



HAL
open science

Rhéologie et microstructure des suspensions de fibres concentrées non-browniennes

Nahed Sihem Bounoua

► **To cite this version:**

Nahed Sihem Bounoua. Rhéologie et microstructure des suspensions de fibres concentrées non-browniennes. Autre [cond-mat.other]. Université Côte d'Azur, 2016. Français. NNT : 2016AZUR4049 . tel-01450694

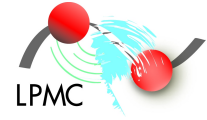
HAL Id: tel-01450694

<https://theses.hal.science/tel-01450694>

Submitted on 31 Jan 2017

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 : Sciences Fondamentales et Appliquées

Unité de recherche : Laboratoire de Physique de la Matière Condensée

THÈSE DE DOCTORAT

Présentée en vue de l'obtention du grade de docteur en PHYSIQUE

DE

L'UNIVERSITE COTE D'AZUR

par

Nahed Sihem BOUNOUA

Titre de la thèse :

Rhéologie et microstructure des suspensions de fibres concentrées non-browniennes

Thèse dirigée par Elisabeth LEMAIRE et Pavel KUZHIR

soutenue le 6 septembre 2016

Devant le jury composé de :

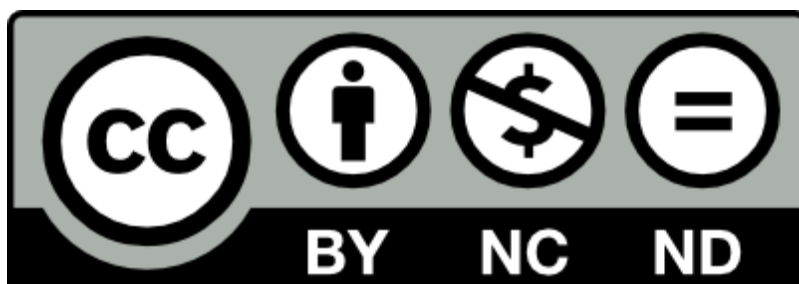
Francisco CHINESTA	- Professeur, Ecole Centrale de Nantes	<i>Président</i>
Julien FÉREC	- Maître de Conférences, Université de Bretagne-Sud (Lorient)	<i>Examineur</i>
Pavel KUZHIR	- Maître de conférence, Université Côte d'Azur	<i>Co-directeur de thèse</i>
Elisabeth LEMAIRE	- Directrice de Recherche CNRS, LPMC	<i>Directrice de thèse</i>
Anne MONGRUEL	- Maître de conférence, Université de Paris Diderot	<i>Rapporteur</i>
Laurent ORGÉAS	- Directeur de Recherche CNRS, Laboratoire 3SR	<i>Rapporteur</i>
Edith PEUVREL-DISDIER	- Chargée de Recherche CNRS, CEMEF	<i>Examineur</i>
Michel VINCENT	- Directeur de Recherche CNRS, CEMEF	<i>Examineur</i>

- **Résumé** : Dans ce travail, nous étudions le comportement rhéologique de suspensions concentrées de fibres non-browniennes. Dans un premier temps, nous avons élaboré de nouvelles méthodes expérimentales en géométrie torsionnelle plan-plan, pour mesurer la viscosité, les deux différences de contraintes normales, ainsi que les contraintes normales d'origine particulaire. Nous avons été en mesure d'apporter des résultats originaux qui ont été interprétés en termes d'évolution de la microstructure des suspensions de fibres. Les mesures de la viscosité en régimes stationnaire et transitoire ont permis de mettre en évidence l'importance de l'orientation et de l'effet du confinement sur la viscosité. Par ailleurs, nous avons obtenu pour la première fois des mesures indépendantes des deux différences de contraintes normales en géométrie torsionnelle plan-plan. Les mesures de la pression dans le fluide interstitiel nous ont donné accès aux contraintes normales particulières et apporté une première mise en évidence expérimentale du phénomène de migration des fibres dans les suspensions non-browniennes. Dans un deuxième temps, nous avons établi deux modèles théoriques qui tentent d'expliquer la rhéofluidification des suspensions de fibres concentrées par une compétition entre des forces adhésives entre fibres et les forces hydrodynamiques et qui proposent un scénario de formation et de destruction d'agrégats. Les résultats de ces modèles sont alors confrontés aux mesures expérimentales et rendent bien compte du comportement de la viscosité sur une large gamme de taux de cisaillement.

Mots-clés : Rhéologie de suspensions de fibres, Rhéofluidification, Agrégation, Réponse transitoire, Différences de contraintes normales, Contraintes normales particulières, Migration.

- **Abstract** : In this manuscript we investigate, both experimentally and theoretically, the rheological behavior of concentrated non-Brownian fiber suspensions. The experiments consist in developing new methods for measuring the viscosity, the two normal stress differences as well as the particle normal stresses, in torsional plate-plate geometry. We were able to bring original results that have been interpreted by the evolution of the microstructure of the fiber suspensions during the flow. The experiments in stationary and transient regime highlight the importance of fiber orientation and the effect of the confinement on the viscosity measurement. For the first time, the first and the second normal stress differences have been measured separately in a torsional flow. Furthermore, thanks to the measurement of the pore pressure in the suspensions, an estimation of the particle normal stresses has been carried out and, for the first time the phenomenon of fiber migration in non-Brownian suspensions has been evidenced. From a theoretical point of view, we developed two complementary models that tend to explain shear-thinning behavior in concentrated fiber suspensions by a balance between adhesive and hydrodynamic forces and propose a scenario for the formation and the destruction of aggregates. These models are then tested against experimental measurements in a wide range of shear rates.

Keywords : Fiber Suspension Rheology, Shear-thinning, Aggregation, Transient flow, Normal stress differences, Particle Normal Stress, Migration.



Cette œuvre intitulée " Rhéologie et microstructure des suspensions de fibres concentrées non-browniennes" de Nahed Sihem BOUNOUA est mise à disposition selon les termes de la licence Creative Commons Attribution - Pas d'Utilisation Commerciale - Pas de Modification 4.0 International.

A la mémoire de mon cher PAPA

"-Vis chaque instant comme si c'était le dernier, parce que ça peut effectivement être le dernier, vis de l'espoir, vis de la lutte, vis de la patience, vis de l'amour, vis avec la persévérance, vis de recherche de savoir et de connaissances et estime bien la valeur de la vie.

-La connaissance vous classe dans les rangs des sages, le travail vous classe dans les rangs des florissants et l'entente vous classe dans les rangs des heureux.

-Quand vous réussissez dans la vie vos amis sauront qui vous êtes, mais quand vous tombez vous saurez qui sont vos amis."

Dr. Ibrahim EL Fiky

Remerciements

Je remercie en premier lieu la région PACA, le CNRS ainsi que l'Université de Nice Sophia Antipolis (université Côte d'Azur) pour leur soutien financier, qui a permis de mener les travaux de recherche de ma thèse.

Ce manuscrit est le fruit de quatre années de thèse effectuées au Laboratoire de Physique de la Matière Condensée de Nice (LPMC), où j'ai eu la chance de bénéficier d'un agréable cadre de travail, scientifiquement et humainement parlant.

Pr. Fabrice Mortessagne, M. le directeur, je tiens à t'exprimer ma profonde gratitude non seulement pour m'avoir accueillie au labo mais aussi pour ta bienveillance, tu es toujours à l'écoute et soucieux du bien-être de tes doctorants. Je te remercie infiniment pour ton soutien tout au long de ma thèse et même après.

Je tiens à remercier tous les membres du Jury. Mes deux rapporteurs : Anne Mongruel et Laurent Orgeas, je vous remercie d'avoir pris le temps de lire mon manuscrit attentivement et d'avoir valorisé mon travail de thèse. J'avoue qu'après avoir lu vos rapports, je n'ai pu m'empêcher de verser des larmes de joie. Je remercie également Pr. Francisco Chinesta de m'avoir fait l'honneur de présider le jury. Mes remerciements vont aussi aux examinateurs : Julien Férec, pour sa collaboration enrichissante qui a permis d'améliorer la partie modélisation, Édith Peuvrel-Disdier et Michel Vincent pour avoir pris le temps d'examiner mon travail. Je vous remercie pour toutes vos remarques constructives et vos questionnements. Ce fut une grande fierté pour moi d'avoir un tel jury de thèse.

Je tiens à remercier mes deux extraordinaires encadrants de thèse. Tout d'abord, Élisabeth Lemaire, je te remercie de m'avoir fait confiance en encadrant une astrophysicienne de formation. Au début de ma thèse, je ne savais même pas ce qu'était la rhéologie, ni même ce que représentait concrètement une viscosité. Je tiens à te remercier de m'avoir donné la chance d'acquérir de nouvelles compétences en physique expérimentale en me laissant évoluer avec une certaine autonomie. Je te remercie pour ta disponibilité malgré tes importantes responsabilités, entre commissions CNRS et suspensions de sphères, tu as su trouver le temps et apporter toute ton expertise et ton aide pour l'aboutissement de mon travail de thèse.

Pavel Kuzhir, je te remercie pour tout ce que tu m'as apporté durant ma thèse. Ta grande implication dans la partie théorique grâce à tes innombrables idées, nous ont conduits vers des pistes pertinentes

pour comprendre nos résultats expérimentaux. Je te remercie également pour tes qualités humaines, ton exigence scientifique et ta disponibilité, tu as su répondre à tous mes questionnements et m'as rassurée lorsque le moral était au plus bas. J'ai beaucoup appris grâce à toi et j'espère que nous serons amenés à collaborer de nouveau dans le futur!!!.

Une thèse à composante expérimentale ne peut être effectuée sans un bon matériel adéquat et c'est pour cela que je tiens tout particulièrement à remercier tout le staff de l'atelier : Frédéric Lippi, Christophe Pitiot et Jean-Luc Vanni, pour la fabrication des pièces mécaniques, les différentes améliorations que vous avez suggérées et d'avoir toléré mes intrusions à l'atelier et d'avoir toujours rapidement répondu à mes demandes les plus urgentes. Je remercie aussi l'équipe info : Bernard Gay-Para et Jérôme Mauro, pour leur disponibilité et les réparations fréquentes de mon ordi qui me lâchait de temps en temps, voire même pendant la rédaction. GAYP, je te remercie aussi pour toutes les fois où nous avons partagé notre passion commune, que ce soit lors d'une observation d'éclipse ou pendant les pauses déjeuner. Ah AstroCosmo quand tu nous tiens, c'est toute une nostalgie!!! Je remercie également Grégory Sauder et Frédéric Juan pour l'amélioration de l'ensemble du dispositif électronique et l'acquisition de données.

Je remercie Olga Volkova pour sa précieuse aide pour les mesures de rugosité des fibres par AFM. Je tiens à remercier une nouvelle fois Édith Peuvrel-Disdier et Romain Castellani pour m'avoir accordé quelques jours au CEMEF pour effectuer des expériences de visualisation, et pour toute l'aide et les conseils que vous m'avez apportés, pour cette partie très importante de ma thèse. "Nous observons toujours des agrégats!!"

Je tiens à remercier les membres chercheurs du labo qui m'ont apporté leur soutien et leurs conseils, merci pour les différents échanges constructifs que nous avons eus : Céline Cohen, Xavier Noblin, Yann Bouret, Christophe Raufaste, Yaroslava Izmaylov, Wilfried Blanc, Frédéric Blanc, Claire Michel, Mathieu Bellec, Nathalie Fraysse, Éric Picholle, Florent Doutre, Agnese Seminara, Ulrich Kuhl, François Peters, ma marraine Virginia D'Auria, sans oublier Jean-Pierre Romagnan et Carlos Montes.

Je remercie également toute l'équipe administrative : Christine Boudard-Morteau et Christine Chasagneux pour leur travail fastidieux : des milliers de paperasses qu'elles ont dû traiter chaque année, entre titres de séjour et dossiers de recrutement ! Christine je te remercie également pour ton petit boost que tu m'apportais à chaque fois : "Allez!!!", je te souhaite une belle retraite avec tout plein de rando. Je remercie également Denise Siedler alias Tata Denise (ça reste entre nous!) pour ton

soutien tout au long de ma thèse et nos maintes after-work, tu n'as jamais manqué de mots pour me remonter le morale et m'encourager. Je remercie également Madalena Neri-Martinez pour son soutien (comme tu dis, on n'aura jamais JNP). Ah et je n'oublie pas Nathalie Koulechhoff qui, quand elle passait par notre bureau, faisait une halte avec son "Alors ça va? ça avance?!!" Vous allez toutes me manquer!!!

Durant ma thèse j'ai eu le privilège d'exercer des activités d'enseignement et ce fut pour moi une expérience très enrichissante. Je tiens à remercier Frédéric Hébert et Olivier Legrand qui m'ont confié les charges d'enseignement. Je remercie toutes les personnes qui m'ont fait bénéficier de leurs expériences : Giovanna Tissoni, Claire Michel, Umberto Bortolozzo, Frédéric Blanc, Olivier Alibert et Valérie Doya. Je remercie également Marie-Gabrielle Medici de m'avoir confié les charges de TD de MecaFlu, j'ai pris beaucoup de plaisir à le faire et, bien sûr, pour un concert de Francis Cabrel ou une danse bretonne je serai toujours partante (on emmène les autres secrétaires aussi!!!). Je tiens à remercier particulièrement Anders Kastberg, avec qui j'ai co-encadré les TPs de mécanique quantique, qui m'a beaucoup appris. Je te remercie pour les nombreuses fois où tu as échangé nos horaires des matinées pendant la période de fin de rédaction. Merci pour ta compréhension!

Je me suis aussi beaucoup investie dans des actions de vulgarisation et de diffusion de la culture scientifique. Je tiens à remercier Jean-Michel Ghez de m'avoir laissée organiser les ateliers en rhéologie et autres pour Sciences et Expériences en 2014. Je remercie également Anne Gaël Bouchet, directrice l'agence Alter Ego de Nice, de m'avoir permis de participer aux rallyes-découvertes "Tous les métiers sont mixtes" du Boys'Day-Girls'Day édition 2016, pour faire découvrir le métier de chercheur aux jeunes filles. Je remercie aussi Isa-Dora Gentil, ma voisine, d'avoir accepté de se joindre à moi aux rallyes-découvertes, en tant que première femme grutière de France. S'il y a des jeunes femmes qui lisent ce passage, je vous dis une seule chose, si vous voulez faire de la science, faites-le, et surtout, ne vous auto-censurez pas!

Je remercie mes co-organisateurs des Journées Doctorales de la Physique Niçoise (JDPN2015) : Djeylan Aktas, Alexandre Belli et Edouard Palis, c'était très agréable de travailler avec vous, on a formé "une belle équipe" et nous avons partagé de bons moments, de l'organisation jusqu'à l'aboutissement des journées. Je remercie également les initiateurs de ces journées, Taha Rouabah et François Gustave, pour nous avoir fait bénéficier de leur expérience et permis de donner naissance à ce colloque. J'espère que ces journées se reproduiront dans le futur! Je remercie également la fédération Doeblin et l'OCA ainsi que la directrice de l'école doctorale EDSFA, Elisabeth Taffin

de Givenchy, et tous les directeurs des laboratoires de la physique niçoise : ARTEMIS, CRHEA, GEOAZUR, INLN, Lagrange, LJAD et LPMC, pour nous avoir soutenus pour ce projet.

Je voudrais remercier tout particulièrement Dima Tanzilli pour sa grande implication dans mon projet de thèse. Sans toi, ce projet n'aurait pas pu voir le jour et je te remercie également pour tous les conseils et recommandations que tu m'a apportés.

Je remercie tous mes amis doctorants, merci pour cette bonne ambiance et la forte solidarité qui régnaient entre nous! Hey mein lieber lieber deutch Freund herzlichen Dank fur "Alter!". Bruno, notre Flyin'Qbit "imbattable", qui ne manquait jamais d'occasions pour faire la fête ("mais c'est pas la faute à Bruno!"). Thank you Panos for you know what! Merci à petit Florent, Martin, Keiser, JF, Manu le doudou de doudou, mon partenaire de salsa "avec un ptit clin d'œil".

A mes deux adorables italiennes, Chiara et Martina, merci pour votre amitié et vos encouragements, votre présence m'a fait tellement de bien, TVB tanto tanto!

Je remercie les anciens du labo : Geoffroy, merci pour ton amitié, merci de m'avoir emmenée voir la neige pour la première fois, je ne l'oublierai jamais; merci "Amandchine" pour nos discussions, toi en fin de rédaction et moi en fin de 3ème année, c'était bien encourageant, et je n'oublie pas notre Lotfy, ainsi que Yasmine.

Je tiens également à te remercier Jessica "Kuzhir" pour ta grande gentillesse et ton immense générosité. Je te suis très reconnaissante Jessica.

Après le travail il est important de se divertir par des activités plaisantes, je remercie mes camarades touchers du club Touch Azur pour ces deux années passées avec vous, merci pour ces bons moments aux entraînements et aux tournois, et sans oublier la troisième mi-temps. Je remercie Debho qui m'a fait découvrir le touch-rugby. Je remercie également les amis salseros et salseras du Cuba Libre pour toutes les belles danses et cours partagés, ce fut un moment de détente et une belle escapade après le travail. " Viva bailar para siempre!!!"

Aaah ma coco, que puis-je te dire, j'ai beaucoup de chance de t'avoir, mais che ti dis!!!! Tu m'es très chère, merci pour ta présence, ton soutien infaillible et ta précieuse amitié, "Pour toujours!".

Grazie miele Cecelia, ma chouchou, nous avons partagé de beaux moments, entre escalades, salsa, soirée perfect dinner, etc ... tu étais notre ange gardien, espérons que tu reviendras et j'espère que tu auras ce que tu désires le plus. TVB tanto tanto...

Je tiens à te remercier ma mamie, MamiDomi, simplement pour ton amitié, ton soutien, tu as été là à chaque moment depuis que j'ai débarqué à Charles Baudelaire, merci pour toutes nos soirées

et nuits blanches à revoir mon manuscrit, pour toutes nos petites dînettes, "mais c'est qui dînette" et nos soirées ciné classique "Ah Nice c'est aussi tout petit pour ceux qui s'aiment comme nous d'un aussi grand amour", merci pour toutes ces fêtes avec les voisins que tu as organisées dans une ambiance conviviale. Mami ces quelques mots ne pourront jamais résumer mon immense gratitude à ton égard, je reste ta petite dernière hein !

Je remercie mes amis d'Algérie, ma tendre amie depuis l'enfance, Ilhem, on se comprend sans même avoir besoin de se parler, même après de longues absences c'est comme si nous ne nous étions jamais séparées. Merci à Aicha mon amie de fac, nous avons partagé notre passion de la physique et de la vulgarisation.

Je tiens à remercier Madame Marie-Anne. Mes discussions avec vous étaient salvatrices, vous m'avez apporté énormément pendant cette période. Je vous remercie infiniment.

Enfin, je voudrais remercier les membres de ma famille, merci à ma tante Marie-Claire de m'avoir accueillie lorsque j'ai débarqué à Marseille pour mes études, je remercie également mes cousins, Amine, Houria, Melik et Souad, pour tous ces beaux moments et repas de famille qui m'ont fait oublié un peu que j'étais dans "El Ghourba".

Je remercie ma chère maman pour tout ce qu'elle a fait pour nous, pour les sacrifices et tous les efforts qu'elle a fait pour notre éducation. Merci à mes adorables sœurs, ma sœur jumelle "ma moitié" Ferial et Amel ma ptite sœur, merci à mon frère Adel, pour votre soutien.

Je garde une profonde pensée à mon cher père, tu nous as quittés brusquement, rien ne pourra remplacer l'immense vide que tu as laissé, tu me manques terriblement, tu as toujours cru en moi et tu m'as toujours encouragée. Grâce à toi, grâce à tout l'enseignement et la sagesse que tu m'as transmis, j'ai pu trouvé la force de continuer et aller jusqu'au bout de mes objectifs. Les dernières paroles que tu m'avais confiées : "oh Sissi, ma fille, toi je ne m'en fais pas pour toi, tu finis ton magistère ici, tu décrocheras ton doctorat en France et tu continueras à tracer ton chemin", comme si tu l'avais déjà prédit... Mon cher PAPA, aussi amère cette vie soit-elle sans toi, nous continuons à vivre et profiter de chaque instant, et nous honorons ta mémoire. Puisse Dieu t'accorder sa miséricorde, repose en paix "Mon Vieux, mon PAPA".

Notations

Grandeurs mathématiques**Scalaire**

dV : élément de volume

dS : élément de surface

P : pression macroscopique

1, 2, 3 : les trois directions dans les coordonnées cartésiennes $\sim i, j, k$

t : le temps absolu

T_{shear} : durée de cisaillement

T_{rest} : temps de repos

$\dot{\gamma}$: taux de cisaillement

γ : déformation de cisaillement

η : viscosité réelle

η^{app} : viscosité apparente

η_r : viscosité relative

η_{stat} : viscosité relative à l'état stationnaire

η_{flat} : viscosité relative au plateau newtonien

η_{spc} : viscosité spécifique au plateau newtonien

η_{min} : viscosité relative du minimum

η_{max} : viscosité relative du maximum

r_{max} : rapport de la viscosité au maximum sur la viscosité stationnaire

H : échelle caractéristique de l'écoulement

τ_0 : contrainte seuil

v : vitesse de translation

ω : vitesse de rotation

Γ : couple

F : force

Vecteurs

\vec{n} : la normale à une surface

\vec{v} : champ de déplacements

\vec{u} : champ de vitesses

Tenseurs

$\bar{\bar{\Sigma}}^T$: Tenseur des contraintes totales

$\bar{\bar{\Sigma}}^0$: Tenseur des contraintes de fluide

$\bar{\bar{\Sigma}}^p$: Tenseur des contraintes particulières

\bar{I} : tenseur d'identité

$\bar{\bar{\tau}}$: partie déviatorique du tenseur des contraintes

$\bar{\bar{\epsilon}}$: tenseur de déformations

$\bar{\bar{e}}$: tenseur du taux de déformation pure

$\bar{\bar{\omega}}$: tenseur des vitesses de rotation

$\bar{\bar{D}}$: tenseur du taux de déformation généralisé

$\bar{\bar{\Omega}}$: tenseur du taux de rotation

Opérateurs

Trs : trace d'une matrice

d : dérivée totale ou convective

∂ : dérivée partielle

∇ : gradient

div : divergence

$\vec{p} \otimes \vec{p}$: produit direct de deux vecteurs

Grandeurs et propriétés physiques des suspensions de fibres

L : longueur d'une fibre

d : diamètre d'une fibre

a_r : rapport d'aspect d'une fibre

r_e : rapport d'aspect équivalent d'une fibre

Φ : angle d'orientation d'une fibre dans le plan (1,3)

θ : angle d'orientation d'une fibre dans le plan (1,2)

\vec{p} : vecteur d'orientation d'une fibre

T_{Jef} : période de rotation d'une fibre

ρ_p : densité d'une fibre

η_f : viscosité due à la contribution des fibres

ρ_0 : densité du fluide suspendant

p^f : pression dans le fluide suspendant

N_1, N_2 : première et deuxième différences de contraintes normales

α_1, α_2 : premier et deuxième coefficient de contraintes normales

$\beta^n(\phi)$: le rapport de la viscosité normale sur la viscosité tangentielle

λ_i : rapport de la contrainte normale particulière dans la direction i sur la contrainte tangentielle

- \vec{J} : flux de migration de particules
- R_e : nombre de Reynolds
- N_{pe} : nombre de Péclet
- ϕ : fraction volumique de la fibre
- n : nombre de fibres par unité de volume
- N^i : nombre de points d'interactions fibres par unité de volume
- h_e : distance de séparation minimum entre deux fibres
- ψ : fonction de probabilité d'orientation de fibres
- D_r : coefficient de diffusion
- a_2 : tenseur d'orientation d'ordre 2
- a_4 : tenseur d'orientation d'ordre 4
- ζ_p : coefficient de friction parallèle
- ζ_t : coefficient de friction perpendiculaire
- ζ_r : coefficient de friction en rotation
- A : constante de Hamaker

