3.2	Variation de l'angle $\phi$ dans un écoulement de cisaillement $\ldots \ldots$	. 102
3.3	Influence du paramètre $C_i$ sur la fonction de distribution des orientations pour un écoulement de cisaillement [56] $\ldots \ldots \ldots \ldots \ldots \ldots \ldots \ldots \ldots$	. 105
3.4	Coefficient d'interaction en fonction du produit $\Phi \times \beta$ obtenues par Bay [9] et confronté aux valeurs de $C_i$ ajustées par Folgar et Tucker [56]. PC :	
	polycarbonate $\beta = 17$ , PBT : polybutene terephthalate $\beta = 18$ , NYLON : polyamide 6 6 $\beta = 25$ FOLGAB : huile silicone	107
3.5	Domaine décrivant l'ensemble des états d'orientation physiquement admis-	. 101
0.0	sibles (issu de [71]) $\lambda_i$ représente les valeurs propres du tenseur $a_2$ notées	
	dans le document $(a(i), i = 1, 2, 3)$	. 113

3.6	Composantes du tenseur d'orientation en écoulement de cisaillent simple	
	pour $C_i = 0.001$ -Performances des différentes approximations de ferme-	
	ture : DFC (resolution de l'équation $\Psi$ ), NAT (approximation naturelle), ORT, et al. (NAT (approximation naturelle), ORT) et al. (NAT (approximation nat	ORF,ORL
	(approximations orthotropes) [71]	114
3.7	Volume élémentaire représentatif (VER)	119
3.8	Exemple 3D d'un écoulement de 60 fibres de rapport de forme $\beta$ = 6 à	
	la concentration $\Phi = 4\%$ : évolution de la composante $a_{11}$ du tenseur $a_2$ ,	
	illustrée avec des images du calcul	120
3.9	Evolution des composantes du tenseur $a_2$ avec le temps pour une suspension	
	de fibres, initialement orientées aléatoirement, de rapport de forme $\beta=6$	
	à la concentration de 4% (regime semi-dilué), Écoulement Newtonien de	
	cisaillement simple $\ldots \ldots \ldots$	122
3.10	Effet de la concentration en fibre sur l'orientation de 60 fibres de rapport de	
	forme $\beta=3$ initialement orientées aléatoirement : évolution de la compo-	
	sante $a_{11}$ du tenseur $a_2$ dans le cas d'un écoulement Newtonien de cisaille-	
	ment simple	123
3.11	Effet de la concentration en fibre sur l'orientation de 60 fibres de rapport de	
	forme $\beta = 6$ initialement orientées aléatoirement : évolution de la compo-	
	sante $a_{11}$ du tenseur $a_2$ dans le cas d'un écoulement Newtonien de cisaille-	
	ment simple	124
3.12	Effet de la concentration en fibre sur l'orientation de 60 fibres de rapport de	
	forme $\beta = 12$ initialement orientées aléatoirement : évolution de la compo-	
	sante $a_{11}$ du tenseur $a_2$ dans le cas d'un écoulement Newtonien de cisaille-	
	ment simple	125
3.13	Effet du rapport de forme des fibres sur l'orientation de 60 fibres initialement	
	orientées aléatoirement de concentration de 4%, Evolution de la composante	
	$a_{11}$ du tenseur $a_2$ dans le cas d'un écoulement Newtonien de cisaillement	100
~	simple	126
3.14	Effet du rapport de forme des fibres sur l'orientation de 60 fibres initialement	
	orientées aléatoirement de concentration de 8%, Evolution de la composante	
	$a_{11}$ du tenseur $a_2$ dans le cas d'un ecoulement Newtonien de cisaillement	107
0.15		127
3.15	Evolution de la composante $a_{11}$ et $a_{21}$ du tenseur $a_2$ avec le coefficient	
	d'interaction $C_i$ -Resolution analytique de l'equation de Folgar et Tucker	
	[50] avec une approximation de fermeture quadratique dans le cas d'un	190
9 16	ecoulement Newtonien de cisamement simple tridinensionnel $\ldots$	129
5.10	values du coefficient d'interaction $C_i$ calcule avec le modèle difecte. Compon- tation avec les calculs de Phan [31] les mesures de Bay [0] et de Felger et	
	Tuckor [56]	191
3 17	Comparaison de l'évolution des composantes and ace et des issues de la si	101
0.17	comparaison de l'évolution des composantes calculées via l'équation de Folgar	
	et Tucker [56] $(C_{\rm r} = 0.05 \pm {\rm approximation orthotrope})$	132
3 18	Evolution de la première composante $a_{1111}$ du tenseur $a_4$ dans le cas d'un	1.94
0.10	écoulement de cisaillement simple suspension concentrée à 8% de fibres	
	de rapport de forme $\beta = 12$ . Confrontation avec les approximations de	
	fermetures Quadratique. Linéaire et Hybride	135