Table des matières

1	Rhéologie des fluides complexes : Généralité	5
1.1	Introduction	5
1.2	Écoulement en cisaillement simple	6
1.2.1	Tenseur des contraintes	6
1.2.2	Déformation de cisaillement	8
1.2.3	Vitesse de déformation	9
1.2.4	Lois de conservation	10
1.3	Comportement des fluides sous l'effet d'une contrainte de cisaillement	11
1.3.1	Comportement Newtonien	12
1.3.2	Quelques comportements non-Newtoniens	13
1.3.3	Modèles rhéologiques	15
1.3.4	Fonctions matérielles d'un fluide	16
1.4	Essais rhéométriques	17
1.5	Mesures expérimentales des fonctions matérielles : η , N_1 et N_2	19
1.5.1	Rhéométrie en Couette cylindrique	19
1.5.2	Rhéométrie en cône-plan	22
1.5.3	Rhéométrie en plan-plan	23
1.5.4	Rhéométrie à surface libre	24
1.6	Appareil d'expérimentation : Rhéomètre HAAKE MARS II	26
1.7	Quelques artefacts expérimentaux et précautions	27
1.7.1	Glissement aux parois	27
1.7.2	Bandes de cisaillement	28
1.7.3	Fracturation du matériau cisailé	29
1.7.4	L'évaporation	30
1.7.5	Variation de la température	31
1.7.6	L'inhomogénéité de l'écoulement	32
1.7.7	Autres artefacts de mesures	32

1.8	Conclusion	32
2	Rhéologie des suspensions de fibres : état de l'art	35
2.1	Suspensions de particules : un milieu biphasique	35
2.2	Caractéristiques d'une suspension de fibre	37
2.2.1	Forme géométrique de la fibre	37
2.2.2	Régimes de concentrations ϕ	37
2.3	Mouvement d'une population de fibres	40
2.3.1	Orientation d'une population de fibres en régime dilué : L'équation de Jeffery	40
2.4	Mouvement d'une population de fibres en régime non-dilué : équation de <i>Folgar & Tucker</i>	42
2.4.1	Fonction de probabilité d'orientation ψ :	43
2.4.2	Tenseurs d'orientation	44
2.5	Interactions au sein d'une suspension de fibres	46
2.5.1	Forces Hydrodynamiques	48
2.5.2	Forces inter-particulaires non hydrodynamiques	49
2.5.3	Critère de stabilité d'une suspensions de fibres	53
2.6	Modèles de comportement des suspensions de fibres	54
2.6.1	Modèles de comportement avec interactions à longue portée	54
2.6.2	Modèles de comportement avec interactions à courte portée : contact	57
2.7	Synthèse des études expérimentales sur η_s, N_1, N_2	71
2.7.1	Résultats expérimentaux sur la mesure des tenseurs d'orientation	71
2.7.2	Résultats expérimentaux sur les mesures de viscosité	72
2.7.3	Résultats expérimentaux sur les mesures des deux différences de contraintes normales	75
2.8	Conclusion	78
3	Viscosité stationnaire des suspensions de fibres en écoulement torsionnel	81
3.1	Introduction	81
3.2	Description des suspensions de fibres	82
3.2.1	Monodispersité des fibres	82

3.2.2	Mesures de la rugosité des fibres	84
3.2.3	Fluide suspendant	87
3.3	Préparation des suspensions	88
3.4	Expérimentation	90
3.4.1	Détermination de la viscosité dans un écoulement torsionnel	90
3.4.2	Dispositif expérimental : Cellule d'écoulement	91
3.4.3	Conditions d'écoulement	93
3.4.4	Protocole expérimental	94
3.4.5	Correction de glissement	95
3.5	Comportement de la viscosité stationnaire en fonction du taux de cisaillement	96
3.6	Viscosité au plateau newtonien	98
3.7	Influence de l'échelle caractéristique de l'écoulement H	102
3.7.1	Influence du confinement sur la rhéofluidification	103
3.7.2	Influence du confinement sur la viscosité au plateau newtonien	107
3.8	Comportement en loi d'échelle : Influence de la concentration	109
3.8.1	Loi d'échelle en régime dilué et semi dilué	111
3.8.2	Loi d'échelle en régime concentré	111
3.9	Comparaison avec les travaux précédents	116
3.9.1	Comparaison avec les données expérimentales	116
3.9.2	Comparaison en régime dilué et semi dilué	118
3.9.3	Comparaison en régime concentré	120
3.10	Conclusion	124
4	Réponse transitoire de la viscosité des suspensions de fibres concentrées	127
4.1	Introduction	127
4.2	Expérience d'inversion du sens de l'écoulement	127
4.2.1	Protocole expérimental	127
4.2.2	Réponse transitoire d'une suspension newtonienne	129
4.2.3	Réponse transitoire d'une suspension rhéofluidifiante	129
4.3	Description du transitoire	130
4.4	Durée du transitoire	134

4.5	Viscosité au minimum du transitoire η_{min}	136
4.6	Viscosité au maximum du transitoire η_{max}	138
4.6.1	Influence de la contrainte	140
4.6.2	Influence de la concentration	140
4.6.3	Approche macroscopique pour la détermination de $\langle p_1^2 p_2^2 \rangle_{max}$	146
4.7	Déformation au maximum du transitoire γ_{max}	148
4.8	Influence du confinement sur η_{min} et η_{max}	152
4.9	Comparaisons avec les travaux précédents	156
4.10	Conclusions	158
5	Rhéofluidification dans les suspensions de fibres concentrées	161
5.1	Introduction	161
5.2	Modèles de rhéofluidification	163
6	Contraintes normales et migration dans les suspensions de fibres concen-	
	trées	235
6.1	Introduction	235
6.2	Mesure des différences de contraintes normales	235
6.3	Complément de l'article	247
6.3.1	Validation des mesures de pressions	247
6.3.2	Validation de la procédure expérimentale	249
6.4	Contraintes normales particulières et migration	251
6.4.1	Dispositif expérimental	251
6.4.2	Détermination des contraintes normales particulières Σ^p	253
6.4.3	Protocole expérimental	256
6.4.4	Exemples de profil radial de p^f	256
6.5	Résultats et discussions	260
6.5.1	Résultats sur les contraintes normales particulières	260
6.5.2	Migration dans les suspensions de fibres	262
6.5.3	Conclusion	266
	Bibliographie	271

Table des figures

1.1	Profil de vitesse pour un écoulement de cisaillement simple entre deux plans parallèles. Le plan supérieur est en mouvement à la vitesse v_0 . Le plan inférieur est maintenu fixe.	6
1.2	Décomposition du tenseur des contraintes dans le cas d'un cisaillement simple. Les termes diagonaux Σ_{11} , Σ_{22} , Σ_{33} représentent les composantes normales du tenseur, et le terme déviateur $\Sigma_{12} = \Sigma_{21}$ représente la contrainte tangentielle.	8
1.3	Représentation schématique d'une déformation dans le cas d'un écoulement en cisaillement simple.	9
1.4	Rhéogrammes des différentes loi de comportement de fluides complexes. $\Sigma_{21} = f(\dot{\gamma})$	17
1.5	Exemple de réponses de la déformation en fluage, pour différents matériaux.	19
1.6	Différents types de géométries induisant un écoulement en cisaillement. Figure extraite de [Larson 2001]	20
1.7	Rhéomètre à géométrie couette cylindrique	21
1.8	Rhéomètre à géométrie cône-plan.	22
1.9	Rhéomètre à géométrie plan-plan.	23
1.10	Rhéomètre à barreau rotatif illustrant l'effet <i>effet Weissenberg</i> , obtenu par un polymère qui montre une montée du matériau le long du barreau. Pour une suspension de sphères, un creux apparaît au voisinage du cylindre interne.	24
1.11	Écoulement d'un fluide à travers une semi-collone inclinée d'un angle β par rapport au plan horizontale.	25
1.12	Rheometre HAAKE Mars II.	26
1.13	Phénomène de glissement aux parois dans un écoulement de Couette plan.	28
1.14	Phénomène d'apparition de bandes de cisaillement dans un écoulement de Couette plan.	29
1.15	Phénomène de fracturation dans un écoulement de Couette plan.	30
2.1	Différentes formes de particules avec leur rapport d'aspect a_r , et leur vecteur d'orientation \vec{p}	36

2.2	Composantes du vecteur d'orientation d'une fibre \vec{p} dans le système de coordonnées (θ, Φ)	38
2.3	Différents régimes de concentration d'une suspension de fibres suivant la classification de [Doi & Edwards 1988].	40
2.4	Représentation schématique des différentes orbites de <i>Jefferey</i> pour un écoulement en cisaillement simple pour une fibre de rapport d'aspect $a_r = 10$. x , y et z sont les directions de l'écoulement, du gradient de vitesse et de la vorticité, respectivement. Figure extraite de [Sundararajakumar & Koch 1997].	42
2.5	Exemple de configuration d'orientation en 2 dimensions pour une population de fibres, avec les composantes du tenseur d'orientation d'ordre 2, \bar{a}_2 correspondantes.	46
2.6	Représentation schématique d'un point de contact entre deux fibres. Les forces en présence sont la force hydrodynamique de lubrification, f_l , la force de friction, f_{fr} , et une force normale, f_n , qui peut avoir différentes origines : van der Waals, force élastostatique...	52
2.7	Comparaison des valeurs de $\langle p_1^2 p_2^2 \rangle \equiv \langle p_x^2 p_y^2 \rangle$, obtenues par simulation avec les données expérimentales de [Stover <i>et al.</i> 1992] et [Anczurowski & Mason 1967]. Figure extraite de [Fan <i>et al.</i> 1998].	61
2.8	Représentation schématique d'une fibre test α en interaction avec une fibre voisine, β . Figure extraite de [Férec <i>et al.</i> 2009]	63
2.9	Figure (a) Effet du coefficient de friction μ_{frc} et $nL^2 d$ sur N_1 . Figure (b). Composante hydrodynamique N_2^h en fonction du paramètre $nL^3 \frac{\ln r_e \eta_f}{r_e a_r \eta_s}$. Figure (c). Composante mécanique N_2^m en fonction du paramètre $nL^3 \frac{\ln r_e \eta_f}{r_e a_r \eta_s}$. Simulation de N_1^h et N_2^m sont effectuées pour $\mu_{frc} = 0$ [Lindström & Uesaka 2009].	68
2.10	Comparaison entre la viscosité spécifique η_{sp} calculée par la théorie de [Batchelor 1971] et les simulations de [Lindström & Uesaka 2009]. Les données de η_{sp} sont calculées à partir du jeu de paramètres suivant : $a_r \in [20, 40]$, $nL^3 \in [1, 40]$, et $\mu_{frc} = 0$. La droite représente les prédictions théoriques de [Rahnama <i>et al.</i> 1995]. Les bars en noir représentent le pourcentage d'erreur. Figure extraite de [Lindström & Uesaka 2009].	69

2.11	Figure (A) évolution des composantes du tenseur d'orientation d'ordre 2 qui contribuent à la partie hydrodynamique de la contrainte en fonction du rapport d'aspect des fibres, A , $nL^2d = 3$. Figure (B) évolution des composantes du tenseur d'interaction dû aux forces collisionnelles en fonction du rapport d'aspect, calculées à partir des simulations de [Snook <i>et al.</i> 2014] pour $nL^2d = 3$. $a_r \equiv A$. Figure extraite de [Snook 2015].	70
2.12	Viscosité spécifique η_{sp} en fonction de nL^2d , Comparaison entre les expériences de [Petrich <i>et al.</i> 2000], les simulations de [Sundararajakumar & Koch 1997] et les données expérimentales de [Bibbo 1987]. Les résultats montrent un bon accord. Figure extraite de [Sundararajakumar & Koch 1997]	73
2.13	Viscosité relative η_r en fonction de la concentration ϕ . Comparaison du modèle de [Férec <i>et al.</i> 2009], (courbes pleines en pointillé) avec les données expérimentales de [Férec <i>et al.</i> 2009] et [Petrich <i>et al.</i> 2000] (symboles). Figure extraite de [Férec <i>et al.</i> 2009]	74
2.14	Une comparaison de la viscosité relative η_r des simulations directes de [Fan <i>et al.</i> 1998] (symboles pleins) avec les données expérimentales de [Bibbo 1987] (symboles ouverts). Figure extraite de [Fan <i>et al.</i> 1998].	74
2.15	Comparaison entre la viscosité spécifique calculée des simulations de [Lindström & Uesaka 2009], pour $\mu_{frc} = 0$ avec les résultats expérimentaux de [Blakeney 1966], $a_r=2$, [Mongruel & Cloitre 1999] $a_r \in [15, 60]$, [Bibbo 1987], $a_r \in [9, 33]$, [Petrich <i>et al.</i> 2000], $a_r = [50, 72]$ et [Chaouche & Koch 2001], $a_r = 36$. Les droites en trait plein et pointillé A , B , représentent les deux courbes maîtresses sur lesquelles des différentes données expérimentales collapsent. Figure extraite de [Lindström & Uesaka 2009]	75
2.16	Différence de contraintes normales $N_1 - N_2$, normalisée par $\eta_0\dot{\gamma}$ en fonction de la concentration ϕ . Comparaison du modèle de [Férec <i>et al.</i> 2009], (courbes pleines en pointillé) avec les données expérimentales de [Férec <i>et al.</i> 2009] et [Petrich <i>et al.</i> 2000] (symboles). Figure extraite de [Férec <i>et al.</i> 2009]	77

2.17	Comparaison de la première différence de contrainte normale, N_1 , obtenue à partir des simulations de [Lindström & Uesaka 2009], pour $\mu_{frc} = 0$ et $a_r \in [20, 40]$ avec les résultats expérimentaux de [Petrich <i>et al.</i> 2000], $a_r = 50$ et [Carter 1967] $a_r = 57$. Les symboles en \times représentent N_1 , calculée à partir de la distribution d'orientation mesurée par [Petrich <i>et al.</i> 2000] combinée avec le paramètre η_f de [Batchelor 1970]. Les points noirs correspondent à des valeurs de N_1 , prises en régime concentré et donc difficilement comparables aux résultats de la simulation. Figure extraite de [Lindström & Uesaka 2009].	77
2.18	Comparaison de $N_1 - N_2$ normalisée par Σ_{12} des résultats de simulations numériques de [Snook <i>et al.</i> 2014] à différents niveaux de confinement. (A) pour les petits rapports d'aspect. (B) pour les plus grands rapports d'aspect et comparaison avec les résultats expérimentaux de [Keshtkar <i>et al.</i> 2009]. Figure extraite de [Snook 2015].	78
3.1	Image microscopique des fibres polyamides étudiées de différents rapports d'aspect. (a) $a_r = 18, L = 500\mu m$. (b) $a_r = 18, L = 300\mu m$. (c) $a_r = 33, L = 500\mu m$, (d) $a_r = 10, L = 300\mu m$	82
3.2	Histogramme de distribution de diamètre et de longueur des fibres pour les quatre lots de fibres utilisées. (a) diamètre. (b) Longueur de la fibre. Les fibres ont une bonne monodispersité.	83
3.3	Profil de rugosité obtenu par AFM. (a) Fibres de rapport d'aspect $a_r = 18$. (b) Fibres de rapport d'aspect $a_r = 33$	85
3.4	Profil de rugosité obtenue par AFM. (a) Fibres de rapport d'aspect $a_r = 18$. (b) Fibres de rapports d'aspect $a_r = 33$	86
3.5	Dispositif expérimental utilisé dans notre étude. Une cuve cylindrique implémentée dans une géométrie plan-plan. L'entrefer H désigne l'échelle caractéristique de l'écoulement et δ est la distance entre le bord du disque et la cuve.	92
3.6	Variation de la viscosité du fluide suspendant mesurée, $\eta_0(H)$, en fonction de l'entrefer, H (points rouges). La courbe en bleu, $f(H)$, décrit le meilleur fit des données expérimentales.	93

3.7	Paliers de contraintes appliquées en cisaillement simple ; la période de chaque palier est suffisamment longue pour que les fibres atteignent leur orientation d'équilibre et pour mesurer ainsi la viscosité stationnaire.	95
3.8	Comparaison des courbes d'écoulement pour une suspension de fibres $\phi = 0.13, r = 18$, obtenues avec une géométrie rugueuse (courbe bleue), et lisse (courbe noire). Les courbes se confondent sur une large gamme de taux de cisaillement, $\dot{\gamma}$, indiquant que le glissement est négligeable.	96
3.9	Viscosité relative η_r en fonction du taux de cisaillement $\dot{\gamma}_R$ pour des suspensions de fibres de trois rapports d'aspect. (a) $a_r = 10$. (b), $a_r = 18$. (c) $a_r = 33$. Les mesures sont effectuées pour un entrefer $H = 12L$	97
3.10	Viscosité relative en fonction du taux de cisaillement : (a) Pour une suspension ($a_r = 18, \phi = 0.11$). (b) Pour une suspension ($a_r = 18, \phi = 0.15$). Exemple de méthode d'extrapolation des données expérimentales de viscosité pour la détermination de la viscosité au plateau newtonien. Données expérimentales, (carrés bleus), données obtenues par extrapolation à partir de faibles taux de cisaillement (cercles noirs), et les points en rouge représentent les données obtenues par extrapolation des données expérimentales à partir de grands taux de cisaillement. Les courbes se confondent sur toute la plage du taux de cisaillement.	100
3.11	Viscosité relative en fonction du taux de cisaillement : (a) Pour une suspension ($a_r = 33, \phi = 0.09$). (b) Pour une suspension ($a_r = 33, \phi = 0.11$). Exemple de méthode d'extrapolation des données expérimentales de viscosité pour la détermination de la viscosité au plateau newtonien. Données expérimentales, (carrés bleus), données obtenues par extrapolation à partir de faibles taux de cisaillement (cercles noirs), et les points en rouge représentent les données obtenues par extrapolation des données expérimentales à partir de grands taux de cisaillement. Les courbes se confondent sur toute la plage du taux de cisaillement.	101

3.12	Effet du confinement sur le comportement de suspensions "newtoniennes". Viscosité relative η_r en fonction du taux de cisaillement $\dot{\gamma}_R$, pour une suspension de fibres de rapport d'aspect $a_r = 10$ et 2 concentrations différentes. (a) $a_r = 10, \phi = 0.02$. (b), $a_r = 10, \phi = 0.008$. L'effet du confinement sur les deux suspensions est quasi inexistant.	104
3.13	Effet du confinement sur la rhéofluidification des suspensions concentrées. Viscosité relative η_r en fonction du taux de cisaillement $\dot{\gamma}_R$, pour des suspensions de fibres de rapport d'aspect $a_r = 18$ et 3 concentrations différentes. (a) $\phi = 0.11$. (b) $\phi = 0.12$ et (c) $\phi = 0.13$. La viscosité est d'autant plus grande que l'entrefer est petit, la viscosité à grand taux de cisaillement $\dot{\gamma}_R$ devient indépendante de H quand $H \geq 12L$	105
3.14	Effet du confinement sur la rhéofluidification des suspensions concentrées. Viscosité relative η_r en fonction du taux de cisaillement $\dot{\gamma}_R$, pour une suspension de fibres de rapport d'aspect $a_r = 33$ et 3 concentrations différentes. (a) $\phi = 0.11$. (b), $\phi = 0.12$ et (c) $\phi = 0.13$. La viscosité est d'autant plus grande que l'entrefer est petit, la viscosité à grand taux de cisaillement $\dot{\gamma}_R$ devient indépendante de H quand $H \geq 12L$	106
3.15	Viscosité relative η_{flat} du plateau newtonien en fonction du paramètre de confinement, H/L , pour des suspensions de fibres de trois concentrations, $\phi = 0.11, \phi = 0.12, \phi = 0.13$ et de 2 rapports d'aspect. (a) $a_r = 18$. (b), $a_r = 33$. La longueur des fibres pour les deux lots est $L = 500\mu m$. L'effet du confinement est plus important pour les suspensions à grand rapport d'aspect et de grande concentration.	107
3.16	Viscosité relative en fonction de la concentration, et à différents paramètres du confinement H/L , pour des fibres de rapport d'aspect $a_r = 10$ et de longueur $L = 300\mu m$	108
3.17	Viscosité plateau η_{flat} pour trois rapports d'aspect, $a_r = 10, a_r = 18, a_r = 33$. (a) en fonction de la concentration. (b), en fonction du paramètre nL^2d	110
3.18	Viscosité relative en fonction du paramètre β , pour trois rapports d'aspect, $a_r = 10, a_r = 18, a_r = 33$, dans le présent travail. Les données expérimentales collapent sur une même courbe maîtresse linéaire de pente 0.784.	112

3.19	Paramètres ajustables du modèle de [Phan-Thien & Graham 1991]. (a), relation entre la fraction volumique de packing, ϕ^* , et le rapport d'aspect, $a_r = 10, a_r = 18, a_r = 33$, dans le présent travail (courbe en rouge). La droite représente l'approximation linéaire $\phi^* = 0.47 - 0.0074 \cdot a_r$, et comparaison avec les données expérimentales et la loi empirique proposée par [Kitano <i>et al.</i> 1981] (courbe en noir). (b) Comparaison entre les lois empiriques pour le paramètre k obtenu à partir des moyennes d'orientation $\langle p_1^2 p_2^2 \rangle$ de [Phan-Thien & Graham 1991].	114
3.20	Viscosité relative en fonction de la concentration, ϕ , pour les deux jeux de paramètres ajustables. (a) Paramètres obtenus par l'équation (3.27). (b) Paramètres obtenus par l'équation (3.26).	115
3.21	Viscosité plateau η_{flat} en fonction de la concentration ϕ . (a) Comparaison pour des suspensions de fibres de petits rapports d'aspect, $a_r = [10, 18]$, dans le présent travail avec les données expérimentales reportées par [Sepehr <i>et al.</i> 2004] et [Férec <i>et al.</i> 2009] pour $a_r = 20$, de [Mongruel & Cloitre 1999] pour $a_r = 15$ et de [Bibbo 1987] pour $a_r = 17$. (b) Comparaison pour les grands rapports d'aspect pour $a_r = 33$ dans la présente étude avec les données de [Chaouche & Koch 2001] pour $a_r = 36$, de [Mongruel & Cloitre 1999] pour $a_r = 30$ et de [Bibbo 1987] pour $a_r = 33$	117
3.22	Comportement en loi d'échelle de la viscosité plateau η_{flat} en fonction du paramètre β . Comparaison avec les données expérimentales reportées par [Férec <i>et al.</i> 2009] et [Sepehr <i>et al.</i> 2004] pour $a_r = 20$, [Chaouche & Koch 2001] pour $a_r = 36$ et ceux de [Mongruel & Cloitre 1999] pour $a_r = [15, 30]$ et [Bibbo 1987] pour $a_r = [17, 33]$ qui sont comparables aux rapports d'aspect utilisés dans la présente étude, $a_r = [10, 18, 33]$	118
3.23	Viscosité plateau η_{flat} en fonction du paramètre nL^2d . (a) Comparaison avec les simulations de [Sundararajakumar & Koch 1997], et les données expérimentales de [Petrich <i>et al.</i> 2000] pour des suspensions de fibres de rapport d'aspect $a_r \leq 20$. (b) même comparaison pour des rapports d'aspect, $a_r \geq 30$. Une comparaison avec les données expérimentales par d'autres auteurs est illustrée en parallèle sur les deux figures.	121

3.24	Comparaison de la viscosité plateau η_{flat} avec les simulations numériques de [Mackaplow & Shaqfeh 1996] et de [Snook <i>et al.</i> 2014]. L'accord est assez bon jusqu'à $nL^2d \sim 3$	122
3.25	Viscosité plateau η_r en fonction du paramètre nL^2d . Comparaison entre les données expérimentales pour notre étude avec le modèle de [Fan <i>et al.</i> 1998]. L'accord est assez bon même pour des régimes de concentration élevés, pour des suspensions de fibres de petit rapports d'aspects, $a_r = 10$, $a_r = [17.9, 18]$, pour les grands rapport d'aspect l'accord est limité aux faibles concentrations.	123
4.1	Série de paliers de contraintes appliquées pour une inversion de l'écoulement (dans un sens et dans l'autre). La période de chaque palier est assez longue pour atteindre l'état stationnaire, le transitoire est défini pour une même contrainte de signe opposé. 128	
4.2	Exemple d'inversion du sens de cisaillement pour une suspension semi-diluée de concentration $\phi = 0.02$ et de rapport d'aspect $a_r = 18$. La viscosité est invariante par inversion du sens de l'écoulement.	129
4.3	Exemple d'inversion du sens de cisaillement pour une suspension de fibres rhéofluïdifiante de concentration, $\phi = 0.12$ et de rapport d'aspect, $a_r = 18$. Après inversion du sens de l'écoulement, la viscosité décroît brutalement ensuite croît jusqu'à une valeur maximale puis décroît à nouveau jusqu'à la valeur qu'elle avait avant l'inversion. 130	
4.4	Réponse transitoire de la viscosité relative après inversion du sens de l'écoulement, pour une suspension de fibres ($a_r = 33, \phi = 0.13$). La viscosité est tracée en fonction du temps. Le minimum de viscosité, η_{min} et le temps nécessaire pour l'atteindre varient peu avec la contrainte imposée. Le retour à l'état stationnaire est d'autant plus long que la contrainte appliquée est petite.	131

4.5	Réponse transitoire de la viscosité relative après inversion du sens de l'écoulement, pour une suspension de fibres ($a_r = 33, \phi = 0.13$). (a) La viscosité relative tracée en fonction de la déformation $ \gamma $. (b) La viscosité relative tracée en fonction de la déformation $ \gamma - \gamma_{min} $. (c) La viscosité relative normalisée par la viscosité stationnaire pour chaque contrainte appliquée. Le maximum de viscosité η_{max} est localisé pour une déformation accumulée identique quelque soit la contrainte appliquée.	133
4.6	Comportement de la viscosité relative de suspensions de fibres concentrées après inversion du sens de l'écoulement. (a), $r = 18$ et $\phi = 0.12, \phi = 0.16$. (b), $a_r = 33, \phi = 0.06, \phi = 0.12$. (c), $a_r = 10, \phi = 0.12, \phi = 0.18$. Mesures effectuées pour $H = 12L$	135
4.7	Influence de la contrainte imposée sur le minimum de viscosité η_{min} pour des suspensions de fibres à différentes concentrations et pour les 3 rapports d'aspect. (a) suspensions de fibres de rapport d'aspect $a_r = 10$. (b) suspensions de fibres de rapport d'aspect $a_r = 18$. (c) Suspensions de fibres de rapport d'aspect $a_r = 33$. Le minimum ne varie pas avec la contrainte. Les mesures sont effectuées pour un confinement $H = 12L$	137
4.8	. Représentation schématique de la flexion d'une fibre.	138
4.9	. Comportement de l'élasticité d'un réseau de fibres, $G \approx \frac{\eta_{stat}}{t_{min}}$, en fonction de la contrainte et pour différentes concentrations. (a) Suspensions de fibres de rapport d'aspect $a_r = 10$. (b) Suspensions de fibres de rapport d'aspect $a_r = 18$. (c) Suspensions de fibres de rapport d'aspect $a_r = 33$. Lorsque la contrainte augmente, l'élasticité, G , croît linéairement avec la contrainte et atteint un plateau à partir d'une certaine contrainte. Les mesures sont effectuées pour un confinement $H = 12L$	139
4.10	. Comportement de l'élasticité d'un réseau de fibres, $G \approx \frac{\eta_{sta}}{t_{min}}$, en fonction du paramètre de concentration nL^2d . Les mesures sont effectuées pour un confinement $H = 12L$	140

4.11	Influence de la contrainte imposée sur le maximum de viscosité. (a) suspensions de fibres de rapport d'aspect $a_r = 10$. (b) Suspensions de fibres de rapport d'aspect $a_r = 18$. (c) Suspensions de fibres de rapport d'aspect $a_r = 33$. Le maximum est rhéofluidifiant. Les mesures sont effectuées pour un confinement $H = 12L$	141
4.12	Influence de la contrainte imposée sur η_{max} tracée en fonction du taux de cisaillement et pour différentes concentrations. (a) suspensions de fibres de rapport d'aspect $a_r = 10$. (b) Suspensions de fibres de rapport d'aspect $a_r = 18$. (c) Suspensions de fibres de rapport d'aspect $a_r = 33$. Les mesures sont effectuées pour un confinement $H = 12L$	142
4.13	Influence de la contrainte imposée sur le rapport $r_{max} = \frac{\eta_{max}}{\eta_{stat}}$. (a) suspensions de fibres de rapport d'aspect $a_r = 10$. (b) Suspensions de fibres de rapport d'aspect $a_r = 18$. (c) Suspensions de fibres de rapport d'aspect $a_r = 33$	143
4.14	Comportement du maximum de viscosité η_{max} en fonction de la concentration, et comparaison avec le modèle de [Phan-Thien 1995] pour lequel les paramètres k_{max} et ϕ_{max}^* sont des paramètres libres.	144
4.15	Paramètres ajustables du modèle de [Phan-Thien 1995], pour décrire le comportement du maximum de viscosité η_{max} . (a) paramètre k_{max} . (b) la concentration de packing ϕ_{max}^* . Une comparaison avec les paramètres k et ϕ^* obtenus pour le comportement de la viscosité plateau, η_{flat} , est aussi représentée	145
4.16	Comportement de la viscosité en fonction de la concentration pour des suspensions de fibres de trois rapports d'aspect, $a_r = 10$, $a_r = 18$ et $a_r = 33$. (a) η_{flat} . (b) η_{max} . Les courbes représentent le fit du modèle de [Djalili-Moghaddam & Toll 2005] et [Férec <i>et al.</i> 2009] combiné avec l'expression de $\langle p_1^2 p_2^2 \rangle_{flat}$ de [Leal & Hinch 1971] et [Hinch & Leal 1972]. (c) Comparaison des valeurs de la composante du tenseur d'orientation d'ordre 4 $\langle p_1^2 p_2^2 \rangle_{flat}$ de [Leal & Hinch 1971] et $\langle p_1^2 p_2^2 \rangle_{max}$ déterminé à partir du fit du modèle.	149

4.17	Loi empirique pour le maximum de viscosité η_{max} . (a) Comportement du maximum de viscosité, η_{max} en fonction de la viscosité plateau η_{flat} pour les suspensions de fibres de trois rapports d'aspect. (b) Variation de la pente A_{max} avec le rapport d'aspect. La loi empirique montre que pour un rapport d'aspect donné $A_{max} = \frac{\eta_{max} - 1}{\eta_{flat} - 1}$ est constant.	150
4.18	Déformation caractéristique, γ_{max} , où le pic de viscosité, η_{max} est localisé. (a) γ_{max} en fonction de nL^2d . Pour les deux grands rapports d'aspect, la déformation caractéristique, γ_{max} , atteint un plateau lorsque nL^2d augmente. (b) γ_{max} normalisée par γ_J , $\frac{\gamma_{max}}{\gamma_J}$. Les données collapent en une seule courbe, qui décroît avec nL^2d , jusqu'à atteindre une valeur de saturation pour $nL^2d \sim 3.5$	151
4.19	Exemple de l'effet du confinement sur les mesures de viscosité du transitoire pour une suspension concentrée de rapport d'aspect $a_r = 33$ et de concentration $\phi = 0.13$. (a) η_{max} en fonction de la contrainte appliquée, Σ_{12} . (a) η_{min} en fonction de la contrainte appliquée, Σ_{12}	152
4.20	Rapport de η_{max} sur η_{flat} , en fonction de H/L . (a) Suspensions de rapport d'aspect $a_r = 10$. (b) Suspensions de rapport d'aspect $a_r = 18$. (c) Suspensions de rapport d'aspect $a_r = 33$. L'excès de viscosité r_{max} ne dépend pas du confinement.	154
4.21	η_{min} , en fonction de H/L . (a) Suspensions de rapport d'aspect $a_r = 10$. (b) Suspensions de rapport d'aspect $a_r = 18$. (c) Suspensions de rapport d'aspect $a_r = 33$. la viscosité au minimum, η_{min} ne dépend pas du confinement.	155
4.22	Rapport de $r_{max} = \frac{\eta_{max}}{\eta_{flat}}$, en fonction de la concentration pour les fibres de rapport d'aspect $a_r = [10, 20, 33]$ pour la présente étude, comparaison avec les données expérimentale de [Sephehr <i>et al.</i> 2004] et [Férec <i>et al.</i> 2009], pour $a_r = 20$ et [Keshtkar <i>et al.</i> 2009], pour $a_r = 35$	156
4.23	Déformation caractéristique au pic du transitoire, γ_{max} normalisée par γ_J , $\frac{\gamma_{max}}{\gamma_J}$ pour la présente étude et comparaison avec les données expérimentales de [Férec <i>et al.</i> 2009] pour $a_r = 20$. Les données collapent en une seule courbe, qui décroît avec nL^2d , jusqu'à atteindre une valeur de saturation $nL^2d \sim 3.5$	157
6.1	Test de pression hydrostatique sur les différents capteurs de pression	248

6.2	Mesure de pression inertielle enregistrée par les capteurs de pression. Capteurs directs (symboles cercles). Capteurs à grille (symboles carrés). Les capteurs reproduisent correctement la prédiction du profil théorique de la pression inertielle. . . .	249
6.3	Signal enregistré sur les mesures de forces directes exercées sur le disque supérieur de la géométrie F (lignes bleues) au cours du temps. Le protocole expérimental représenté sur la figure plus haut (ligne rouge). Exemple d'une suspension de fibres $a_r = 10, \phi = 0.21$	250
6.4	Comparaison entre les mesures directes de la force exercée sur le disque supérieur de la géométrie avec la force totale obtenue par intégration du profil de Σ_{22} sur le disque. Les deux mesures donnent des valeurs comparables. Exemple d'une suspension de fibres $a_r = 10, \phi = 0.21$	251
6.5	Dispositif expérimental pour les mesures de pression, quatre capteurs directs qui mesurent la contrainte totale dans la direction du gradient de vitesse, Σ_{22}^T de la suspension et quatre capteurs à grille qui mesurent la pression dans le fluide interstitiel, p^f	252
6.6	Exemple du signal enregistré par les capteurs à grille situés à différentes positions radiales : $r_g = [1.4; 2.4; 3.5; 4.4]$ cm pour les mesures de pression fluide. Les mesures sont effectuées pour une contrainte appliquée $\Sigma_{12}(R) = 40Pa$ pour une suspension de fibres de rapport d'aspect $a_r = 33$ et de concentration $\phi = 0.11$	256
6.7	Exemple du profil radial de la pression fluide p^f pour une suspension de fibres ($\phi = 0.14, a_r = 18$). (a) variation de la pression fluide en fonction de $(r/R)^n$. (b) La pression fluide p^f normalisée par la contrainte tangentielle $\Sigma_{12}(R)$. La figure indique que la pression fluide n'est pas constante dans l'entrefer. . . .	258
6.8	Exemple du profil radial de la pression fluide p^f pour une suspension de fibres ($\phi = 0.11, a_r = 33$). (a) variation de la pression fluide en fonction de $(r/R)^n$. (b) La pression fluide p^f normalisée par la contrainte tangentielle $\Sigma_{12}(R)$. . .	259
6.9	Comparaison de la pression fluide à l'origine $p^f(r = 0)$ et la contrainte normale totale à l'origine $\Sigma_{22}^T(r = 0)$ normalisées par la contrainte tangentielle $\Sigma_{12}(R)$ en fonction de la concentration ϕ mesurées pour des suspensions de fibres de différentes concentrations et rapports d'aspect.	260

6.10	Contraintes normales particulières normalisées par la contrainte tangentielle.	
	(a) Première contrainte normale particulière $\frac{\Sigma_{22}^p}{\Sigma_{12}(R)}$	
	(b) Deuxième contrainte normale particulière $\frac{\Sigma_{22}^p}{\Sigma_{12}(R)}$.	
	(c) troisième contrainte normales particulière $\frac{\Sigma_{33}^p}{\Sigma_{12}(R)}$.	261
6.11	Résultats de mesures expérimentales grandeurs physiques définies dans le modèle de [Morris & Boulay 1999] en fonction de nL^2d .	
	(a) Paramètre anisotropie λ_2 .	
	(b) Paramètre anisotropie λ_3 .	265

Liste des tableaux

3.1	Mesure de rugosité de surface par AFM : R_{max} , est la distance entre le pic minimal et maximal, R_a est la moyenne de mesure de rugosité de la surface des fibres et R_q , représente l'écart type de la mesure. L'analyse est effectuée pour des fibres de rapport d'aspect $a_r = 18$ et $a_r = 33$	87
3.2	Caractéristiques des suspensions de fibres étudiées dans nos expériences. $\phi' = 1/a_r^2$ et $\phi'' = 1/a_r$ désignent la limite qui sépare le régime dilué du régime semi-dilué, et semi-dilué de concentré, respectivement. Σ_{crit} est la contrainte critique à partir de laquelle les fibres flambent, et Σ_{max} est la contrainte de cisaillement maximale appliquée dans notre expérimentation.	89
3.3	Valeurs des paramètres du fit obtenues par les deux méthodes d'extrapolation, pour des suspensions de fibres rhéofluidifiantes. Tableau en haut ($a_r = 18$, $\phi = 0.11$, $\phi = 0.15$). Tableau en bas ($a_r = 33$, $\phi = 0.09$, $\phi = 0.11$). Les différentes colonnes représentent : la gamme de taux de cisaillement sur laquelle l'extrapolation est effectuée, les différentes concentrations, la constante, A^* , l'exposant, s , et la viscosité plateau η_{flat} . Pour une concentration et un rapport d'aspect donnés, les deux méthodes d'extrapolation donnent la même viscosité plateau η_{flat}	99
3.4	Comparaison des paramètres expérimentaux pour la présente étude avec ceux de la littérature. Le rapport d'aspect des fibres, a_r , leur diamètre, d , la viscosité du fluide suspendant, η_0 , le taux de cisaillement expérimental, $\dot{\gamma}(R)_{exp}$, le paramètre de confinement H/L , les forces adhésives de Van der Waals, F , et le paramètre d'agrégation N_A	119

Introduction générale

Les matériaux composites sont omniprésents dans les objets de notre quotidien car l'assemblage des constituants dont ils sont le résultat permet de leur conférer des propriétés particulières et adaptées aux applications auxquelles ils sont dédiés. Le choix des constituants permettra ainsi, selon les besoins, d'optimiser les propriétés mécaniques, thermiques, acoustiques, électriques... On trouve une grande variété de matériaux composites; ils peuvent être l'assemblage de matériaux en couche, être issus de procédés de frittage, constitués d'une armature (tige ou tissu) immergée dans une matrice ou encore formés de charges renforçantes dispersées dans une matrice. C'est à cette dernière classe de matériaux composites que nous allons nous intéresser, et plus particulièrement aux composites à base de fibres courtes. En effet, les fibres courtes sont de plus en plus utilisées comme renfort dans les matériaux composites. L'intérêt de la part de nombreux secteurs industriels tels que l'automobile, l'aéronautique et le spatial, l'électronique,..., a augmenté de manière considérable. Ainsi, l'optimisation des propriétés finales des matériaux à base de fibres représente un véritable défi industriel.

Parmi les composites à base de fibres, on trouve les polymères chargés. Les fibres sont dispersées dans la matrice polymère à l'état liquide qui est solidifiée après la phase d'injection ou d'extrusion. Les propriétés finales du composite dépendent des caractéristiques intrinsèques de la matrice et des fibres (longueur, élasticité ...) mais également de leur orientation et de leur distribution spatiale. Or, au moment de la mise en forme, il existe un couplage fort entre l'organisation des fibres et l'écoulement de la suspension formée par les fibres dispersées dans la matrice polymère à l'état liquide. La mise en forme se trouve donc être une étape décisive dans le processus de fabrication dont dépendront ensuite les propriétés finales du matériau composite.

Du point de vue scientifique, la compréhension de ce couplage entre l'écoulement et la microstructure de la suspension représente un objectif essentiel vers lequel tendre. Ainsi, plusieurs questions se posent :

- Comment les fibres s'organisent-elles dans la suspension ? Quelles sont les interactions qui entrent en jeu ? Les fibres fléchissent-elles sous écoulement ? Comment contrôler

l'écoulement afin de prédire leur orientation ? Les fibres migrent-elles vers des régions préférentielles ?...

Avant de répondre à ces questions, il est nécessaire de connaître aussi bien que possible les propriétés rhéologiques des suspensions de fibres. C'est l'objectif de ce travail de thèse. Cette connaissance de la rhéologie des suspensions de fibres est encore imparfaite, même si de nombreuses études théoriques, numériques et expérimentales ont déjà contribué de manière très significative à l'avancée des connaissances dans ce domaine. Cependant, quand on regarde la littérature bien abondante sur la rhéologie des suspensions de fibres, on peut noter d'une part que l'essentiel des études traite des suspensions diluées ou semi-diluées et que d'autre part les résultats obtenus présentent des différences parfois importantes, sans que les raisons de ces disparités soient claires. Par ailleurs, bien souvent, les études expérimentales de rhéologie qui sont présentées s'intéressent uniquement à la viscosité tandis que les contraintes normales anisotropes qui apparaissent quand une suspension de fibres est cisailées demeurent assez peu étudiées.

L'objectif de ce travail est de présenter une étude rhéologique aussi complète que possible des suspensions de fibres. Nous avons souhaité étudier l'effet de la concentration et du rapport d'aspect des fibres sur les viscosités stationnaire et transitoire ainsi que sur les deux différences de contraintes normales pour des suspensions de fibres, pour une gamme de concentrations allant du régime dilué jusqu'au régime (très) concentré. Il a fallu pour cela mettre au point de nouvelles méthodes expérimentales en mesure de fournir des données fiables sur le comportement de la viscosité (exclusion de l'effet du confinement, attention particulière à l'établissement du régime stationnaire) et sur les deux différences de contraintes normales qui ont été mesurées simultanément. Chaque fois que cela a été possible, nous avons tenté de mesurer l'influence des conditions expérimentales comme le confinement, la flexibilité des fibres ou leur propension à s'agréger sur les mesures rhéologiques. A plusieurs occasions, cette étude précise des paramètres expérimentaux nous a permis de comprendre certaines des différences observées parmi les résultats de la littérature. Enfin, nous avons voulu confronter nos mesures expérimentales et en particulier les lois de comportement à un modèle théorique qui relie les interactions entre fibres au comportement rhéofluidifiant des suspensions de fibres.

Dans ce manuscrit, nous présenterons les résultats des études expérimentales et théoriques que nous avons menées dans le but de contribuer à la connaissance des propriétés rhéologiques des suspensions, essentiellement dans les régimes de concentration semi-dilué et concentré où les interactions à courte portée (lubrification et force de contact solide) entre fibres jouent un rôle important. Après avoir introduit, dans le premier chapitre, les notions de rhéologie dont nous avons eu besoin pour mener à bien notre étude, nous donnons, dans le second chapitre, un état de l'art des connaissances en rhéologie des suspensions de fibres où l'on s'aperçoit que les régimes concentrés ont été rarement étudiés d'un point de vue expérimental et peu traités par les modèles théoriques. On observe également que peu de résultats ont été obtenus sur la détermination des deux différences de contrainte normale.

Le **chapitre 3** est consacré à la détermination expérimentale de la loi de comportement qui lie la contrainte de cisaillement au taux de cisaillement pour des suspensions de fibres de plusieurs rapports d'aspect et à diverses concentrations. Le comportement rhéofluidifiant des suspensions est mis en évidence et la dépendance du plateau de viscosité à grand taux de cisaillement en fonction de la concentration et du rapport d'aspect des fibres est discutée. Le **chapitre 4** est dédié à l'étude de la réponse transitoire de la viscosité après inversion du sens de l'écoulement, cette étude met en évidence d'un point de vue macroscopique l'importance de l'orientation des fibres dans la détermination de la viscosité.

Le **chapitre 5** est consacré à l'étude théorique de la rhéofluidification dans les suspensions de fibres. Nous présenterons ce chapitre sous la forme de deux articles. L'un est accepté pour publication dans *Journal of Fluid Mechanics* et l'autre, soumis à *Journal of Rheology*. Les deux modèles proposés expliquent la rhéofluidification par une compétition entre les forces adhésives entre fibres et les forces hydrodynamiques. L'apport du second modèle par rapport au premier est de considérer que les forces d'adhésion sont responsables d'une floculation de la suspension. Dans chacun des cas, les prédictions seront confrontées à des résultats expérimentaux.

Enfin, le **chapitre 6** traite de l'étude des différences de contraintes normales dans les suspensions de fibres. Grâce à un dispositif expérimental inédit, nous avons été en mesure de mesurer séparément les deux différences de contrainte normale. Les résultats obtenus sont présentés sous forme d'un article récemment publié dans *Journal of Rheology*. Nous présen-

tons ensuite quelques résultats préliminaires sur les contraintes normales particulières et la mise en évidence de phénomènes de migration induite par un écoulement dans les suspensions de fibres.

Rhéologie des fluides complexes :

Généralité

1.1 Introduction

La Rhéologieⁱ est la science qui étudie l'écoulement de la matière sous l'effet des contraintes qui lui sont appliquées. Elle intervient dans des domaines très variés qui s'étendent de l'industrie (ciment, peinture, plasturgie), à la géologie (coulée de lave et de boue, avalanche de neige) en passant par la cosmétique (shampooing, gel, crème de soin, ...).

L'enjeu majeur en industrie est d'être capable de prédire les caractéristiques et les propriétés du matériau. La rhéologie intervient alors dans le but d'améliorer la préparation ou la mise en oeuvre de ces matériaux. Pour comprendre leur comportement en écoulement, on a recours à des matériaux modèles tels que les suspensions de sphères ou de fibres, à des émulsions ou encore à des milieux granulaires. On tente alors d'établir des lois de comportement dont il convient de tenir compte dans les procédés industriels.

Dans ce chapitre, nous rappellerons quelques éléments en hydrodynamique pour le calcul des tenseurs de contrainte et de déformation en écoulement de cisaillement simple ; nous introduirons ensuite la viscosité et les deux différences de contraintes normales qui sont les fonctions matérielles d'un fluide complexe. Ensuite, nous discuterons les notions de bases de rhéologie et présenterons une classification des fluides complexes en fonction de leurs lois de comportement. Nous passerons alors en revue les différentes géométries de rhéomètres et aborderons quelques principes de rhéométrie et procédures expérimentales pour les mesures des fonctions matérielles d'un fluide. Nous terminerons en présentant quelques artefacts de mesure et en discutant des méthodes à suivre pour les éviter.

i. Du Grec rheo : terme inventé par Eugene C. Bingham et Markus Reiner en 1929

1.2 Écoulement en cisaillement simple

Considérons un fluide placé entre deux plaques parallèles séparées d'une distance h suivant la direction Oy . On soumet la plaque du haut à une force de cisaillement, F . Le plan supérieur est animé d'un mouvement de translation de vitesse constante v_0 suivant la direction Ox , le plan inférieur est maintenu fixe. La figure 1.1 montre une représentation schématique de l'écoulement. On pose les hypothèses suivantes :

- L'écoulement est laminaire (non turbulent).
- Le fluide est assimilé à une superposition de couches d'épaisseur infinitésimale. Le mouvement de la plaque supérieure entraîne le mouvement des couches du fluide qui glissent les unes sur les autres avec une vitesse $v_x(y)$ qui varie de $v_{\text{plaque}}(0) = 0$ à $v_{\text{plaque}}(h) = v_0$ dans la direction Oy , est égale à $v_x(y) = v_0 \frac{y}{h}$ [Guyon *et al.* 1999]. Ce profil correspond à la condition de non glissement au parois.

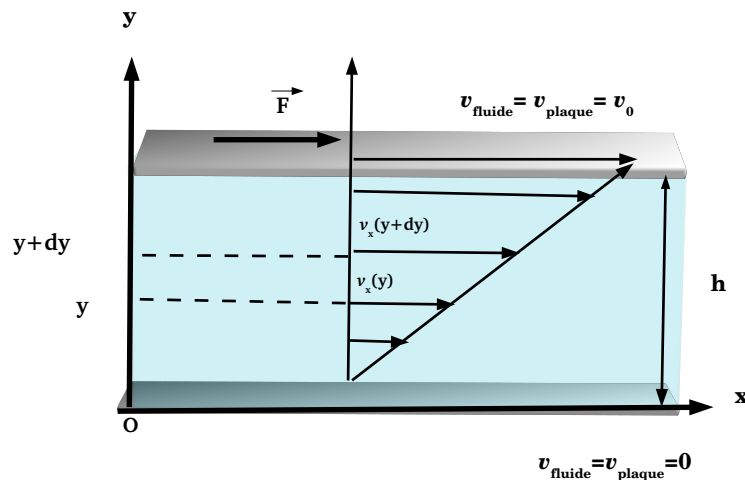


FIG. 1.1 – Profil de vitesse pour un écoulement de cisaillement simple entre deux plans parallèles. Le plan supérieur est en mouvement à la vitesse v_0 . Le plan inférieur est maintenu fixe.