3.19	Evolution de la première composante $a_{1111}$ du tenseur $a_4$ dans le cas d'un écoulement de cisaillement simple, suspension concentrée à 8% de fibres de rapport de forme $\beta = 12$ . Confrontation avec les approximations orthotropes ORS_ORE et WET136
3.20	Evolution de la composante $a_{1212}$ du tenseur $a_4$ dans le cas d'un écoulement de cisaillement simple, suspension concentrée à 8% de fibres de rapport de forme $\beta = 12$ . Confrontation avec les approximations de fermetures Qua- dratique. Linéaire et Hybride
3.21	Evolution de la composante $a_{1212}$ du tenseur $a_4$ dans le cas d'un écoulement de cisaillement simple, suspension concentrée à 8% de fibres de rapport de forme $\beta = 12$ . Confrontation avec les approximations orthotropes ORS, ORF et WET
4.1	Illustration de la distance "écran" suivant les auteurs, $h_{em}$ pour l'approche de Shaqfeh et Fredrickson et de $h_{pp}$ pour l'approche de Dinh et Armstrong . 148
4.2	Lignes de courant dans une contraction 4,5 :1 [95](Écoulement d'un fluide modèle s'effectuant du bas vers le haut)
4.3	Schéma du Rhéoplast
4.4	Schéma simplifié du dispositif plan-plan
4.5	-Rhéométrie plan-plan en mode continu- Influence de l'orientation initiale de fibres de longueur de 4 mm sur l'évolution des forces normales 159
4.6	Rhéométrie plan-plan en mode dynamique -Evolution du module élastique, du module visqueux, de la viscosité complexe $\eta$ * et de l'angle de perte en fonction de la fréquence à $T=220$ °C pour des échantillons de pp30%fv4 et pp30%fv12 issues de plaques injectées d'épaisseur de 2 mm
4.7	Droites de correction de Bagley
4.8	Correction de Bagley en fonction de la contrainte dans le cas du composite $pp30\%FV12$ à $220\degree C$
4.9	Courbes d'écoulement pour les polypropylènes chargés de fibres courtes et
	<i>longues</i>
4.10	Viscosités superposées pour les polypropylènes chargés de fibres courtes et longues et le polypropylène vierge
4.11	Cisaillement d'un fluide homogène, $\tau$ est la contrainte de cisaillement, U la vitesse $\ldots \ldots \ldots$
4.12	Confrontation du calcul avec la théorie d'Einstein. Évolution de la viscosité avec la concentration en sphères
4.13	Effet de la concentration sur la viscosité apparente d'une suspension de 60 fibres initialement orientées aléatoirement. Evolution de la viscosité $\eta$ en fonction de la déformation $\gamma = \dot{\gamma}_{apparent}t$ dans le cas d'un écoulement Newtonien de cisaillement simple pour rapport de forme $\beta = 3$
4.14	Effet de la concentration sur la viscosité apparente d'une suspension de 60 fibres initialement orientées aléatoirement. Evolution de la viscosité $\eta$ en fonction de la déformation $\gamma = \dot{\gamma}_{apparent}t$ dans le cas d'un écoulement Newtonien de cisaillement simple pour rapport de forme $\beta = 6$
- 4.15 Effet de la concentration sur la viscosité apparente d'une suspension de 60 fibres initialement orientées aléatoirement. Evolution de la viscosité  $\eta$ en fonction de la déformation  $\gamma = \dot{\gamma}_{apparent}t$  dans le cas d'un écoulement Newtonien de cisaillement simple pour rapport de forme  $\beta = 12$  .... 172

- 4.18 Effet de l'orientation initiale des fibres sur la viscosité apparente en fonction du temps dans le cas d'un écoulement Newtonien de cisaillement simple -Fibres initialement orientées dans la direction d'écoulement  $\beta = 10$ - . . . . 174
- 4.19 Effet de l'orientation initiale des fibres sur la viscosité apparente en fonction du temps dans le cas d'un écoulement Newtonien de cisaillement simple -Fibres initialement orientées perpendiculairement à l'écoulement  $\beta = 10$ -. 175

## Liste des tableaux

1.1	Propriétés mécaniques et thermiques
1.2	Matériaux utilisés
1.3	Conditions de moulage
1.4	Paramètres d'injection
1.5	Conditions pour températures dissymétriques
1.6	Longueurs de fibres
1.7	Protocole de polissage des échantillons
2.1	Influence de la pénalisation sur la condition de mouvement rigide 81
3.1	Coefficients $C_m^i$ de l'approximation de fermeture ORT
3.2	Plan d'expérience numérique
3.3	Calcul numérique du coefficient d'interaction $C_i \ldots \ldots$
4.1	Matériaux utilisés
4.2	Conditions de plastification
4.3	Jeux de Capillaires
4.4	Cycle d'injection et températures d'essais
4.5	Calcul numérique du paramètre rhéologique $N_p$
4.6	Comparaison des modèles issus de la théorie des corps élancés