1.2.1 Tenseur des contraintes

Soit un élément de volume dV d'un fluide en mouvement. La cohésion du liquide est assurée par les forces surfaciques à courtes portées dont l'origine est dans les interactions

moléculaires qui agissent sur un élément de surface dS de normale unité \vec{n} , cette force \vec{F} est proportionnelle à la surface dS et s'écrit :

$$d\vec{F} = \bar{\bar{\Sigma}} \cdot \vec{n} dS \quad (1.1)$$

où $\bar{\bar{\Sigma}}$ est appelé le tenseur des contraintes dont les composantes sont représentées sur la figure 1.2. Les composantes de $\bar{\bar{\Sigma}}$ sont homogènes à une pression et s'expriment en Pa . $\bar{\bar{\Sigma}}$ est un tenseur d'ordre 2, symétrique en raison de l'équilibre des forces agissant sur une même surface de l'élément dv ; $\Sigma_{ij} = \Sigma_{ji}$ et se décompose comme suit :

$$\Sigma_{ij} = -PI_{ij} + \tau_{ij} \quad (1.2)$$

dans un système de coordonnées cartésiennes ($i, j \sim 1, 2, 3$), où 1 est la direction de la vitesse de l'écoulement, 2 est la direction du gradient de vitesse et 3 est la direction de vorticit . La composante du tenseur Σ_{ij} représente la force suivant i qui s'exerce sur une surface unitaire, dont la normale est orient e vers j , $\bar{\bar{I}}$ est le tenseur unit .

Le terme, $-PI_{ij}$, est le terme diagonal, qui d crit la partie isotrope du tenseur, et P est la pression moyenne dans le fluide qui est  gale   :

$$P = -\frac{1}{3} trs(\Sigma_{ii}) = -\frac{\Sigma_{11} + \Sigma_{22} + \Sigma_{33}}{3} \quad (1.3)$$

avec un signe ($-$) pour designer que le fluide est en compression. Le terme τ_{ij} est le terme d viateur, c'est la contrainte responsable du mouvement du fluide. Dans le cas d'un cisaillement simple comme d crit ci dessus, le terme d viateur a deux composantes non nulles, $\tau_{12} \simeq \tau_{21}$ et le tenseur des contraintes,  quation (1.2) se r duit   :

$$\bar{\bar{\Sigma}} = \begin{pmatrix} -P + \tau_{11} & \tau_{12} & 0 \\ \tau_{12} & -P + \tau_{22} & 0 \\ 0 & 0 & -P + \tau_{33} \end{pmatrix} \quad (1.4)$$

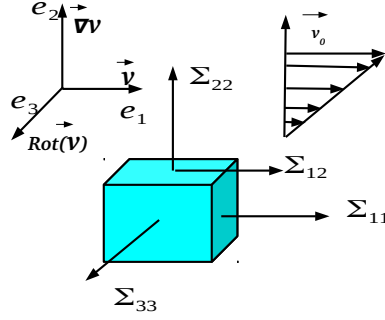


FIG. 1.2 – Décomposition du tenseur des contraintes dans le cas d'un cisaillement simple. Les termes diagonaux Σ_{11} , Σ_{22} , Σ_{33} représentent les composantes normales du tenseur, et le terme déviateur $\Sigma_{12} = \Sigma_{21}$ représente la contrainte tangentielle.

1.2.2 Déformation de cisaillement

Lorsque on soumet le fluide à une contrainte de cisaillement, le fluide subit une déformation. On définit le tenseur de déformation d'ordre 2 comme suit (sans dimension) :

$$\bar{\epsilon} = \begin{pmatrix} \epsilon_{11} & \epsilon_{12} & \epsilon_{13} \\ \epsilon_{21} & \epsilon_{22} & \epsilon_{23} \\ \epsilon_{31} & \epsilon_{32} & \epsilon_{33} \end{pmatrix} \quad (1.5)$$

Dans le cas d'un écoulement de cisaillement simple laminaire, figure 1.1, un volume élémentaire du fluide se déplace d'une distance ξ_1 avec une vitesse v_1 suivant la direction de e_1 , le déplacement ξ_1 dépend uniquement de e_2 . On définit alors la déformation comme étant la tangente de l'angle de déformation (figure 1.3) :

$$\epsilon_{12} = \epsilon_{21} = \gamma = \frac{d\xi_1}{dx_2} \quad (1.6)$$

$$\epsilon_{ij} = 1/2 \left(\frac{d\xi_i}{dx_j} + \frac{d\xi_j}{dx_i} \right) \quad (1.7)$$

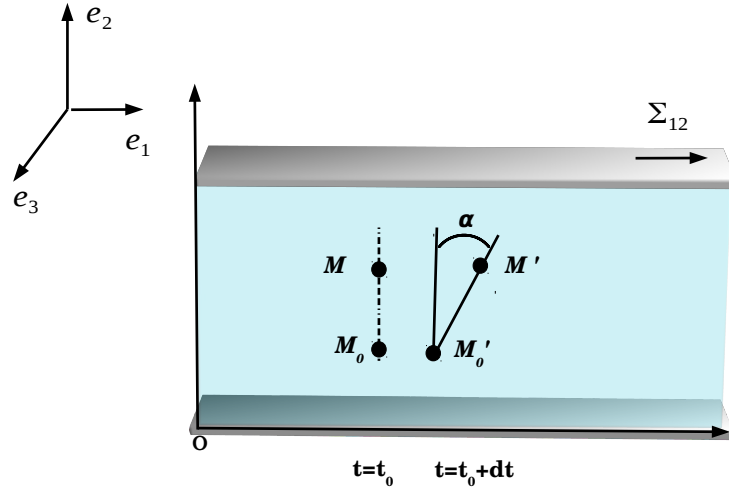


FIG. 1.3 – Représentation schématique d'une déformation dans le cas d'un écoulement en cisaillement simple.

1.2.3 Vitesse de déformation

La vitesse de déformation est définie comme étant la dérivée par rapport au temps de la déformation, et est notée $\dot{\gamma}$:

$$\dot{\gamma} = \frac{d\gamma}{dt} = \frac{d}{dt} \frac{d\xi_1}{dx_2} = \frac{d}{dx_2} \frac{d\xi_1}{dt} = \frac{dv_1}{dx_2} \quad (1.8)$$

Dans le cas général d'un écoulement tridimensionnel, on introduit le tenseur de gradient de vitesse, $\bar{D}_{ij} = \frac{\partial v_i}{\partial x_j}$, qui peut être décomposé en partie symétrique et partie antisymétrique comme suit :

$$D_{ij} = \frac{\partial v_i}{\partial x_j} = 1/2 \left(\frac{\partial v_i}{\partial x_j} + \frac{\partial v_j}{\partial x_i} \right) + 1/2 \left(\frac{\partial v_i}{\partial x_j} - \frac{\partial v_j}{\partial x_i} \right) \quad (1.9)$$

où, on note :

$$e_{ij} = 1/2 \left(\frac{\partial v_i}{\partial x_j} + \frac{\partial v_j}{\partial x_i} \right) \quad (1.10)$$

$$\omega_{ij} = 1/2 \left(\frac{\partial v_i}{\partial x_j} - \frac{\partial v_j}{\partial x_i} \right) \quad (1.11)$$

$$D_{ij} = e_{ij} + \omega_{ij} \quad (1.12)$$

Le tenseur \bar{e} , est appelé tenseur du taux de déformation, les composantes e_{ij} décrivent une déformation pure, et le tenseur $\bar{\omega}$, est appelé tenseur de vorticit , les composantes de la partie antisym trique du tenseur, ω_{ij} , d crivent la rotation en bloc des  l ments. Dans le cas d'un cisaillement simple tel que pr sent  ci-dessus, le gradient de vitesse a une seule composante non nulle :

$$D_{12} = \frac{\partial v_1}{\partial x_2} = \begin{pmatrix} 0 & \dot{\gamma} & 0 \\ 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} 0 & \dot{\gamma}/2 & 0 \\ \dot{\gamma}/2 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} + \begin{pmatrix} 0 & \dot{\gamma}/2 & 0 \\ -\dot{\gamma}/2 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \quad (1.13)$$

Ainsi, le taux de cisaillement $\dot{\gamma}$ tel que d fini dans l' quation (1.8) n'est autre que la norme du tenseur du taux de d formation et not  :

$$\dot{\gamma} = \sqrt{2\bar{e} : \bar{e}} \quad (1.14)$$

Le taux de cisaillement $\dot{\gamma}$ a la dimension de l'inverse du temps (s^{-1}) et repr sente le temps caract ristique de l' coulement, c'est   dire le temps n cessaire pour acqu rir une d formation de grandeur unit .

1.2.4 Lois de conservation

 quation de Conservation de la masse :

Pour un fluide en  coulement de masse M et de vitesse \vec{v} , on suppose qu'il n'existe pas de m canisme de cr ation ou de perte de masse. La masse  tant conserv e dans le temps, $\frac{dM}{dt} = 0$. Dans un volume V quelconque on obtient :

$$\frac{d}{dt}(M) = \frac{d}{dt} \int_V \rho dV = 0 \quad (1.15)$$

O  ρ est la densit  du fluide, ce qui donne :

$$\int_V \left(\frac{\partial \rho}{\partial t} + \text{div}(\rho \vec{v}) \right) dV = 0 \quad (1.16)$$

1.3. Comportement des fluides sous l'effet d'une contrainte de cisaillement 11

On obtient l'équation de continuité :

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} + \operatorname{div}(\rho \vec{v}) = 0 \quad (1.17)$$

L'équation de continuité devient :

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} + \vec{v} \cdot \vec{\nabla} \rho + \rho \operatorname{div}(\vec{v}) = 0 \quad (1.18)$$

Pour un fluide incompressible, pour lequel, $\rho = cst$, $\frac{\partial \rho}{\partial t} = 0$, et $\vec{\nabla} \rho = 0$, l'équation de conservation de la masse prend la forme simple suivante :

$$\operatorname{div}(\vec{v}) = 0 \quad (1.19)$$

Cette équation est valable pour n'importe quel fluide incompressible.

Conservation de la quantité de mouvement :

Pour un fluide en écoulement, l'équation de conservation de la quantité de mouvement s'écrit sous sa forme générale :

$$\rho \frac{\partial \vec{v}}{\partial t} + (\rho \vec{v} \cdot \vec{\nabla}) \vec{v} = \vec{\nabla} \cdot \vec{\Sigma} + \rho \vec{g} \quad (1.20)$$

Pour un écoulement stationnaire ($\frac{\partial \vec{v}}{\partial t} = 0$), et en absence de forces externe $\rho \vec{g} = \vec{0}$, l'équation de conservation de mouvement devient :

$$-(\rho \vec{v} \cdot \vec{\nabla}) \vec{v} + \vec{\nabla} \cdot \vec{\Sigma} = \vec{0} \quad (1.21)$$

1.3 Comportement des fluides sous l'effet d'une contrainte de cisaillement

Considérons l'écoulement de cisaillement simple défini dans la section (1.2), i.e. un fluide cisailé entre deux plans parallèles. Pour que ce matériau s'écoule, il faudra exercer une force externe F sur la plaque supérieure afin de surmonter la résistance du matériau. La résistance du matériau est due à la présence de forces visqueuses au sein du matériau et est définie par une grandeur physique intrinsèque au matériau qui est la viscosité notée η . Rappelant

le terme déviateur du tenseur de contrainte dans l'équation (1.2), la contrainte tangentielle est définie comme :

$$\Sigma_{12} = \frac{F}{S} \quad (1.22)$$

où S est l'aire de la surface de la plaque. La contrainte tangentielle est reliée à la vitesse de cisaillement $\dot{\gamma}$ (équation 1.8) :

$$\Sigma_{12} = f(\dot{\gamma}) \quad (1.23)$$

Cette relation est appelée loi de comportement et varie d'un matériau à un autre. La viscosité η d'un matériau est définie comme le rapport de la contrainte de cisaillement, Σ_{12} au taux de cisaillement $\dot{\gamma}$, et peut ne pas être une constante, mais dépend de $\dot{\gamma}$, on parle alors de fluides non newtoniens. La viscosité peut aussi dépendre du temps ou de l'histoire du matériau. C'est le cas de fluides thixotropes dont on ne parlera pas dans la suite.

1.3.1 Comportement Newtonien

Un matériau est dit newtonien si la loi de comportement, équation (1.23) est une relation linéaire (loi de Newton) :

$$\bar{\tau} = 2\eta \cdot \bar{e} \quad , \text{ avec } \eta = \text{cste} \quad (1.24)$$

Dans le cas du fluide Newtonien, le tenseur des contraintes défini dans l'équation (1.4) en cisaillement simple s'écrit :

$$\bar{\Sigma} = \begin{pmatrix} -P & \eta\dot{\gamma} & 0 \\ \eta\dot{\gamma} & -P & 0 \\ 0 & 0 & -P \end{pmatrix} \quad (1.25)$$

où le coefficient de proportionnalité, η , est la viscosité dynamique du matériau appelée aussi viscosité de cisaillement. La viscosité a donc la dimension du produit d'une pression par un temps, et s'exprime en $Pa.s$ dans le système SI, ou en Poise ($1Poise = 0.1Pa.s$) dans le système $C.G.S$. La viscosité pour un fluide newtonien ne dépend donc ni de la contrainte appliquée Σ_{12} , ni de la vitesse de cisaillement $\dot{\gamma}$. En absence de forces externes $\rho\vec{g} = \vec{0}$, l'équation (1.20) de conservation de quantité de mouvement pour un fluide newtonien de-

1.3. Comportement des fluides sous l'effet d'une contrainte de cisaillement 13

vient l'équation de Navier-Stokes :

$$\rho \frac{\partial \vec{v}}{\partial t} + (\rho \vec{v} \cdot \vec{\nabla}) \vec{v} = -\vec{\nabla} P + \eta \Delta \vec{v} \quad (1.26)$$

Le terme non linéaire $(\rho \vec{v} \cdot \vec{\nabla}) \vec{v}$ désigne le terme inertiel dans l'écoulement, et le terme $\eta \Delta \vec{v}$ représente le terme visqueux. Pour une échelle h et une vitesse v_0 caractéristique de l'écoulement on peut évaluer l'ordre de grandeur de ces deux termes :

$$|\rho(\vec{v} \cdot \vec{\nabla})\vec{v}| \simeq \frac{\rho v_0^2}{h} \quad , \quad |\eta \Delta \vec{v}| \simeq \eta \frac{v_0}{h^2} \quad (1.27)$$

On peut construire un nombre sans dimension noté R_e qui est le rapport des termes inertiels sur les termes visqueux :

$$R_e = \frac{\rho v_0^2}{\eta v_0} = \frac{\rho v_0 h}{\eta} \quad (1.28)$$

Ce rapport définit *le nombre de Reynolds* (sans dimension), et décrit le régime d'écoulement. Dans le cas d'un écoulement en régime turbulent, c'est le terme inertiel qui domine et $R_e > R_{e,cr}$. Où $R_{e,cr}$, est le nombre de Reynolds critique, qui détermine la transition entre les deux régimes, [Tillmark & Alfredsson 1992], alors qu'en régime laminaire c'est le terme visqueux qui domine et $R_e \ll R_{e,cr}$. Notons que $R_e \ll R_{e,cr}$ dépend de la géométrie de l'écoulement, par exemple pour un écoulement à travers un tube, $R_{e,cr} \approx 2000$, pour un écoulement en cisaillement simple, $R_{e,cr} \approx 360$, alors que pour un écoulement autour d'une sphere $R_{e,cr} \approx 1$. Dans notre travail, on s'intéressera seulement aux écoulements à faible nombre de Reynolds. Pour un écoulement stationnaire ($\frac{\partial \vec{v}}{\partial t} = 0$) et à faible nombre de Reynolds, l'équation (1.26) devient l'équation de Stokes :

$$\vec{\nabla} \cdot \vec{\Sigma} = -\vec{\nabla} P + \eta \Delta \vec{v} = \vec{0} \quad (1.29)$$

1.3.2 Quelques comportements non-Newtoniens

C'est le comportement des fluides dit complexes. La loi de comportement (équation (1.23)) est une relation non linéaire entre la contrainte de cisaillement Σ_{12} et le taux de cisaillement $\dot{\gamma}$. La viscosité n'est alors plus indépendante du taux de cisaillement. Pour ces

fluides on définit une viscosité apparente η_{app} pour un Σ_{12} et $\dot{\gamma}$ donnés :

$$\eta_{app} = \frac{\Sigma}{\dot{\gamma}} \quad (1.30)$$

On peut classer les comportements non newtoniens des fluides en trois grandes catégories :

– **Fluides rhéofluidifiants :**

Un fluide est dit rhéofluidifiant, si sa viscosité apparente η_{app} décroît avec le taux de cisaillement. Ce comportement peut être dû à une destruction de la microstructure du fluide. Exemples : le shampoing, la plupart des suspensions de sphères ou de fibres concentrées. Dans ce travail nous allons nous intéresser à ce comportement dans le cas des suspensions de fibres et tenter de donner une explication à son origine. C'est l'objectif de l'étude décrite dans le chapitre 5 de ce manuscrit.

– **Fluides rhéoépaississants :**

Un fluide rhéo-épaississant a un comportement opposé, sa viscosité apparente η_{app} croît lorsque le taux de cisaillement augmente. (Exemple : la maïzena)

– **Fluides à seuil :**

Parmi les fluides rhéofluidifiants, certains ne s'écoulent que lorsque la contrainte appliquée dépasse une contrainte critique $\Sigma_{12} = \tau_0$ appelée contrainte seuil, (exemple la pâte de dentifrice, mousse à raser, boues de forage).

Les deux lois de conservation définies dans la section ci dessus (section (1.2.4)) restent valables pour un fluide non-newtonien. En l'absence de la connaissance de loi de comportement $\Sigma_{12} = f(\dot{\gamma})$, l'équation de conservation de la quantité de mouvement, équation (1.21) pour un écoulement stationnaire ($\frac{\partial \vec{v}}{\partial t} = 0$) s'écrit :

$$\vec{\nabla} \cdot \bar{\bar{\Sigma}} = -\vec{\nabla} P + div(\bar{\bar{\tau}}) = \vec{0} \quad (1.31)$$

Il suffit donc d'établir une loi de comportement pour le fluide afin de résoudre l'équation de mouvement associée.

Une autre classe de fluide non-newtoniens concerne les fluides pour lesquels, des contraintes normales anisotropes apparaissent lorsqu'ils sont soumis à un cisaillement, exemples : (les suspensions de particules, solutions de polymères...).

1.3.3 Modèles rhéologiques

La courbe décrivant Σ_{12} en fonction de $\dot{\gamma}$ est appelée *rhéogramme* du matériau ou encore courbe d'écoulement. Un certain nombre de modèles plus ou moins compliqués peuvent être trouvés dans la littérature. Nous en citons quelques uns qui nous seront utiles pour la suite du présent travail.

– **Modèles sans contrainte seuil :**

Loi d'Ostwald-de-Waele (1925) :

C'est une loi phénoménologique très souvent utilisée pour modéliser le comportement des fluides non newtoniens. La contrainte de cisaillement Σ_{12} est reliée au taux de cisaillement $\dot{\gamma}$ par une loi de puissance et s'écrit :

$$\Sigma_{12} = K\dot{\gamma}^m \quad (1.32)$$

La viscosité a pour expression :

$$\eta = K\dot{\gamma}^{m-1} \quad (1.33)$$

où K est la consistance du fluide et $m > 0$ est l'indice de fluidification. Cette loi est utilisée pour capturer aussi bien la rhéofluidification du fluide lorsque $0 < m < 1$ (η décroît avec $\dot{\gamma}$) que le rhéoépaississant lorsque $m > 1$ (η croît avec $\dot{\gamma}$). Pour $m = 1$ on retrouve un comportement newtonien. Dans le cas où $m < 1$, cette loi en puissance conduit à une viscosité infinie lorsque, $\dot{\gamma}$ tend vers zero. En revanche lorsque $\dot{\gamma}$ tends vers l'infini, la viscosité tend vers une valeur nulle. Il est donc raisonnable de rajouter une viscosité constante à l'équation (1.33) afin d'éviter d'avoir une valeur nulle de viscosité, ce qui n'est pas physique car il y a toujours une dissipation visqueuse non nulle.

Pour exploiter les rhéogrammes expérimentaux de ce type de fluides il est plus judicieux de représenter les courbes en échelle *log – log*, cela donne une droite dont la pente est l'indice de fluidification m .

– **Modèles avec contrainte seuil :**

Modèle de Bingham (1922) :

Lorsqu'on soumet un fluide de Bingham à une contrainte de cisaillement, il se comporte comme un solide au dessous d'une contrainte critique τ_0 , au delà de cette contrainte, l'écoulement s'effectue sous l'effet de la contrainte effective $\Sigma_{12} - \tau_0$. La loi de comportement est une relation linéaire entre la contrainte effective $\Sigma_{12} - \tau_0$ et le taux de cisaillement $\dot{\gamma}$ (comportement newtonien) :

$$\Sigma_{12} = \tau_0 + \eta_{pl}\dot{\gamma} \quad (1.34)$$

où η_{pl} est la viscosité plastique.

Modèle de Herschel-Bulkley (1926) :

C'est un modèle généralisé de fluides présentant des comportement non-linéaires dans la relation entre contrainte et taux de déformation. Ce modèle s'exprime par :

$$\Sigma_{12} = \tau_0 + K\dot{\gamma}^m \quad (1.35)$$

où τ_0 est la contrainte seuil, K , la consistance du fluide et m , l'indice de fluidification.

Lorsque $m = 1$ on retrouve le fluide de *Bingham*, et lorsque $\tau_0 = 0$, on retrouve le fluide *d'Ostwald-de-Waele*

La Figure 1.4 représente les rhéogrammes de lois de comportement $\Sigma_{12} = f(\dot{\gamma})$ pour les modèles décrit ci dessus.

1.3.4 Fonctions matérielles d'un fluide

Dans le cas de certains fluides, l'écoulement peut induire une anisotropie des contraintes normales due à l'altération de la microstructure. On introduit alors deux grandeurs qui sont la première et la deuxième différence de contraintes normales N_1 et N_2 respectivement qui s'écrivent :

$$N_1 = \Sigma_{11} - \Sigma_{22} \quad (1.36)$$

$$N_2 = \Sigma_{22} - \Sigma_{33} \quad (1.37)$$

La relation entre N_1 , N_2 et le taux de cisaillement ou la contrainte de cisaillement dépend du type du matériau considéré. Ainsi, pour des solutions polymères, N_1 et N_2 présentent

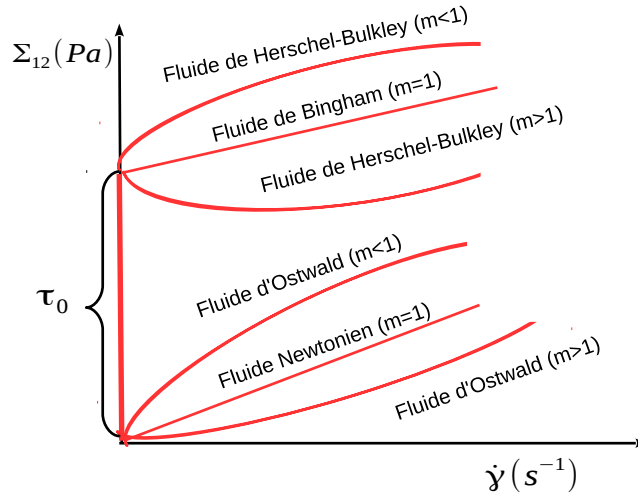


FIG. 1.4 – Rhéogrammes des différentes loi de comportement de fluides complexes. $\Sigma_{21} = f(\dot{\gamma})$.

une dépendance quadratique en Σ_{12} , dans le cas des suspensions de sphères ou de fibres, les différences de contraintes normales sont proportionnelles aux contraintes tangentielles :

$$N_1(\dot{\gamma}) = -\alpha_1 \Sigma_{12} \quad , \quad N_2(\dot{\gamma}) = -\alpha_2 \Sigma_{12} \quad (1.38)$$

où α_1 et α_2 sont les deux coefficients de contraintes normales.

On appelle η , α_1 et α_2 , les fonctions matérielles car elles caractérisent le comportement rhéologique du fluide en écoulement. Dans le chapitre 6, nous présenterons le dispositif expérimental développé dans notre équipe de recherche pour effectuer des mesures simultanées de η , N_1 et N_2 et présenterons les résultats de cette étude.

1.4 Essais rhéométriques

En rhéométrie, il existe différentes procédures d'essai. Celles-ci doivent être bien ciblées pour analyser le comportement rhéologique du matériau étudié, la réponse des matériaux aux différentes procédures donne des informations sur leur propriétés et caractéristiques. Dans cette partie nous en citerons quelques unes qui nous seront utiles par la suite.

– **Essai de rampe d'écoulement :**

L'essai de rampe d'écoulement consiste à appliquer une contrainte imposée, qui augmente ou diminue au cours du temps. Cet essai permet d'obtenir la courbe d'écoulement $\Sigma_{12} = f(\dot{\gamma})$, cependant sans avoir l'assurance d'atteindre les conditions d'équilibre entre deux contraintes successives. Cette procédure est plutôt adaptée pour les fluides newtoniens puisque la viscosité η ne dépend pas du taux de cisaillement $\dot{\gamma}$ et donc l'équilibre est atteint très rapidement.

– **Essai de palier de contrainte :**

L'essai de palier de contrainte consiste à appliquer des échelons de contraintes τ_{set} d'intensité croissante ou décroissante pendant un certain temps t suffisamment long pour atteindre l'état stationnaire. La courbe d'écoulement $\Sigma_{12} = f(\dot{\gamma})$ ainsi que la viscosité stationnaire sont déterminées à partir des points d'équilibre $(\Sigma_{12_{set}}, \dot{\gamma})$ de chaque palier. En général, on applique des paliers de contraintes variant dans une gamme importante de façon à obtenir le comportement rhéologique du matériau étudié sur une large plage de taux de cisaillement.

– **Essai de fluage-recouvrance :**

L'essai de fluage consiste à appliquer un créneau de contrainte τ_{set} à un instant t_0 et mesurer la réponse de la déformation $\gamma(t)$ qui en résulte au cours du temps. Pour un matériau linéaire, la déformation est liée à la contrainte par :

$$\gamma(t) = J(t)\tau_{set} \quad (1.39)$$

où $J(t)$ est la complaisance du matériau. La recouvrance correspond à la variation de la déformation après suppression de la contrainte. La réponse de la déformation à une contrainte appliquée ou supprimée au cours du temps dépend de la nature du matériau étudié, cette procédure est couramment utilisée pour mettre en évidence les propriétés des matériaux visco-élastiques. La figure 1.5 illustre différentes réponses de déformation au cours du temps pour quelques types de matériaux.

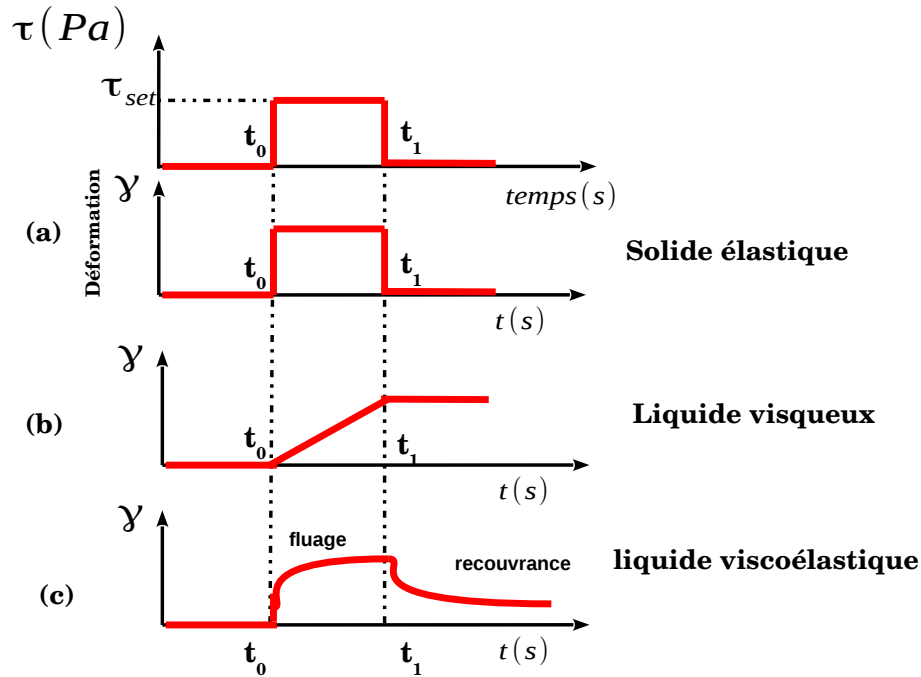


FIG. 1.5 – Exemple de réponses de la déformation en fluage, pour différents matériaux.

1.5 Mesures expérimentales des fonctions matérielles : η , N_1 et N_2

Il existe différents types de rhéomètres : rhéomètres à écoulement élongationnel et rhéomètre à écoulement de cisaillement simple. Dans le présent travail, nous ne nous sommes intéressés qu'aux seconds qui peuvent être classés en deux catégories : rhéomètres où l'écoulement de cisaillement est induit par une différence de pression à travers un canal fermé (écoulement de Poiseuille), et ceux où l'écoulement est induit par le mouvement d'une paroi solide. Ils peuvent être équipés de plusieurs géométries d'écoulement. Voir (figure 1.6). Nous décrirons maintenant quelques dispositifs expérimentaux, permettant de mesurer les fonctions matérielles, η , N_1 et N_2 .

1.5.1 Rhéométrie en Couette cylindrique

Dans un rhéomètre de Couette cylindrique, illustré sur la figure 1.7, le matériau est placé entre deux cylindres coaxiaux de rayon R_1 et R_2 avec $R_1 < R_2$ et de hauteur H séparés

		Coordinates		
		x_1	x_2	x_3
Drag Flows:				
Sliding plates		x	y	z
Concentric cylinders (Couette flow)		θ	r	z
Cone and plate		ψ	θ	r
Parallel disks (torsional flow)		θ	z	r
Pressure Flows:				
Capillary (Poiseuille flow)		x	r	θ
Slit flow		x	y	z
Axial annulus flow		x	r	θ

FIG. 1.6 – Différents types de géométries induisant un écoulement en cisaillement. Figure extraite de [Larson 2001]

d'un entrefer, $r = R_2 - R_1$. Le cylindre externe est maintenu fixe. On impose un couple Γ au cylindre interne qui tourne avec une vitesse angulaire Ω . Dans cette géométrie, le taux de cisaillement $\dot{\gamma}(r)$ s'exprime par :

$$\dot{\gamma}(r) = 2\Omega \frac{R_1^2 R_2^2}{R_1^2 - R_2^2} \cdot \frac{1}{r^2} \quad (1.40)$$

La viscosité η a pour expression :

$$\eta = \frac{\Gamma}{4\pi\Omega H} \frac{R_1^2 - R_2^2}{R_1^2 R_2^2} \quad (1.41)$$

Et les différences de contraintes normales peuvent être obtenues par la détermination de la contrainte radiale au bord du cylindre externe $r = R_2$ qui donne une combinaison linéaire de N_1 et N_2 , [Singh & Nott 2003] :

$$\Sigma_{rr}(R_2) = \beta \frac{N_1}{2} + (1 + \beta)N_2 \quad (1.42)$$

où β est une constante géométrique qui ne dépend que du rapport des rayons des deux cylindres.

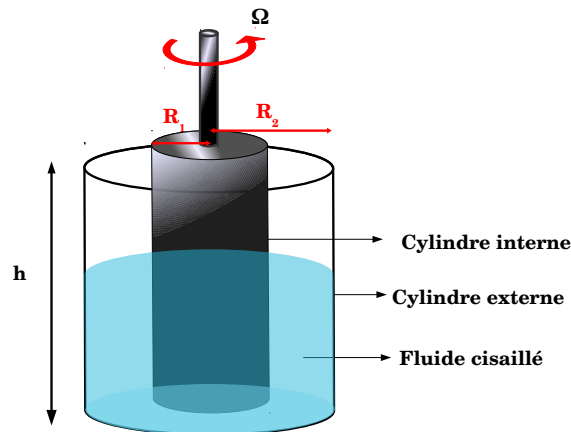


FIG. 1.7 – Rhéomètre à géométrie couette cylindrique

1.5.2 Rhéométrie en cône-plan

Dans une géométrie cône-plan, le matériau est placé entre un plan et un cône de rayon R faisant un angle assez petit ($\alpha < 5^\circ$) avec le plan, voir figure (1.8). On impose un couple Γ au cône qui tourne avec une vitesse angulaire Ω . La contrainte de cisaillement Σ_{12} et le taux de cisaillement sont constants dans tout l'entrefer. Le gradient de vitesse est donné par :

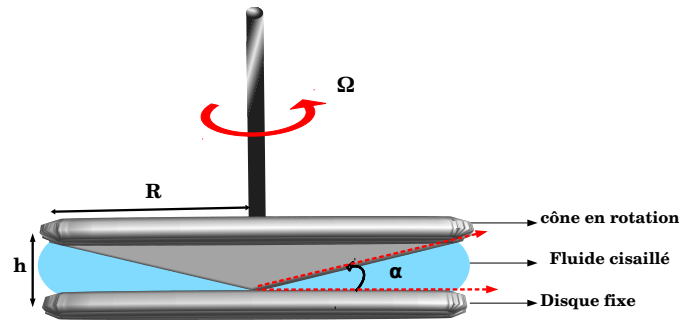


FIG. 1.8 – Rhéomètre à géométrie cône-plan.

$$\dot{\gamma} = \frac{\Omega}{\alpha} \quad (1.43)$$

$$\Sigma_{12} = \frac{3\Gamma}{2\pi R^3} \quad (1.44)$$

La viscosité est donnée par :

$$\eta = \frac{3\Gamma\alpha}{2\pi\Omega R^3} \quad (1.45)$$

Cette géométrie permet de mesurer uniquement N_1 qui est donnée par :

$$N_1 = \frac{2F}{\pi R^2} \quad (1.46)$$

où F est la force totale exercée sur le cône (ou le plan).

1.5.3 Rhéométrie en plan-plan

Dans cette géométrie le matériau est placé entre deux disques parallèles coaxiaux de rayon R séparés par un entrefer h , tel que représenté sur la figure 1.9. On applique un couple Γ au disque supérieur qui tourne à une vitesse constante Ω , le matériau subit un écoulement torsionnel de vitesse : $v(\theta) = \frac{z}{h}\Omega$. Dans cette géométrie, le taux de cisaillement s'écrit :

$$\dot{\gamma}(r) = \frac{\Omega r}{h} \quad (1.47)$$

On obtient les fonctions matérielles, [Bird *et al.* 1977] :

$$\eta(\dot{\gamma}_R) = \frac{\Gamma}{2\pi R^3 \dot{\gamma}_R} \left(3 + \frac{d \ln(\Gamma/2\pi R^3)}{d \ln \dot{\gamma}_R} \right) \quad (1.48)$$

qui représente la viscosité, et une combinaison des différences de contraintes normales :

$$N_1(\dot{\gamma}_R) - N_2(\dot{\gamma}_R) = \frac{F}{\pi R^3} \left(1 + \frac{1}{2} \frac{d \ln F}{d \ln \dot{\gamma}_R} \right) \quad (1.49)$$

où F est la force normale totale exercée sur les disques et $\dot{\gamma}_R$, le taux de cisaillement au

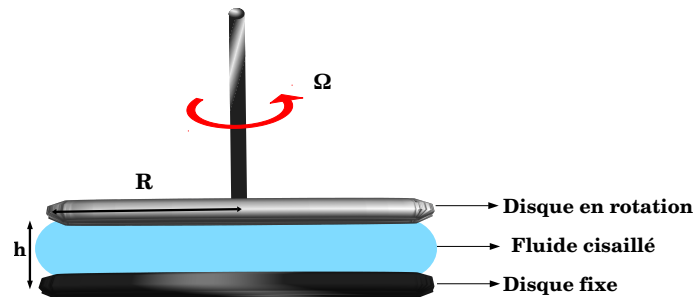


FIG. 1.9 – Rhéomètre à géométrie plan-plan.

bord des disques, ($r = R$).

Nous avons passé en revue différents types de techniques de rhéométrie, avec des géométries différentes dans lesquelles les matériaux sont confinés entre deux surface solides. Il existe

cependant d'autres techniques de mesure, où le matériau en écoulement possède une surface libre. L'analyse du profil de déformation de cette surface permet de mesurer les différences de contraintes normales.

1.5.4 Rhéométrie à surface libre

– Rhéomètre à barreau rotatif :

Le fluide est placé dans une cuve large de rayon R_e , un barreau cylindrique de rayon R_i , axé au centre de la cuve, est plongé dans le matériau. On applique un couple Γ au barreau qui se met en rotation à la vitesse angulaire constante Ω (figure 1.10). La surface libre du fluide se déforme. C'est un effet connu sous le nom d'*effet Weissenberg* qui est la signature de l'anisotropie des contraintes normales. En absence d'effets inertiels et en supposant que la tension de surface du liquide est négligeable, les différences de contraintes normales s'écrivent, [Boyer *et al.* 2011] :

$$N_2 + \frac{1}{2}N_1 = -\rho g \left(h(R_e) - h(r) \cdot \frac{r^2 R_e^2}{R_i^2 (R_e^2 - r^2)} \right) \quad (1.50)$$

ρ est la densité du fluide, g est la constante de gravité, et h est la hauteur de la surface du fluide en déflexion.

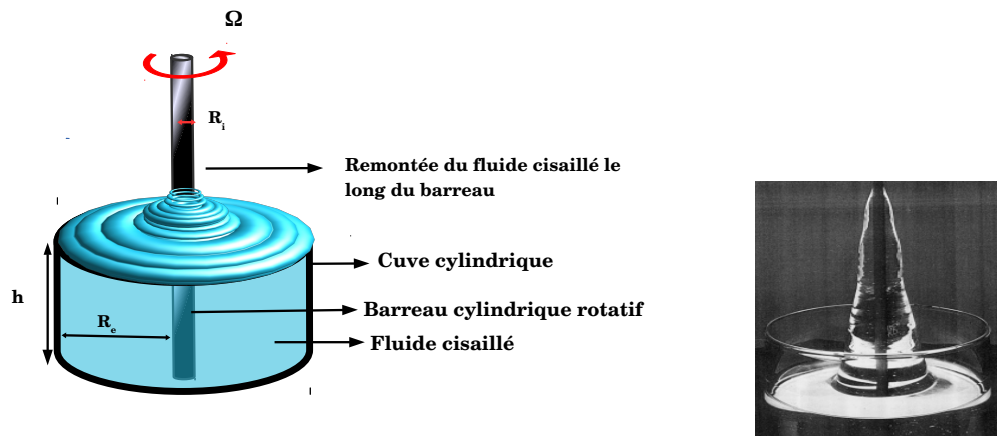


FIG. 1.10 – Rhéomètre à barreau rotatif illustrant l'effet *effet Weissenberg*, obtenu par un polymère qui montre une montée du matériau le long du barreau. Pour une suspension de sphères, un creux apparaît au voisinage du cylindre interne.

– Écoulement à travers un demi-tube incliné :

Cette géométrie est souvent utilisée pour déterminer la contrainte seuil d'un fluide ainsi que la seconde différence de contraintes normales. On utilise un canal semi-circulaire de rayon R et de longueur L , avec $L \gg R$, pour réduire les effets de bord de la géométrie. Le canal est rempli complètement par le matériau étudié et est incliné d'un angle β par rapport à la direction horizontale. La différence de hauteur entre l'entrée et la sortie du canal est notée h (figure 1.11). Le matériau subit une contrainte de cisaillement due à la gravité [Kuo & Tanner 1974] : La contrainte de cisaillement Σ_{12} est égale à :

$$\Sigma_{12}(x_2) = \rho g \sin \beta (h(x_2)) \quad (1.51)$$

Si le matériau présente une anisotropie des contraintes normales, sa surface libre se déforme, on peut déduire N_2 de son profil :

$$N_2 = -\Sigma_{12} \left(\frac{h(x_1) - h(0)}{\tan \beta |x_1|} \right) \quad (1.52)$$

où $h(0)$ est une constante qui peut être déterminée en appliquant l'équation de conservation de masse : $\int_{-R}^R h(x_1) dx_1 \equiv 0$.

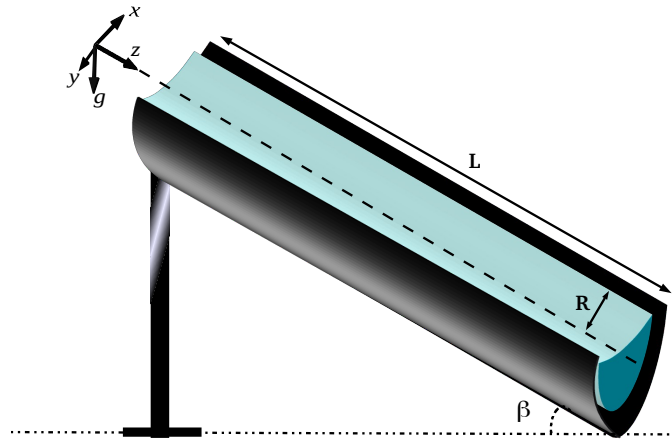


FIG. 1.11 – Écoulement d'un fluide à travers une semi-collone inclinée d'un angle β par rapport au plan horizontale.

1.6 Appareil d'expérimentation : Rhéomètre HAAKE MARS

II

Dans la présente étude, nous nous sommes intéressés au comportement rhéologique des suspensions de fibres en écoulement torsionnel décrit dans la section (1.5.3). L'écoulement est ainsi généré dans une géométrie de Couette-plan montée sur un rhéomètre rotatif *HAAKE MARS II*. Ce rhéomètre, voir (figure 1.12), permet d'effectuer les mesures



FIG. 1.12 – Rheometre HAAKE Mars II.

rhéologiques en différents modes : contrainte imposée, vitesse imposée, et aussi à déformation imposée. Pour notre étude nous travaillerons exclusivement en mode contrainte imposée. Le plan inférieur de la géométrie est équipé d'un module Peltier qui permet de contrôler la température. La détermination des grandeurs rhéologiques est effectuée à l'aide du logiciel *RheoWin* doté de différents essais expérimentaux. Les spécifications techniques du rhéomètre *HAAKE MARS II* en mode contrainte imposée sont :

- Couple imposé : $0.05 \mu Nm < \Gamma < 200 mNm$ avec une résolution de $0.5 nNm$.
- Vitesse de rotation : $10^{-7} < \Omega(\text{tour}/\text{min}) < 1500$ avec une résolution angulaire de

12 *nrad*.

- Faible inertie $I = 10^{-5} \mu Nms$. Bien que, le logiciel *RheoWin* dispose d'une option de correction de l'inertie, il est recommandé d'éviter des protocoles expérimentaux à changement de vitesse rapides, et d'effectuer les mesures sur un temps plus long que le temps d'inertie : temps caractéristique du rhéomètre.
- Forces normales : $0.05 N < F < 50 N$ avec une résolution de $0.001 N$.
- Contrôle de température du module Peltier : $-150^\circ < T < 200^\circ$.

1.7 Quelques artefacts expérimentaux et précautions

1.7.1 Glissement aux parois

Alors que pour des fluides simples newtoniens, le phénomène de glissement est quasi absent, pour les fluides non newtoniens, le glissement aux parois peut être plus ou moins important selon la complexité de la microstructure du matériau et la vitesse de cisaillement. Le glissement est dû au fait que les surfaces des géométries sont généralement lisses, imposant au matériau une microstructure différente de celle qu'il a loin des parois. Cette discontinuité est quantifiée par la vitesse du glissement, v_{glis} , et doit être corrigée afin de déterminer précisément les grandeurs rhéologiques du matériau cisailé. La figure 1.13 illustre ce phénomène. Le taux de cisaillement apparent $\dot{\gamma}_{app}$ mesuré par le rhéomètre est différent du taux de cisaillement réel $\dot{\gamma}_{rel}$.

La vitesse imposée par le rhéomètre v_0 vaut :

$$v_0 = 2v_{glis} + v_{rel} = 2v_{glis} + \dot{\gamma}_{rel} \times h \quad (1.53)$$

Le taux de cisaillement apparent, $\dot{\gamma}_{app}$, s'écrit :

$$\dot{\gamma}_{app} = \frac{v_0}{h} = \frac{2v_{glis}}{h} + \dot{\gamma}_{rel} \quad (1.54)$$

qui est égale à :

$$\dot{\gamma}_{app} = \frac{2v_{glis}}{h} + \frac{\tau}{\eta_{rel}} \quad (1.55)$$

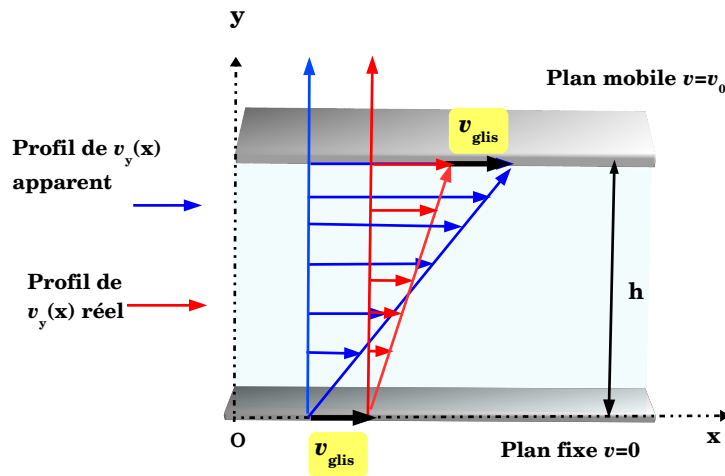


FIG. 1.13 – Phénomène de glissement aux parois dans un écoulement de Couette plan.

En supposant que la vitesse du glissement ne dépend que de la contrainte imposée τ et non de l'entrefer h , on peut déterminer la vitesse de glissement, v_{glis} , à partir de la mesure des taux de cisaillement apparents $\dot{\gamma}_{app}$ pour une même contrainte et plusieurs valeurs d'entrefers h . L'équation (1.54) est une relation linéaire lorsque $\dot{\gamma}_{app}$ est tracé en fonction de $1/h$, on obtient une droite avec la pente A_{glis} à partir de laquelle, on peut déterminer la vitesse de glissement $v_{glis} = \frac{A_{glis}}{2}$ et l'ordonnée à l'origine, B_{glis} , représente le taux de cisaillement réel $\dot{\gamma}_{rel}$, pour lequel on peut déterminer la viscosité du matériau, η_{rel} .

Notons qu'il est possible de s'affranchir du glissement, ou au moins d'en limiter les effets en rendant les parois des surfaces de la géométrie rugueuses, cela permet une bonne adhérence du fluide aux parois. Une technique simple et accessible est de coller aux parois de la géométrie un support de rugosité contrôlée, par exemple du papier de verre dont les dimensions des rugosités doivent être au minimum 2 fois supérieures à la taille des particules pour le cas des suspensions.

1.7.2 Bandes de cisaillement

Ce phénomène peut être aussi observé lors d'une expérience de cisaillement pour des fluides complexes. Tout comme le glissement, l'apparition de bandes de cisaillement induit

une discontinuité du profil de vitesse. Le fluide se sépare en différentes parties présentant des profils de vitesse différents tel que c'est illustré sur la figure 1.14. Les bandes de cisaillement apparaissent préférentiellement aux faibles taux de cisaillement, certaines couches du fluide sont soumises à des gradients de vitesse plus grands que le gradient de vitesse moyen imposé par le rhéomètre, alors que d'autres couches demeurent non cisillées (ou peu cisillées). L'origine des bandes cisillées peut être liée à l'hétérogénéité du matériau, qui permet de localiser la déformation le long d'une surface.

Un moyen d'éliminer l'apparition de bandes de cisaillement est de contrôler l'homogénéité

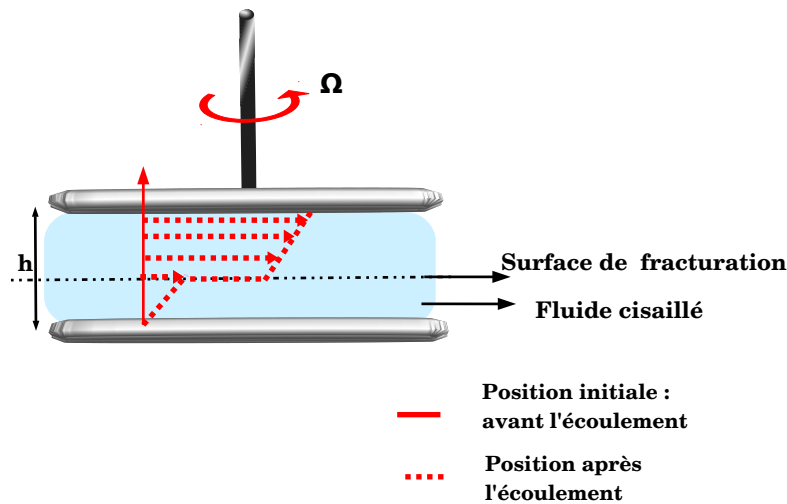


FIG. 1.14 – Phénomène d'apparition de bandes de cisaillement dans un écoulement de Couette plan.

du matériau. Par exemple, dans le cas des suspensions de particules, qui sont des mélanges entre une phase solide (des particules de densité ρ_p) et une phase liquide (fluide interstitiel de densité ρ_f), il est préférable de préparer les suspensions avec des mélanges dont les densités sont proches, $\Delta\rho = \rho_l - \rho_p \ll \frac{\rho_l + \rho_p}{2}$, ou, dans le meilleur des cas, de préparer les mélanges de telle sorte que $\rho_l = \rho_p$ pour obtenir une homogénéité parfaite de la suspension.

1.7.3 Fracturation du matériau cisillé

Le phénomène de fracturation se manifeste par une ouverture du matériau à l'interface (fluide/air), lorsqu'un creux de profondeur r_e se forme, voir (figure 1.15). Les parties du

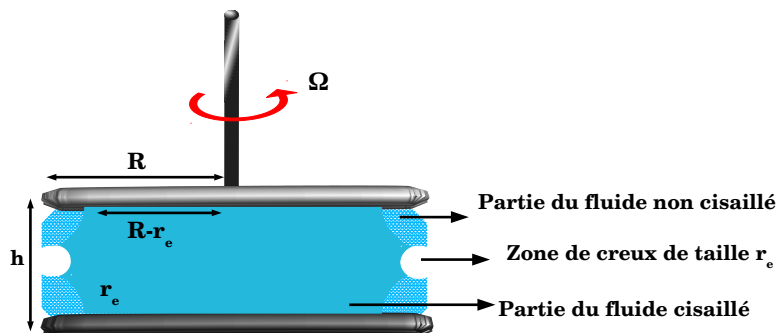


FIG. 1.15 – Phénomène de fracturation dans un écoulement de Couette plan.

fluide situées de part et d'autre de la zone de fracturation sont maintenues sur les parois de la géométrie et ont tendance à ne plus être en contact entre elles, et ne sont donc plus cisailées.

Le phénomène de fracturation est dû à l'anisotropie des contraintes normales, plus précisément à la deuxième différence de contrainte normale, N_2 , (équation (1.38)), lorsqu'elle est de signe négatif et dépasse une certaine valeur critique $|N_{2c}| \simeq 5\gamma_{sur}/h$ avec γ_{sur} étant la tension de surface, conduit à l'apparition de cette instabilité, connue sous le nom de " *Edge fracture instability*", démontrée par [Keentok & Xue 1999]. Pour un entrefer donné, il suffit de déterminer l'ordre de grandeur de la tension de surface et s'assurer que $N_2 \ll 5\gamma_{sur}/h$ lors d'une procédure d'écoulement pour s'affranchir de cette instabilité.

1.7.4 L'évaporation

L'évaporation se manifeste pour des fluides à base d'eau ou de substances volatiles, lorsque la surface libre de l'échantillon est en contact direct avec l'atmosphère. Notamment aux cours de procédures expérimentales qui nécessitent des temps de mesure longs, l'interface de l'échantillon reste longtemps exposée à l'air, ce qui entraîne une diminution du volume de l'échantillon. Plus l'interface *liquide/air* est grande, plus l'effet de l'évaporation est important, ce qui conduit à une erreur d'estimation de la viscosité du fluide. Par ex-

emple, dans le cas de la présente étude, les suspensions de fibres que nous étudions sont préparées avec un mélange de fluides à base d'eau. Ainsi si de l'eau s'évapore, non seulement le volume de fluide cisailé diminue (ce qui conduit à une baisse apparente de la viscosité) mais la viscosité du fluide suspendant augmente ainsi que la fraction volumique de particules.

Il est alors crucial, lors des expériences de rhéométrie de s'affranchir de l'effet de l'évaporation afin de réduire les incertitudes sur la mesure de la viscosité. Pour des solutions à base d'eau, il existe des consignes techniques permettant de diminuer cet effet :

- Effectuer des expériences à des températures pas trop élevées de l'ordre $20^\circ \sim 25^\circ$, la température peut ainsi être contrôlée à l'aide du module Peltier du rhéomètre section (1.6).
- Réaliser des expériences en milieu saturé en vapeur d'eau : par exemple en plaçant un couvercle isotherme sur l'échantillon cisailé.
- Placer un film liquide non volatile et non miscible avec l'échantillon, de faible viscosité autour de l'interface, ainsi la surface libre du matériau volatile n'est pas en contact directe avec l'atmosphère.

1.7.5 Variation de la température

La viscosité d'un matériau est sensible à la variation de température, plus précisément, elle décroît lorsque la température augmente. Un moyen de quantifier cette dépendance est d'utiliser le protocole suivant : Pour une contrainte de cisaillement fixe τ_{set} . La température T est variée par palier dans l'ordre croissant ou décroissant, à l'aide du module Peltier. Chaque palier dure assez longtemps pour que la température d'équilibre de tout l'échantillon soit atteinte. On mesure ainsi la dépendance de la viscosité en fonction de la température $\eta = f(T)$. La variation de la viscosité en fonction de la température peut être représentée par la loi suivante :

$$\eta = \eta^* \exp(-a_0 T) \quad (1.56)$$

où η^* et a_0 sont des constantes à déterminer expérimentalement. Cette procédure est utilisée pour mesurer la viscosité du fluide suspendant. Ainsi, lorsqu'on cherche à déterminer la viscosité relative d'une suspension $\eta_r = \frac{\eta}{\eta_0}$, il suffira de connaître la température à laquelle la viscosité de la suspension est mesurée pour la normaliser par la viscosité du fluide sus-

pendant mesurée à la même température. Il est important que la température de la salle d'expérimentation ne soit pas trop différente de la température imposée par le module de Peltier de façon à éviter les gradients thermiques.

1.7.6 L'inhomogénéité de l'écoulement

Dans un écoulement torsionnel plan-plan, le taux de cisaillement $\dot{\gamma}$ dépend de la position radiale r : $\dot{\gamma}(r) = \frac{\Omega r}{h}$. Le cisaillement n'est donc pas homogène dans l'entrefer h . Ceci se manifeste par la formation de régions de faible cisaillement localisées vers le centre du disque et des régions à fort cisaillement situées vers la périphérie du disque. Ceci peut altérer les mesures de viscosité, par exemple pour des fluides à seuil, lorsque l'écoulement s'effectue à faible taux de cisaillement, le fluide situé vers les régions centrales n'est pas cisailé. Il est recommandé, en premier lieu de déterminer la gamme du taux de cisaillement pour laquelle le fluide est cisailé dans sa totalité, et par la suite entamer les procédures expérimentales pour les analyses rhéologiques du matériau étudié.

1.7.7 Autres artefacts de mesures

L'inhomogénéité de l'écoulement vue au paragraphe précédent peut également être responsable de phénomènes de migration, rendant ainsi inhomogène la concentration de particules et induisant une erreur d'estimation de la viscosité. Nous pouvons citer les travaux de [Merhi *et al.* 2005] et [Dbouk *et al.* 2013] qui montrent que la migration pour des suspensions de particules sphériques en géométrie plan-plan est faible ou quasi-absente. Pour le cas des suspensions de fibres, la migration pour les suspensions de fibres sera discutée dans le chapitre 6.

1.8 Conclusion

Dans cette partie, nous avons passé en revue les principes de base de la rhéologie et les différentes techniques de rhéométrie qui sont couramment utilisées pour les mesures des fonctions matérielles η , N_1 et N_2 . Nous avons présenté une description de l'écoulement torsionnel en géométrie plan-plan, qui constituera notre cadre expérimental, et discuté de certains artefacts expérimentaux qui peuvent perturber l'écoulement et les mesures des

fonctions matérielles. Enfin, nous avons exposé quelques consignes de précaution afin de s'affranchir de ces artefacts pour nous permettre de conduire nos procédures expérimentales dans des conditions favorables.

Rhéologie des suspensions de fibres :

état de l'art

Les suspensions de fibres constituent des suspensions modèles capables d'imiter les matériaux composites chargés de renforts. Des efforts considérables ont été consentis par de nombreux chercheurs pour tenter d'apporter une compréhension des phénomènes d'écoulement des suspensions, que ce soit d'un point de vue expérimental ou théorique.

Ce chapitre a pour but de présenter une étude bibliographique sur la rhéologie des suspensions de fibres. Nous présenterons d'abord les propriétés des fibres et aborderons les moyens théoriques pour la construction de lois de comportement et décrire l'évolution des populations de fibres par l'introduction des tenseurs d'orientation. Nous évoquerons alors les différents types d'interactions qui peuvent agir dans les suspensions de fibres et ferons un résumé des différents modèles numériques et théoriques qui tiennent compte (ou non) de ces interactions. Enfin, nous présenterons une synthèse des mesures expérimentales des fonctions matérielles pour des suspensions de fibres et présenterons quelques comparaisons avec les résultats des modèles théoriques et des simulations.

2.1 Suspensions de particules : un milieu biphasique

Parmi les différentes classes de fluides complexes, on cite les suspensions de particules. De manière générale, une suspension est définie par un mélange d'une phase solide (particules) non miscible avec une phase liquide (la matrice fluide).

La difficulté dans les processus de fabrication des matériaux chargés réside dans le fait qu'il existe un fort couplage entre la mise en forme, les propriétés intrinsèques du renfort et la microstructure. Dans une démarche de compréhension de ce couplage, nous avons recours à

l'étude de suspensions modèles qui représentent l'écoulement de ces systèmes complexes. Il est donc plus commode d'étudier des suspensions dont on connaît au moins les propriétés individuelles de chacune des phases, solide et liquide. Il est assez intuitif, de s'attendre à ce que les propriétés rhéologiques des suspensions dépendent d'un certain nombre de paramètres liés aux deux phases :

– **Pour la phase fluide :**

- Le comportement du fluide suspendant (newtonien, non newtonien, fluide à seuil,...).
- Sa densité ρ_0 et sa viscosité η_0 .

– **Pour la phase solide :**

- La taille des particules.
- La géométrie des particules : sphérique, ellipsoïde, cylindrique.
- La densité des particules ρ_p .
- La surface des particules : rugosité, traitement de surface, présence de polymère ou d'agents tensioactifs....
- La fraction volumique particules notée ϕ .
- Les propriétés mécaniques des fibres : rigidité ou flexibilité.

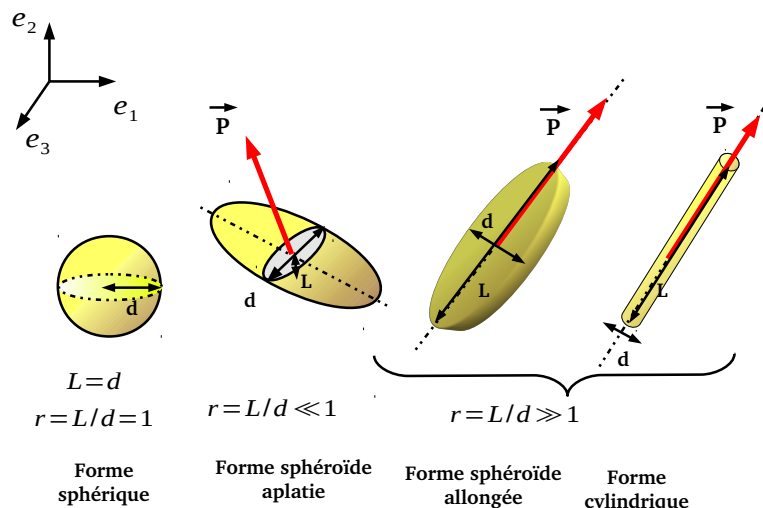


FIG. 2.1 – Différentes formes de particules avec leur rapport d'aspect a_r , et leur vecteur d'orientation \vec{p} .

La figure 2.1 illustre quelques exemples de formes de particules utilisées pour décrire l'écoulement de suspensions modèles. De gauche à droite, particules sphériques de rayon r , sphéroïdes aplaties, sphéroïdes allongées et particules cylindriques. Lorsque les particules sont non sphériques, elles peuvent être orientées par écoulement, leur orientation est représentée par le vecteur d'orientation noté, \vec{p} , de norme unité et orienté suivant l'axe de symétrie de la particule. Sur le même axe on définit la longueur de la particule L , son diamètre d est la dimension maximale suivant une direction perpendiculaire au vecteur d'orientation \vec{p} . On définit alors le rapport d'aspect de la particule (rapport de forme) qui est le rapport de la longueur L sur le diamètre d , $a_r = \frac{L}{d}$.

2.2 Caractéristiques d'une suspension de fibre

2.2.1 Forme géométrique de la fibre

Une fibre est une particule de type cylindrique définie par son rapport d'aspect $a_r = \frac{L}{d} > 1$ et son vecteur d'orientation \vec{p} , comme illustré sur la figure 2.2. Dans un système de coordonnées sphérique (θ, Φ) , les composantes du vecteur d'orientation de la fibre s'écrivent :

$$p_1 = \sin\theta \cos\Phi \quad (2.1)$$

$$p_2 = \sin\theta \sin\Phi \quad (2.2)$$

$$p_3 = \cos\theta \quad (2.3)$$

Le mouvement de la particule dans le fluide est alors décrit par l'évolution des angles θ et Φ .

2.2.2 Régimes de concentrations ϕ

La concentration d'une suspension est un paramètre qui joue un rôle important dans son comportement rhéologique. Dans un volume élémentaire de la suspension, la fraction volumique ϕ est définie par :

$$\phi = nv_f = n\frac{\pi}{4}Ld^2 \quad (2.4)$$

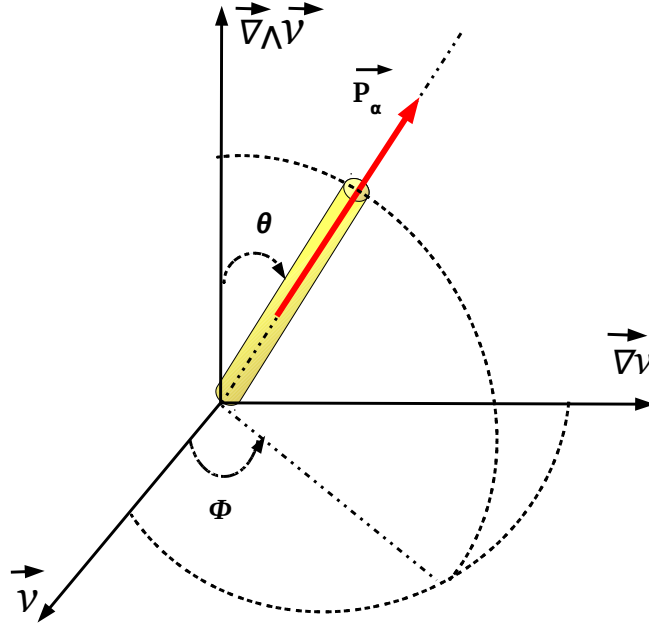


FIG. 2.2 – Composantes du vecteur d'orientation d'une fibre \vec{p} dans le système de coordonnées (θ, Φ) .

où n est le nombre de fibres par unité de volume, $v_f = \frac{\pi}{4}Ld^2$ est le volume d'une fibre. Le comportement rhéologique d'une suspension de fibres va dépendre de la fraction volumique des fibres, ϕ , et du rapport d'aspect, a_r . On définit alors deux paramètres de concentration qui font intervenir ϕ et a_r :

$$nL^2d = \frac{\pi}{4}a_r\phi \quad (2.5)$$

$$nL^3 = \frac{\pi}{4}a_r^2\phi \quad (2.6)$$

[Doi & Edwards 1988] ont donné une classification des différents régimes de concentration dans une suspension : *régime dilué*, *régime semi-dilué*, *régime concentré*. La figure 2.3 montre les trois différents régimes de concentration pour un rapport d'aspect fixé.

– **Régime dilué** :

En régime dilué, les fibres sont libres de se mouvoir en effectuant une rotation dans les trois directions, sans qu'il y ait contact entre les fibres. Le volume effectif qui correspond au volume occupé par une fibre en rotation est le volume d'une sphère

isolée de rayon $L/2$. Le régime dilué est donc défini par :

$$\begin{cases} \phi \lesssim \frac{1}{a_r^2} \\ nL^3 \lesssim 1 \end{cases} \quad (2.7)$$

Puisque les fibres sont éloignées les unes des autres, elles n'interagissent pas entre elles. Seules les interactions entre les fibres et le fluide déterminent l'écoulement.

– **Régime semi-dilué :**

Lorsque la concentration augmente, les fibres ne peuvent plus effectuer de rotation sans entrer en contact les unes avec les autres que dans le plan de cisaillement. La fibre en rotation occupe donc le volume d'un cylindre de rayon $L/2$ et de hauteur d . Dans cette configuration le critère de régime semi-dilué est défini par :

$$\begin{cases} \frac{1}{a_r^2} \lesssim \phi \lesssim \frac{1}{a_r} \\ nL^2d \lesssim 1 \\ nL^3 \gtrsim 1 \end{cases} \quad (2.8)$$

Dans ce régime, les fibres interagissent entre elles via les forces hydrodynamiques et par des collisions avec leur proches voisines avec une faible probabilité de contact.

– **Régime concentré :**

Lorsque la concentration augmente encore, les fibres en écoulement ne peuvent plus se mouvoir librement et se touchent constamment les unes avec les autres. Le régime concentré est défini par :

$$\begin{cases} \phi \gtrsim \frac{1}{a_r} \\ nL^2d \gtrsim 1 \end{cases} \quad (2.9)$$

Dans ce régime, les interactions de contact entre les fibres jouent un rôle important et leur influence devient de plus en plus importante quand la concentration augmente.

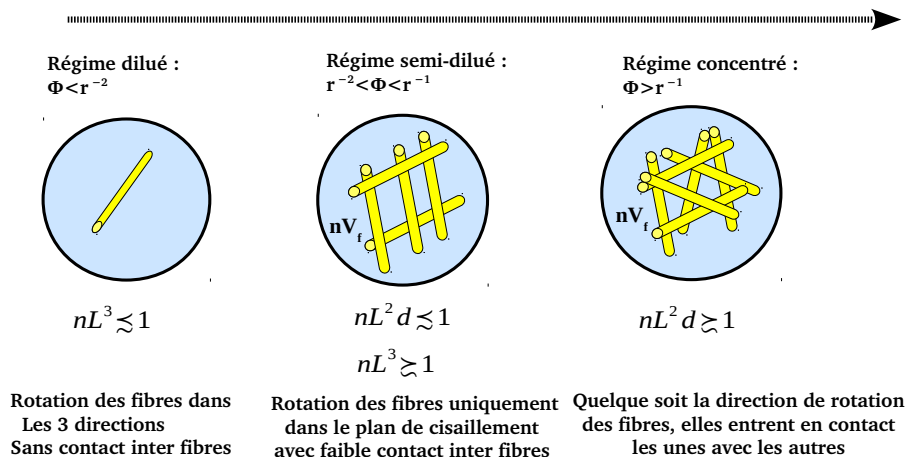


FIG. 2.3 – Différents régimes de concentration d'une suspension de fibres suivant la classification de [Doi & Edwards 1988].

2.3 Mouvement d'une population de fibres

Considérons une fibre dans un fluide en écoulement. La fibre va subir l'écoulement du fluide qui va induire à son tour une perturbation du champ de vitesse du fluide par un mouvement de translation avec une vitesse, v , et une rotation de vitesse angulaire, ω . L'orientation des fibres joue un rôle important dans la détermination de la viscosité d'une suspension, c'est ce que nous verrons par la suite.

2.3.1 Orientation d'une population de fibres en régime dilué : L'équation de Jeffery

Le mouvement de rotation de la fibre est décrit par l'équation de l'évolution du vecteur d'orientation \vec{p} connue sous le nom de l'*Equation de Jeffery* [Jeffery 1922] qui a été un des pionniers à décrire la dynamique d'une particule axisymétrique isolée en écoulement.

Pour établir son modèle, l'approche de *Jeffery* s'est basée sur les hypothèses suivantes :

- L'écoulement est supposé stationnaire et à faible *nombre de Reynolds*.
- le fluide suspendant est newtonien, incompressible, de viscosité η_0 .

- L'échelle de longueur caractéristique de l'écoulement est très grande devant la taille de la particule (fibre, ellipsoïde).
- Les particules sont supposées rigides non déformables et non flexibles.
- La concentration de fibres est assez petite pour être en régime dilué, les interactions entre fibres sont négligées.
- Les tenseurs de taux de déformation et de rotation sont constants sur l'échelle de l'écoulement.

L'équation d'évolution du vecteur d'orientation \vec{p} d'une fibre au cours du temps s'écrit :

$$\frac{\partial \vec{p}}{\partial t} = \bar{\omega} \cdot \vec{p} + \lambda (\bar{e} \cdot \vec{p} - \bar{e} : \vec{p} \otimes \vec{p} \otimes \vec{p}) \quad (2.10)$$

où \bar{e} et $\bar{\omega}$, sont les tenseurs du taux de déformations et de rotations respectivement tel que définis dans la section (1.2.2) et λ est une constante qui ne dépend que du rapport d'aspect de la fibre : $\lambda = \frac{a_r^2 - 1}{1 + a_r^2}$, l'équation de *Jeffery* (2.10) montre que le mouvement de la fibre est gouverné par deux contributions : le terme $\bar{\omega} \cdot \vec{p}$ qui représente le mouvement de la particule en rotation autour de l'axe de vorticité et le terme $(\bar{e} \cdot \vec{p} - \bar{e} : \vec{p} \otimes \vec{p} \otimes \vec{p})$ qui représente le mouvement de la fibre induit par l'action de l'écoulement qui tend à l'aligner suivant la direction de la vitesse. En absence de mouvement brownien et toute autre interaction inter-particulaire, l'équation (2.10) de *Jeffery* admet comme solution :

$$\begin{cases} \tan \Phi = a_r \tan \left(\frac{\dot{\gamma} t}{a_r + a_r^{-1}} + k \right) \\ \tan \theta = \frac{C}{\sqrt{a_r^2 \cos^2 \Phi + \sin^2 \Phi}} \end{cases} \quad (2.11)$$

où les paramètres k , et C , sont l'angle de phase et la constante d'orbite respectivement, qui dépendent de l'orientation initiale de la fibre. *Jeffery* montre ainsi, qu'en écoulement de cisaillement simple, une fibre n'a pas de position d'équilibre fixe, elle effectue un mouvement en rotation périodique suivant les orbites C comme illustré sur la figure 2.4, et passe la majorité du temps dans la direction de la vitesse de l'écoulement. La période de rotation appelée période de *Jeffery*, T_{Jef} est égale à :

$$T_{Jef} = \frac{2\pi}{\dot{\gamma}} \left(a_r + \frac{1}{a_r} \right) \quad (2.12)$$

La période dépend donc uniquement du rapport d'aspect de la fibre a_r et du taux de ci-

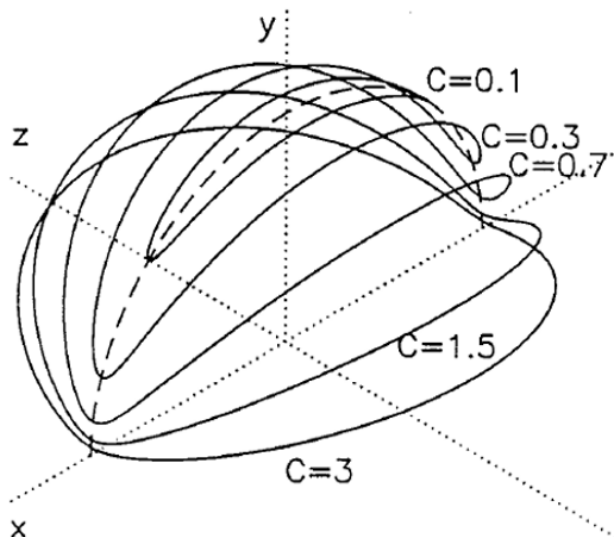


FIG. 2.4 – Représentation schématique des différentes orbites de *Jeffery* pour un écoulement en cisaillement simple pour une fibre de rapport d'aspect $a_r = 10$. x , y et z sont les directions de l'écoulement, du gradient de vitesse et de la vorticité, respectivement. Figure extraite de [Sundararakumar & Koch 1997].

saillement $\dot{\gamma}$. Plus le taux de cisaillement est petit, plus le rapport d'aspect est grand, et plus la période est grande.

Notons que dans le cas de populations de fibres en régime dilué, c'est à dire sans interactions inter-fibres, l'équation de *Jeffery* suffit pour décrire le comportement et l'orientation des fibres. Ces orbites de *Jeffery* ont été observées expérimentalement par [Anczurowski & Mason 1967], [Frattini & Fuller 1986].

2.4 Mouvement d'une population de fibres en régime non-dilué : équation de *Folgar & Tucker*

En régime semi-dilué et semi-concentré, les fibres en écoulement subissent des interactions entre elles, ces interactions conduisent à des déviations par rapport aux orbites de *Jeffery*. La description de l'orientation d'une fibre n'est plus gouvernée par l'équation (2.10) de *Jeffery*. [Folgar & Tucker 1984] proposent une approche phénoménologique pour tenir compte des interactions inter-fibres, en rajoutant un terme de diffusion à l'équation de *Jef-*

fery. Les orbites deviennent stochastiques et doivent être décrites en terme de probabilité d'orientation. On introduit alors la fonction de probabilité d'orientation ψ .

2.4.1 Fonction de probabilité d'orientation ψ :

L'orientation d'une fibre est décrite en terme de fonction de probabilité de distribution d'orientation $\psi(\theta, \Phi)$, où $(\theta$ et $\Phi)$ sont les angles d'orientation comme illustrés sur la figure 2.2. Cette fonction représente la probabilité de trouver une fibre dont l'orientation est comprise entre (θ, Φ) et $(\theta + d\theta, \Phi + d\Phi)$ et donnée par :

$$P(\theta < \theta' < \theta + d\theta, \Phi < \Phi' < \Phi + d\Phi) = \psi(\theta, \Phi) \sin \theta d\theta d\Phi \quad (2.13)$$

La fonction ψ doit vérifier certaines conditions physiques :

- ψ est une fonction périodique puisqu'une fibre orientée suivant les angles (θ, Φ) est indiscernable d'une fibre orientée suivant les angles $(\pi - \theta, \Phi + \pi)$, ce qui donne :

$$\psi(\theta, \Phi) = \psi(\pi - \theta, \Phi + \pi) \quad \text{ou} \quad \psi(\vec{p}) = \psi(-\vec{p}) \quad (2.14)$$

- ψ est une fonction normalisable, puisque chaque fibre a une certaine orientation pendant un instant t , la probabilité d'orientation d'une fibre dans tout l'espace $0 < \theta < \pi$ et $0 < \Phi < 2\pi$ est égale à l'unité :

$$\int_0^{2\pi} \int_0^\pi \psi(\theta, \Phi) \sin \theta d\theta d\Phi = 1 \quad (2.15)$$

- La troisième condition que doit vérifier la fonction de distribution d'orientation ψ est la condition de continuité qui décrit l'évolution de la fonction ψ lorsque la fibre change son orientation au cours du temps. C'est l'équation de *Fokker-Plank* avec un terme de diffusion :

$$\frac{D\psi}{Dt} = -\frac{\partial}{\partial \vec{p}} \left(\psi \dot{\vec{p}} \right) + D_r \frac{\partial^2 \psi}{\partial \vec{p}^2} \quad (2.16)$$

où D_r est le coefficient de diffusion rotationnel et $\dot{\vec{p}} = \frac{d\vec{p}}{dt}$. Notons que les fibres sont de taille très grande devant la taille des molécules du fluide et sont donc considérées comme non browniennes, mais ce sont les interactions entre fibres qui induisent un effet comparable à

celui d'une diffusion brownienne. L'équation de *Jeffery* avec un terme de diffusion en rotation s'écrit :

$$\frac{\partial \vec{p}}{\partial t} = \bar{\omega} : \vec{p} + \lambda (\bar{e} \cdot \vec{p} - \bar{e} : \vec{p} \otimes \vec{p} \otimes \vec{p}) - \frac{D_r}{\psi} \frac{\partial \psi}{\partial \vec{p}} \quad (2.17)$$

Cette equation montre que le terme de diffusion ajouté à l'équation de *Jeffery* (2.10) tend à ramener les fibres vers une orientation isotrope. Des mesures expérimentales

[Kamal & Mutel 1989] ont montré que plus le taux de cisaillement $\dot{\gamma}$ est grand plus l'isotropie des fibres est complète. *Folgar & Tucker* proposent dans leur approche phénoménologique que le coefficient de diffusion D_r soit proportionnel au taux de cisaillement $\dot{\gamma}$:

$$D_r = C_i \dot{\gamma} \quad (2.18)$$

où C_i est la constante de *Folgar & Tucker*. A partir des équations (2.16) et (2.17), on peut déduire l'évolution du vecteur d'orientation \vec{p} , cependant, la fonction de distribution de probabilité d'orientation étant une fonction impaire, on a :

$$\langle \vec{p} \rangle = \int_0^{2\pi} \int_0^\pi \vec{p} \psi(\theta, \Phi) \sin\theta d\theta d\Phi = \vec{0} \quad (2.19)$$

Alors, pour décrire l'orientation d'une population de fibres, il est nécessaire d'introduire les tenseurs d'orientation d'ordres supérieurs, définis par des produits dyadiques des vecteurs \vec{p} .

2.4.2 Tenseurs d'orientation

Les tenseurs d'orientation, d'ordre k sont définis par un produit dyadique de k vecteurs \vec{p} . On peut alors décrire la moyenne de n'importe quel tenseur d'orientation B :

$$\langle B \rangle = \int_0^{2\pi} \int_0^\pi B \psi(\theta, \Phi) \sin\theta d\theta d\Phi \quad (2.20)$$

Du fait que la fonction de distribution ψ est une fonction impaire en \vec{p} , les seuls tenseurs dont l'intégrale (equation 2.20) est non nulle, sont les tenseurs d'ordre pair. On exprime l'évolution du tenseur $\langle B \rangle$, où le symbole $\langle . \rangle$ désigne la moyenne sur toute les orientations possibles. La description de l'orientation d'une population de fibres est essentiellement

décrite par les tenseurs d'orientation d'ordre 2 et 4, $\bar{\bar{a}}_2$ et $\bar{\bar{a}}_4$ respectivement qui sont définis par :

$$\left\{ \begin{array}{l} \bar{\bar{a}}_2 = \langle p \otimes p \rangle = \int_{\Phi=0}^{2\pi} \int_{\theta=0}^{\pi} \vec{p} \otimes \vec{p} \psi(\theta, \Phi) \sin\theta d\theta d\Phi \\ \bar{\bar{a}}_4 = \langle p \otimes p \otimes p \otimes p \rangle = \int_{\Phi=0}^{2\pi} \int_{\theta=0}^{\pi} \vec{p} \otimes \vec{p} \otimes \vec{p} \otimes \vec{p} \psi(\theta, \Phi) \sin\theta d\theta d\Phi \end{array} \right. \quad (2.21)$$

Les composantes du tenseur d'ordre 2, $\bar{\bar{a}}_2$ sont définies par les équations suivantes :

$$\left\{ \begin{array}{l} a_{11} = \langle \sin^2 \theta \cdot \cos^2 \Phi \rangle \\ a_{22} = \langle \sin^2 \theta \cdot \sin^2 \Phi \rangle \\ a_{33} = \langle \cos^2 \theta \rangle \\ a_{12} = a_{21} = \langle \sin^2 \theta \cdot \cos \Phi \sin \Phi \rangle \\ a_{13} = a_{31} = \langle \sin \theta \cdot \cos \theta \cos \Phi \rangle \\ a_{23} = a_{32} = \langle \sin \theta \cdot \cos \theta \sin \Phi \rangle \end{array} \right. \quad (2.22)$$

La figure 2.5, illustre différentes configurations d'orientation pour quelques populations de fibres avec les valeurs des composantes du tenseur d'ordre 2, $\bar{\bar{a}}_2$.

Ainsi, l'équation d'évolution du tenseur d'orientation d'ordre 2, $\bar{\bar{a}}_2$, est obtenue en combinant les équations (2.16) et (2.17) et s'écrit :

$$\frac{d\bar{\bar{a}}_2}{dt} = (\bar{\bar{\omega}} \cdot \bar{\bar{a}}_2 - \bar{\bar{a}}_2 \cdot \bar{\bar{\omega}}) + \lambda (\bar{\bar{e}} \cdot \bar{\bar{a}}_2 + \bar{\bar{a}}_2 \cdot \bar{\bar{e}} - 2\bar{\bar{e}} : \bar{\bar{a}}_4) + 2D_r (\bar{\bar{I}} - 3\bar{\bar{a}}_2) \quad (2.23)$$

où $\bar{\bar{I}}$ est le tenseur unité. On constate que la résolution de l'équation (2.23) d'évolution du tenseur d'ordre 2 fait intervenir le tenseur d'orientation d'ordre 4. De façon générale, par construction, la résolution de l'équation d'évolution d'ordre $2k$ nécessite la connaissance du tenseur d'ordre $2k + 2$. Pour aboutir à la résolution de l'équation (2.23), on est contraint de trouver une relation entre $\bar{\bar{a}}_2$ et $\bar{\bar{a}}_4$; $\bar{\bar{a}}_4 = f(\bar{\bar{a}}_2)$. Cette relation est dite approximation de fermeture. Il existe un grand nombre de relations de fermeture, à titre d'exemple, la fermeture quadratique qui s'écrit :

$$\bar{\bar{a}}_4 = \bar{\bar{a}}_2 \otimes \bar{\bar{a}}_2 \quad (2.24)$$

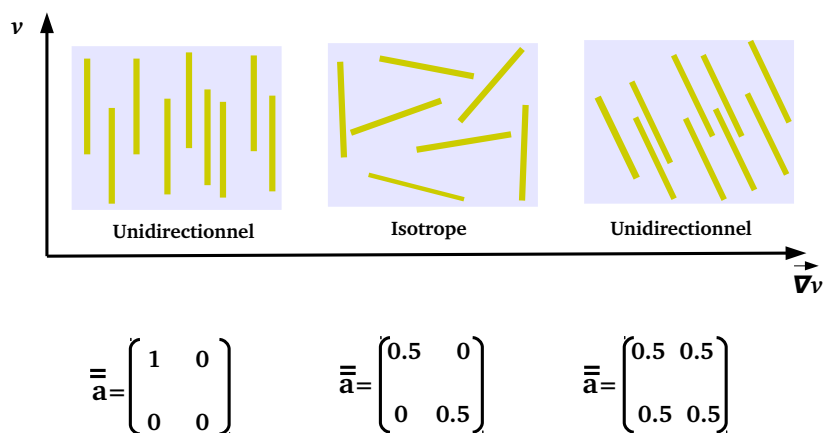


FIG. 2.5 – Exemple de configuration d'orientation en 2 dimensions pour une population de fibres, avec les composantes du tenseur d'orientation d'ordre 2, $\bar{\bar{a}}_2$ correspondantes.

Les autres relations sont : fermeture linéaire, fermeture hybride, fermeture naturelle et orthotrope, dont nous ne détaillerons pas le calcul ici, voir [Advani & Tucker III 1990], [Cintra Jr & Tucker III 1995] et aussi [Jack & Smith 2005].

2.5 Interactions au sein d'une suspension de fibres

Nous venons de voir que la configuration d'une suspension de fibres est sensible aux interactions entre fibres. Nous allons maintenant décrire la nature de ces interactions.

Dans le présent travail, nous considérons des suspensions de fibres non-browniennes. L'effet du mouvement brownien est quantifié par le nombre de *Péclet* qui est défini par le rapport des effets hydrodynamiques sur les effets thermiques, $N_{Pe} = \frac{\dot{\gamma}}{D_B}$, où D_B est le coefficient de diffusion brownienne [Brenner 1974]. La taille des fibres que nous étudions est assez grande pour que les effets hydrodynamiques dominent les effets browniens. Le nombre de Péclet N_{Pe} est ainsi très grand :

$$N_{Pe} = \frac{\eta_0 \dot{\gamma} \pi L^3}{3k_B T \ln(a_r)} \sim 10^9 \gg 1 \quad (2.25)$$

Il est important de souligner que le coefficient de diffusion brownienne, D_B , défini ici est différent de celui introduit par *Folgar & Tucker* dans l'équation (2.18).

En négligeant les interactions d'origine brownienne, les interactions qui subsistent dans la suspension proviennent de la contribution de la matrice fluide que nous considérons newtonienne et incompressible, et de la présence des fibres. Le fluide en mouvement est régi par l'équation de Stokes (équation (1.29)), alors que mouvement d'une fibre dans un fluide obéit au principe fondamental de la dynamique. Lorsqu'on considère le bilan des forces agissant sur une fibre i , il faut tenir compte des forces et moments hydrodynamiques de la matrice fluide agissant sur la fibre, $\vec{F}_H, \vec{\Gamma}_H$, ainsi que des forces et des moments inter-fibres non hydrodynamiques, $\vec{F}_C, \vec{\Gamma}_C$. On obtient alors dans l'approximation non inertielle, l'équation du mouvement d'une fibre dans une matrice fluide :

$$m \frac{d\vec{V}}{dt} = \vec{F}_H + \vec{F}_C \quad , \quad \frac{d(I\vec{\omega})}{dt} = \vec{\Gamma}_H + \vec{\Gamma}_C \quad (2.26)$$

Le problème consiste à définir ces interactions hydrodynamiques dans un système fluide-particules, dans le cas d'écoulements à faible nombre de Reynolds $Re \ll 1$, et pour des particules de type cylindrique. Différentes méthodes de calculs sont combinées afin de déterminer la perturbation apportée par une fibre à l'écoulement. [Batchelor 1970] utilise la théorie des corps minces et la méthode des singularités *stokeslet analysis*, [Pozrikidis 1992], [Happel & Brenner 2012]. Dans le calcul du champ de vitesse autour d'une particule, l'idée est de considérer la présence du corps mince "fibre" comme un ensemble de singularités, qui sont des perturbations élémentaires apportées à l'écoulement sous la forme de forces ponctuelles, de doublets de forces ou encore de combinaisons de moments de forces d'ordre supérieur qui interviennent dans l'équation de Stokes.

Dans la suite nous allons donner une description générale pour exprimer ces termes d'interaction (pour le détail des calculs, voir les références citées ci dessus).

2.5.1 Forces Hydrodynamiques

Les forces et les moments hydrodynamiques traduisent l'action du fluide en mouvement au voisinage de la surface d'une fibre qui va déterminer sa trajectoire et s'expriment ainsi :

$$\vec{F}_H = \int_{\partial\Omega_s} \bar{\bar{\Sigma}} \cdot \vec{n} \cdot dS \quad , \quad \Gamma_H = \int_{\partial\Omega_s} [\vec{x} - \vec{X}] \times [\bar{\bar{\Sigma}} \cdot \vec{n}] (d\Omega_s) \quad (2.27)$$

où $\bar{\bar{\Sigma}}$ est le tenseur de contrainte tel que défini dans l'équation (1.2), $\partial\Omega_s$ est la surface de la fibre, \vec{n} , la normale à la surface, \vec{X} , le barycentre de la fibre, et \vec{x} est la position d'un point situé sur la surface de la fibre

La fibre sera donc animée d'un mouvement de translation et de rotation autour de son axe de révolution conduisant à une orientation privilégiée ou non de la fibre en écoulement. Par ailleurs, la présence de la particule dans l'écoulement va perturber l'écoulement autour d'une autre fibre voisine. Cette perturbation sera d'autant plus importante que les fibres sont proches. Du fait de la linéarité de l'équation de Stokes, les forces hydrodynamiques peuvent être principalement décomposées en trois contributions : \vec{F}_H^d qui est la force de traînée (*drag force*), \vec{F}_H^i qui est la force d'interaction à longue portée entre fibres, et \vec{F}_H^l est la force à courte portée entre fibres de type lubrification :

$$\vec{F}_H = \vec{F}_H^d + \vec{F}_H^i + \vec{F}_H^l \quad (2.28)$$

La force de traînée \vec{F}_H^d induit un mouvement de translation et le moment associé induit un mouvement de rotation de la fibre. Pour une fibre en mouvement de translation relativement au fluide de vitesse $\vec{v} = \vec{v}_p + \vec{v}_t$, où \vec{v}_p et \vec{v}_t sont respectivement, les composantes longitudinale et transverse de la vitesse par rapport à la fibre. La force de traînée s'écrit :

$$\vec{F}_H^d = \varsigma_p \vec{v}_p + \varsigma_t \vec{v}_t \quad (2.29)$$

où ς_p et ς_t sont les coefficients de friction parallèle et perpendiculaire respectivement. Pour une fibre cylindrique de rapport d'aspect $a_r = \frac{L}{d}$, ces coefficients ont pour expression

uniquement valable pour $a_r \gg 1$ [Doi & Edwards 1988] :

$$\zeta_p = \frac{2\pi\eta_0 L}{\ln(a_r)} \quad , \quad \zeta_t = 2\zeta_p \quad (2.30)$$

D'autre part, le moment $\Gamma_H^{\vec{d}}$ qui résulte de la rotation d'une fibre autour d'un de ses petits axes s'écrit :

$$\Gamma_H^{\vec{d}} = \zeta_r(\vec{\omega}_p - \vec{\omega}) \quad (2.31)$$

où ζ_r est le coefficient de friction en rotation et dans l'approximation $a_r \gg 1$, est égal à [Doi & Edwards 1988] :

$$\zeta_r = \frac{\pi\eta_0 L^3}{3\ln(a_r)} \quad (2.32)$$

L'existence des autres forces hydrodynamiques dépend du régime de concentration de la suspension. En effet, lorsqu'on considère plusieurs particules en mouvement, chaque particule va induire une perturbation dans l'écoulement qui va être transmise à une particule voisine. Dans ce cas, c'est la portée de la perturbation qui est pertinente. Par exemple, dans le cas des suspensions diluées ou semi-diluées, ce sont les interactions à longue portée, \vec{F}_H^i , qui sont dominantes, alors qu'en régime concentré ou très concentré, lorsque la distance moyenne entre fibres diminue, ce sont les interactions à courte portée, \vec{F}_H^l , qui dominent. En plus, en régime concentré, il faudra prendre en considération les autres interactions non-hydrodynamiques pour tenir compte des éventuelles collisions entre fibres.

2.5.2 Forces inter-particulaires non hydrodynamiques

Ce sont des interactions à courte portée qui interviennent entre particules, lorsque la concentration de la suspension devient importante. Elles peuvent jouer un rôle prédominant dans la rhéologie des suspensions de fibres, lorsque les particules sont très proches les unes des autres. Dans la suite nous allons passer en revue quelques interactions couramment rencontrées dans les suspensions de particules :

- Interactions colloïdales :

Ces forces peuvent être attractives de type van der Waals, conduisant dans ce cas à une agrégation des particules, qui peut être irréversible, et éventuellement à une déstabilisation de la suspension. Pour stabiliser la suspension, cela nécessite d'introduire des forces

répulsives, de type électrostatique ou stérique. Les interactions colloïdales peuvent être classées comme suit :

– **Interactions attractives : van der Waals** :

Elles sont dues à des interactions dipolaires entre particules. Généralement, elles traduisent l'interaction entre deux dipôles induits. Ce sont des interactions qui se manifestent quand deux fibres sont très proches l'une de l'autre et qui peuvent être tellement intenses qu'elles conduisent à une agrégation irréversible de la suspension. Ces forces traduisent ainsi le contact adhésif entre les surfaces de deux fibres.

[Van der Schoot & Odijk 1992] ont proposé une expression des forces adhésives pour deux fibres séparées d'une distance h_e très faible devant leur diamètre d et pour une plage d'angles de contact entre fibres, δ , compris entre $\frac{1}{a_r}$ et $\frac{\pi}{2}$:

$$F_{VDW} = \frac{A d}{12 h_e^2} \quad (2.33)$$

Où A est la constante de *Hamaker* liée aux polarisabilités électroniques des particules, et les valeurs typiques de la constante de *Hamaker* varient entre 10^{-21} et $10^{-18} J$.

– **Interactions répulsives : Répulsion stérique** :

Ce sont des interactions à courte portée qui traduisent une gêne volumique apportée par un ou plusieurs substituants encombrants (polymère, agents tensioactif...) présents à la surface des particules. Les particules ne peuvent donc pas s'approcher à des distances inférieures à l'épaisseur de la couche formée. Le potentiel décrivant ce type d'interactions par exemple pour deux particules sphériques de rayon r et séparées d'une distance D s'écrit :

$$U_s = \begin{cases} \infty & \text{si } D = 2r \\ 0 & \text{si } D > 2r \end{cases} \quad (2.34)$$

Introduire des effets stériques constitue une bonne stratégie pour stabiliser la suspension, mais du fait de la courte portée de ces interactions, les interactions stériques seules, ne sont pas toujours suffisantes pour contrebalancer les interactions de van der Waals. Il est alors nécessaire d'introduire des forces répulsives de plus

longue portée afin de parvenir à stabiliser la suspension.

– **Interactions répulsives : Répulsion électrostatique :**

Les interactions électrostatiques résultent de la présence de charges portées naturellement par les particules solides, ou bien apportées par la présence d'ions absorbés à la surface des particules. Dans un liquide ces ions diffusent légèrement, cependant le potentiel d'interaction ainsi créé n'est pas un simple potentiel coulombien. La diffusion créée par ces ions en solution donne lieu à la formation d'une double couche diffuse. Les interactions entre les particules chargées résultent alors du recouvrement de leurs couches diffuses lorsque leur surface se rapprochent. Pour deux particules séparées d'une distance D , le potentiel d'interaction électrostatique s'écrit :

$$U_e = \epsilon_0 \psi_0 r \exp(-\kappa D) \quad (2.35)$$

où ψ_0 est le potentiel électrique de surface des particules et κ^{-1} est la longueur de Debye, la longueur caractéristique décrivant la portée de la répulsion électrostatique due à la présence des ions qui écrantent le potentiel coulombien :

$$\kappa^{-1} = \sqrt{\frac{\epsilon_0 \epsilon K_B T}{2 N_a e^2 I}} \quad (2.36)$$

où ϵ_0 est la permittivité diélectrique du vide, ϵ est la permittivité diélectrique relative du solvant, e , la charge d'un électron et I la force ionique du liquide, $I = \frac{1}{2} \sum c_i z_i^2$, c_i étant la concentration en ions i de valence z . La longueur de Debye, κ^{-1} , décroît avec la concentration ionique du solvant c_i . Donc, si la force ionique est trop importante, les charges portées par les particules sont fortement écrantées et la suspension n'est plus stable.

- **Interactions de contact :**

Pour une suspension de fibres diluée, les interactions de contact entre fibres sont quasi absentes, alors qu'en régime semi-dilué, elle deviennent significatives, et prennent une importance majeure en régime concentré. Du fait que la distance moyenne entre fibres est faible, les fibres en écoulement se touchent constamment induisant des effets d'enchevêtrement et

de collision. Il est crucial de définir ces types d'interaction. De nombreux auteurs ont exprimé ces forces d'interaction fibre-fibre [Djalili-Moghaddam & Toll 2005], [Férec *et al.* 2009], [Lindström & Uesaka 2009]. En se basant sur les travaux de [Servais *et al.* 1999], l'idée est que, à des concentrations de fibres suffisamment élevées, les fibres en entrant en contact interagissent via des forces de friction, F_{frc} , et des forces de lubrification, F_l , en chaque point de contact comme illustré sur la figure 2.6. Dans son approche, [Toll 1993] exprime le

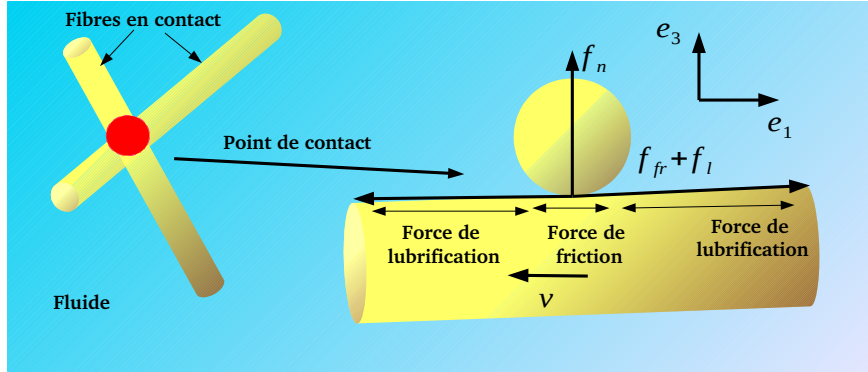


FIG. 2.6 – Représentation schématique d'un point de contact entre deux fibres. Les forces en présence sont la force hydrodynamique de lubrification, f_l , la force de friction, f_{fr} , et une force normale, f_n , qui peut avoir différentes origines : van der Waals, force élastostatique...

nombre moyen de fibres dont les axes croisent une enveloppe cylindrique autour d'une fibre test, et trouve :

$$n^i = \frac{8}{\pi} a_r f \phi \quad (2.37)$$

où, f , est un scalaire d'orientation dans le plan défini par les vecteurs d'orientation des 2 fibres :

$$f = \oint \oint |\vec{p} \wedge \vec{p}'| \psi(\vec{p}') \psi(\vec{p}) d\vec{p} d\vec{p}' \quad (2.38)$$

où, $\vec{p} \wedge \vec{p}' = \sin(\theta - \theta')$, θ , est l'angle d'orientation de la fibre test, θ' , l'angle d'orientation de la fibre voisine, et, $\psi(\theta)$, la fonction de distribution d'orientation de la fibre test. Les valeurs

de, f , sont calculées pour différents états d'orientation et on trouve qu'elles varient de 0 pour des fibres parfaitement alignées à $\pi/2$ pour des fibres ayant une orientation isotrope. Pour un nombre de fibres, n , par unité de volume, le nombre de points d'interaction N^i , par unité de volume est défini par :

$$N^i = \frac{1}{2}n^i n = \frac{16f\phi^2}{\pi^2 d^3} \quad (2.39)$$

Le nombre de contacts augmente ainsi avec la fraction volumique, ϕ , et le rapport d'aspect, a_r .

2.5.3 Critère de stabilité d'une suspensions de fibres

En absence de force répulsive stérique ou électrostatique la seule force qui peut contrebalancer l'interaction de WDV est la force hydrodynamique.

La présence des agrégats dans une suspension en écoulement peut être quantifiée par le rapport des forces adhésives caractéristiques, F , sur la force hydrodynamique caractéristique, $F_h = \Sigma_{12}d^2$:

$$N_A = \frac{F}{F_h} = \frac{F}{\Sigma_{12}d^2} \quad (2.40)$$

N_A est le paramètre d'agrégation, qui traduit le comportement rhéologique de la suspensions de fibres. En effet, si $N_A > 1$, les forces adhésives dominant les forces hydrodynamiques et gouvernent ainsi la rhéologie des suspensions, alors que si $N_A < 1$, celles-ci sont négligeables et seules les interactions hydrodynamiques jouent un rôle important. On peut alors déduire le taux de cisaillement caractéristique, $\dot{\gamma}_c$, qui détermine la destruction des agrégats :

$$\dot{\gamma}_c = \frac{F}{\eta_s d^2} \quad (2.41)$$

où, η_s , est la viscosité de la suspension. Dans la suite de ce travail de thèse , le chapitre 5 est consacré à l'étude de ce phénomène d'agrégation. Nous étudierons le comportement de suspensions de fibres pour des gammes de taux de cisaillement allant de $\dot{\gamma} \leq \dot{\gamma}_c$ où la suspension est agrégée jusqu'à $\dot{\gamma} \geq \dot{\gamma}_c$ où la suspension est complètement désagrégée.

2.6 Modèles de comportement des suspensions de fibres

Construire un modèle de loi de comportement des suspensions, revient à trouver une relation entre le tenseur de contrainte totale, $\bar{\bar{\Sigma}}$, de la suspension et le tenseur du taux de cisaillement, $\bar{\bar{e}}$. Par ailleurs la contrainte totale de la suspension, $\bar{\bar{\Sigma}}$, résulte de la contribution de la contrainte due au fluide suspendant, $\bar{\bar{\Sigma}}^0$, et de la contribution des fibres elles-mêmes, $\bar{\bar{\Sigma}}^p$.

$$\bar{\bar{\Sigma}} = \bar{\bar{\Sigma}}^0 + \bar{\bar{\Sigma}}^p \quad (2.42)$$

La contrainte, $\bar{\bar{\Sigma}}^0$, associée au fluide s'écrit (équation (1.2)) :

$$\bar{\bar{\Sigma}}^0 = -P\bar{\bar{I}} + 2\eta_0\bar{\bar{e}} \quad (2.43)$$

La difficulté réside à exprimer la contrainte associée aux particules, $\bar{\bar{\Sigma}}^p$, qui contient l'information essentielle sur les types d'interactions entre fluide-fibre et fibres-fibres et fait intervenir les tenseurs d'orientations des particules, $\bar{\bar{a}}_2$ et $\bar{\bar{a}}_4$ (équation (2.21)). Les premiers modèles proposés concernent principalement les suspensions de fibres en régime dilué et semi dilué [Cox 1970], [Cox 1971], [Batchelor 1971] et sont basés sur la théorie des corps minces. L'expression généralisée du modèle de comportement établie par [Tucker 1991] dans le cas de suspension de fibres en écoulement de cisaillement simple s'écrit :

$$\bar{\bar{\Sigma}} = \underbrace{-P\bar{\bar{I}} + \eta_0\bar{\bar{e}}}_{\doteq \bar{\bar{\Sigma}}^0} + \underbrace{\eta_0\phi [\xi_r\bar{\bar{e}} : \bar{\bar{a}}_4 + \xi_p(\bar{\bar{e}} \cdot \bar{\bar{a}}_2 + \bar{\bar{a}}_2 \cdot \bar{\bar{e}})]}_{\doteq \bar{\bar{\Sigma}}^p} \quad (2.44)$$

Pour finaliser le modèle, il reste à trouver les expressions analytiques des coefficients ξ_r , ξ_p , ainsi que les relations de fermeture entre les tenseurs d'orientation $\bar{\bar{a}}_4$ et $\bar{\bar{a}}_2$. Dans la suite nous citerons un certain nombre de propositions de modèles tentant d'exprimer ces coefficients rhéologiques. Notons qu'il ne faut pas confondre les coefficients rhéologiques ξ_p et ξ_r avec les coefficients de friction ζ_p et ζ_t introduit dans l'équation (2.29).

2.6.1 Modèles de comportement avec interactions à longue portée

Dans cette partie nous allons présenter un certain nombre de modèles théoriques qui diffèrent dans l'expression des coefficients ξ_r et ξ_p . Cependant, dans le cas des suspensions

de fibres non-browniennes, le coefficient $\xi_p = 0$ [Folgar & Tucker 1984]. L'équation (2.44) peut alors s'écrire :

$$\bar{\bar{\Sigma}} = \underbrace{-P\bar{I} + \eta_0\bar{e}}_{\doteq\Sigma^0} + \underbrace{\eta_0\phi[\xi_r\bar{e} : \bar{a}_4]}_{\doteq\Sigma^P} \quad (2.45)$$

ce qui donne :

$$\bar{\bar{\Sigma}} = \underbrace{-P\bar{I} + \eta_0\bar{e}}_{\doteq\Sigma^0} + \underbrace{\eta_f[\bar{e} : \bar{a}_4]}_{\doteq\Sigma^P} \quad (2.46)$$

Ici, $\eta_f = \eta_0\phi\xi_r$, représente la viscosité due à la contribution des fibres et ne dépend donc que du rapport d'aspect des fibres, a_r et de leur fraction volumique, ϕ . En régime dilué et semi dilué, pour des particules non browniennes et en absence d'interactions colloïdales, la contrainte, Σ^P , associée aux particules est d'origine purement hydrodynamique. A partir de l'équation (2.46), et dans le cas d'un cisaillement simple, nous pouvons exprimer la contrainte tangentielle dans de la suspension $\Sigma_{12} = \eta_s \cdot \dot{\gamma}$:

$$\Sigma_{12} = \eta_0\dot{\gamma} + \eta_f\dot{\gamma} \langle p_1^2 p_2^2 \rangle \quad (2.47)$$

ce qui donne pour la viscosité de la suspension :

$$\eta_s = \eta_0 + \eta_f \langle p_1^2 p_2^2 \rangle \quad (2.48)$$

et les deux différences de contraintes normales, N_1, N_2 :

$$N_1 = \Sigma_{11} - \Sigma_{22} = \eta_f\dot{\gamma} (\langle p_1^3 p_2 \rangle - \langle p_2^3 p_1 \rangle) \quad (2.49)$$

$$N_2 = \Sigma_{22} - \Sigma_{33} = \eta_f\dot{\gamma} (\langle p_2^3 p_1 \rangle - \langle p_1 p_2 p_3^2 \rangle) \quad (2.50)$$

qui peuvent être réécrites sous la forme :

$$N_1 = \Sigma_{11} - \Sigma_{22} = \eta_f\dot{\gamma}\Xi_1[\Psi(\vec{p})] \quad (2.51)$$

$$N_2 = \Sigma_{22} - \Sigma_{33} = \eta_f\dot{\gamma}\Xi_2[\Psi(\vec{p})] \quad (2.52)$$

où $\Xi_1[\Psi(\vec{p})]$ et $\Xi_2[\Psi(\vec{p})]$ sont la première et la deuxième différence de contraintes normales adimensionnées. La détermination des fonctions rhéologiques dépend donc de la viscosité

associée aux fibres η_f , et des moyennes d'orientation. Nous citerons les modèles les plus couramment utilisés pour les expressions analytiques de η_f :

– **Modèle de [Batchelor 1970]** :

[Batchelor 1970] exprime la viscosité due à la contribution des fibres, η_f , dans le cas d'une suspension de fibre diluée, où il considère que les particules sont indépendantes d'un point de vue hydrodynamique et qu'il n'y a aucun contact entre fibres. La contribution des fibres à la viscosité est due uniquement aux interactions hydrodynamiques entre les fibres et le fluide :

$$\eta_f^d = \frac{2\phi a_r^2 \eta_0 \epsilon f(\epsilon)}{3} \quad (2.53)$$

où l'indice d se réfère au terme "dilué", et $\epsilon = [\ln(2a_r)]^{-1}$. Le facteur $f(\epsilon)$ est un terme de correction qui prend en compte le fait que le rapport d'aspect de la fibre, a_r est fini, alors que pour une particule de rapport d'aspect infini, $f(\epsilon) = 1$:

$$f(\epsilon) = \frac{1 + 0.64\epsilon}{1 - 1.5\epsilon} + 1.659\epsilon^2 \quad (2.54)$$

Dans le cas d'une suspension de fibres semi-diluée et dans la limite de $a_r \gg 1$, [Batchelor 1971] trouve :

$$\eta_f = \frac{4\phi a_r^2 \eta_0 f(\epsilon)}{3 \ln(\pi/\phi)} \quad (2.55)$$

– **Modèle de [Mackaplow & Shaqfeh 1996]** :

[Mackaplow & Shaqfeh 1996] ont étendu la théorie de [Batchelor 1971] pour prendre en compte les interactions hydrodynamiques entre deux corps et trouvent pour l'expression de η_f :

$$\eta_f^{2-corps} = \eta_f^d + \frac{8A\phi^2 a_r^4 \eta_0 \epsilon^3}{3\pi} \quad (2.56)$$

où A est une constante qui dépend de l'orientation des fibres, dans le cas de fibres alignées, $A = A_{\parallel} = 0.206$, alors que pour une distribution d'orientation isotrope des fibres, $A = A_{\odot} = 0.222$

– **Modèle de [Shaqfeh & Fredrickson 1990]** :

[Shaqfeh & Fredrickson 1990] développent la théorie de Batchelor en prenant en compte les interactions hydrodynamiques multi-corps, et trouvent une expression pour

η_f , valable en régime dilué et semi-dilué :

$$\eta_f^{n-corps} = \frac{4\phi a_r^2}{3[\ln(1/\phi) + \ln(\ln(1/\phi)) + A]} \quad (2.57)$$

où A est une constante qui dépend de l'orientation des fibres et est égale à $A = 0.159$, si les fibres ont une orientation parallèle, et $A = -0.663$, dans le cas d'une distribution d'orientation isotrope.

– **Modèle de [Dinh & Armstrong 1984]** :

[Dinh & Armstrong 1984] développent une équation rhéologique en régime semi-dilué et expriment η_f en faisant intervenir la distance moyenne entre fibres h_e et trouvent :

$$\eta_f = \frac{a_r^2 \phi}{3 \ln(2h_e/d)} \quad (2.58)$$

où h_e :

$$h_e = \left\{ \begin{array}{l} \frac{d}{2} \sqrt{\frac{\pi}{\phi}} \quad , \text{ orientation alignée;} \\ \frac{\pi d}{4\phi a_r} \quad , \text{ orientation isotrope} \end{array} \right\} \quad (2.59)$$

Finalement pour trouver l'expression générale des fonctions rhéologiques η_s , N_1 et N_2 , (voir equations (2.48) et (2.50)), il reste à exprimer les composantes des tenseurs d'orientation : $\langle p_1^2 p_2^2 \rangle$, $\langle p_1^3 p_2 \rangle$, $\langle p_2^3 p_1 \rangle$, et $\langle p_1 p_2 p_3^2 \rangle$, en fonction du rapport d'aspect, a_r et de la concentration ϕ .

2.6.2 Modèles de comportement avec interactions à courte portée : contact

Lorsque la concentration en fibres augmente, les interactions entre fibres à longue portée ne sont plus dominantes. Pour prédire les fonctions rhéologiques η_s , N_1 et N_2 , il faut alors tenir compte des interactions à courte portée, ce qui représente à ce jour un challenge. Dans cette partie nous citerons un certain nombre de travaux d'auteurs qui proposent des modèles de lois de comportement en régime non-dilué.

– **Modèle de [Folgar & Tucker 1984]** :

Folgar & Tucker proposent un modèle incluant une diffusion dans l'équation de *Jeffery*, voir équation (2.23), où $D_r = C_i \dot{\gamma}$, est le coefficient de diffusion défini dans l'équation

(2.18). La loi de comportement, équation (2.45) s'écrit alors, pour des particules non-browniennes avec un terme de diffusion [Tucker 1991] :

$$\Sigma = \underbrace{-P\delta + \eta_0\bar{e}}_{\doteq\Sigma^0} + \underbrace{\eta_0\phi [\xi_r\bar{e} : \bar{a}_4 + 2\xi_F C_i \dot{\gamma}\bar{a}_2]}_{\doteq\Sigma^P} \quad (2.60)$$

Ce qui donne pour l'expression de la viscosité de la suspension, η_s , définie dans l'équation (2.48) :

$$\eta_s = \eta_0 + \eta_f \langle p_1^2 p_2^2 \rangle + C_i \xi_F \langle p_1 p_2 \rangle \quad (2.61)$$

Ainsi en utilisant la relation de fermeture quadratique, équation (2.24), on peut exprimer la composante du tenseur d'orientation d'ordre 2, $\langle p_1 p_2 \rangle$, en terme de la composante du tenseur d'orientation d'ordre 4, $\langle p_1^2 p_2^2 \rangle$. Le dernier terme dans l'équation (2.61), exprime les interactions entre fibres provoquant une diffusion, ce terme est proportionnel au coefficient rhéologique ξ_F , et à la constante de *Folgar & Tucker*, C_i . [Hinch & Leal 1972] proposent la relation suivante du coefficient rhéologique ξ_F :

$$\xi_F = \frac{3a_r^2}{\ln(2a_r) - 0.5} \quad (2.62)$$

ξ_F , ne dépend que du rapport d'aspect, a_r . Plusieurs auteurs ont tenté d'exprimer la constante de *Folgar & Tucker*, C_i . A partir de plusieurs données expérimentales sur les procédés d'injection des composites, d'observations et de simulations numériques, [Bay 1991] propose une loi exponentielle pour le coefficient C_i :

$$C_i = 0.0184 \exp(-0.7418a_r\phi) \quad (2.63)$$

[Fan *et al.* 1998] proposent l'expression suivante de C_i basée sur le calcul du coefficient de diffusion à partir de simulations directes sur les suspensions de fibres :

$$C_i = 0.03 [1 - \exp(-0.224\phi a_r)] \quad (2.64)$$

[Ranganathan & Advani 1991] évaluent la distance moyenne entre fibres h_e et proposent une relation simple entre le coefficient de diffusion et la distance moyenne

entre fibres h_e , pour des suspensions de fibres semi-diluées :

$$C_i = \frac{C_i^*}{(h_e/L)} \quad (2.65)$$

où C_i^* est une constante à déterminer expérimentalement et h_e est définie par l'équation (2.59). Les modèles proposés sous-estiment la viscosité de la suspension quand on la compare aux données expérimentales.

– **Modèle avec contact lubrifiant :**

– **Modèle de [Sundararajakumar & Koch 1997] :**

[Sundararajakumar & Koch 1997] proposent un modèle pour décrire l'interaction entre fibres, cependant ils négligent les interactions hydrodynamiques à longue portée et supposent que les fibres interagissent uniquement via les forces de lubrification. La force de lubrification résistant à un mouvement relatif d'une force normale est liée à la distance de séparation minimale entre deux fibres, $h_{\alpha\beta}(t)$.

[Sundararajakumar & Koch 1997] proposent pour estimer les interactions de lubrification, $F_{\alpha\beta}^{lub}$, entre fibres qui se rapprochent dans une direction qui n'appartient pas au plan qu'elles définissent l'expression suivante :

$$F_{\alpha\beta}^{lub} = -\frac{6\pi\eta_0 d^2}{h_{\alpha\beta}(t)} \frac{dh_{\alpha\beta}}{dt} \quad (2.66)$$

avec $h_{\alpha\beta}(t)$ qui décroît exponentiellement avec le rapport d'aspect a_r au carré :

$$h_{\alpha\beta}(t) \sim h_{\alpha\beta}(0) \exp(-a_r^2) \quad (2.67)$$

Dans le cas où les fibres s'approchent l'une de l'autre dans le plan qu'elles définissent, ils proposent la relation linéaire suivante :

$$F_{\alpha\beta}^{lub} = \pi\eta_0 U \epsilon^{3/2}, \quad \text{avec} \quad \epsilon = \frac{h}{d} \quad (2.68)$$

où, U est la vitesse relative des deux fibres. Dans leur comparaison avec les expériences, ils montrent que ce dernier modèle surestime la viscosité et les différences de

contraintes normales d'un facteur 2, lorsque $nL^3 > 150$, ce qui doit être dû au fait que les contacts entre fibres sont beaucoup plus importants qu'il ne devraient l'être en réalité, alors que le modèle où les fibres ont une distribution dans les 3 directions est en accord avec les expériences à 15% près.

-Modèle de [Fan *et al.* 1998] :

[Fan *et al.* 1998] développent une simulation numérique sur des suspensions de fibres non-diluées, en écoulement de cisaillement simple, qui intègre à la fois les interactions à courte portée et les interactions à longue portée, en négligeant le mouvement brownien. La méthode consiste à modéliser l'interaction de courte portée par les forces de lubrification. Les auteurs adoptent la méthode de [Yamane *et al.* 1995] selon laquelle les interactions hydrodynamiques de lubrification deviennent très grandes lorsque les fibres entrent en contact. Les interactions hydrodynamiques de longue portée, quant à elles, sont évaluées à partir de la théorie des corps minces [Batchelor 1970]. Ainsi, les forces hydrodynamiques totales et le couple (équation 2.27) se composent des contributions dues aux interactions à longue portée et à courte portée. [Yamane *et al.* 1995] expriment la force de lubrification entre deux fibres notées, α , β , en terme de la distance de séparation entre les deux fibres, $h_{\alpha\beta}$ comme suit :

$$J_{\alpha\beta}^{lub} = -\kappa(h_{\alpha\beta})\dot{h}_{\alpha\beta}n_{\alpha\beta} \quad (2.69)$$

où, $\dot{h}_{\alpha\beta} = \frac{dh_{\alpha\beta}}{dt}$, et, $\kappa(h_{\alpha\beta})$, vaut :

$$\kappa(h_{\alpha\beta}) = \frac{3\pi\eta_0}{\sin\delta} \frac{d^2}{h_{\alpha\beta}} \quad (2.70)$$

Pour exprimer la viscosité relative de la suspension, [Fan *et al.* 1998] utilise l'expression de [Phan-Thien & Graham 1991] qui est donnée par :

$$\eta_r = 1 + 2f(\phi, a_r) \langle p_1^2 p_2^2 \rangle \quad (2.71)$$

où le coefficient $f(\phi, a_r)$, est similaire au coefficient η_f modifié dans le cas de suspensions de fibres non-diluées

$$f(\phi, a_r) = \frac{a_r^2 \phi (2 - \phi/\phi^*)}{(4 \ln(2a_r) - 1.5)(1 - \phi/\phi^*)^2} \quad (2.72)$$

Le paramètre ϕ^* représente la concentration de packing de la suspension et est déterminée de manière empirique à partir des données de [Kitano *et al.* 1981], pour des fibres de rapport d'aspect $5 < a_r < 30$:

$$\phi^* = 0.53 - 0.013a_r \quad (2.73)$$

Pour des fibres de rapport d'aspect $a_r > 30$, [Solomon & Spicer 2010], estiment la concentration du packing à $\phi^* \sim \frac{5.4}{a_r}$.

Les composantes des tenseurs, \bar{a}_4 et \bar{a}_2 , qui sont respectivement, $\langle p_1^2 p_2^2 \rangle$, et

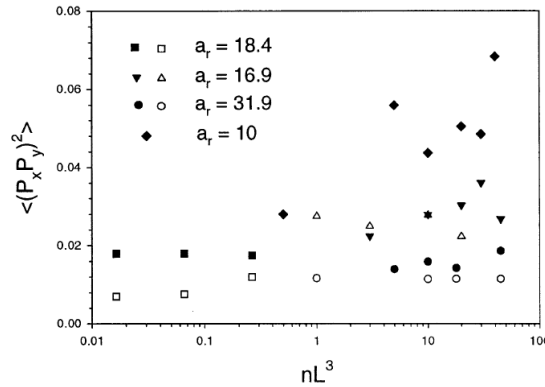


FIG. 2.7 – Comparaison des valeurs de $\langle p_1^2 p_2^2 \rangle \equiv \langle p_x^2 p_y^2 \rangle$, obtenues par simulation avec les données expérimentales de [Stover *et al.* 1992] et [Anczurowski & Mason 1967]. Figure extraite de [Fan *et al.* 1998].

$\langle p_1 p_2 \rangle$ sont déterminées par les simulations directes. La figure 2.7 montre que $\langle p_1^2 p_2^2 \rangle$ croît avec nL^3 , en d'autres termes, que les forces de lubrification accroissent l'alignement des fibres à grande concentration. Ces composantes sont alors injectées dans l'équation (2.23), par laquelle, les auteurs déterminent le coefficient de diffusion de Folgar & Tucker défini dans l'équation (2.64).

-Modèle de [Férec *et al.* 2009] :

[Férec *et al.* 2009] établissent une loi de comportement qui comprend aussi les interactions hydrodynamiques à longue portée et les interactions à courte portée, et proposent une relation simple pour modéliser les forces de lubrification. Ils les modélisent par une relation linéaire entre les forces et la vitesse relative $\dot{h}_{\alpha\beta}$ au point de contact entre deux fibres notées α, β :

$$F^{lub} = d\eta_0\kappa\dot{h}_{\alpha\beta} \quad (2.74)$$

où le facteur κ est une constante sans dimension à déterminer expérimentalement. La Figure 2.8 montre une représentation schématique du point d'interaction entre deux fibres dont le vecteur d'orientation est décrit par, \vec{p}^α et \vec{p}^β . La distance entre le centre de masse de chaque fibre et le point de contact est notée s^α et s^β respectivement. La vitesse relative des deux fibres au rapprochement du point de contact $\dot{h}_{\alpha\beta}$ est exprimée dans le repère co-rotationnel :

$$\dot{h}_{\alpha\beta}^{crf} = \frac{s^\beta}{2} \left(\bar{\bar{e}} : \vec{p}^\beta - \bar{\bar{e}} : \vec{p}^\beta \otimes \vec{p}^\beta \otimes \vec{p}^\beta \right) - \frac{s^\alpha}{2} \left(\bar{\bar{e}} : \vec{p}^\alpha - \bar{\bar{e}} : \vec{p}^\alpha \otimes \vec{p}^\alpha \otimes \vec{p}^\alpha \right) \quad (2.75)$$

Cette equation est injectée alors dans l'expression de la force de lubrification (équation (2.74)), on retrouve une relation linéaire en taux de cisaillement. Pour exprimer les valeurs moyennes des forces de contacts et du couple, [Férec *et al.* 2009] adoptent l'approche de [Sandstrom & Tucker 1993], qui consiste à considérer la force de lubrification totale pondérée par la probabilité de contact entre fibres. [Sandstrom & Tucker 1993] et [Doi & Edwards 1988] évaluent la probabilité de contact P_c et proposent la relation suivante :

$$P_c = 2nd|\vec{p}^\alpha \times \vec{p}^\beta| \psi_p^\beta d\vec{p}^\beta ds^\alpha ds^\beta \quad (2.76)$$

La force de lubrification élémentaire pondérée par la probabilité de contact s'écrit alors :

$$dF^{lub} = 2\kappa\eta_0nd^2\dot{h}_{\alpha\beta}^{crf} |\vec{p}^\alpha \times \vec{p}^\beta| \psi_p^\beta d\vec{p}^\beta ds^\alpha ds^\beta \quad (2.77)$$

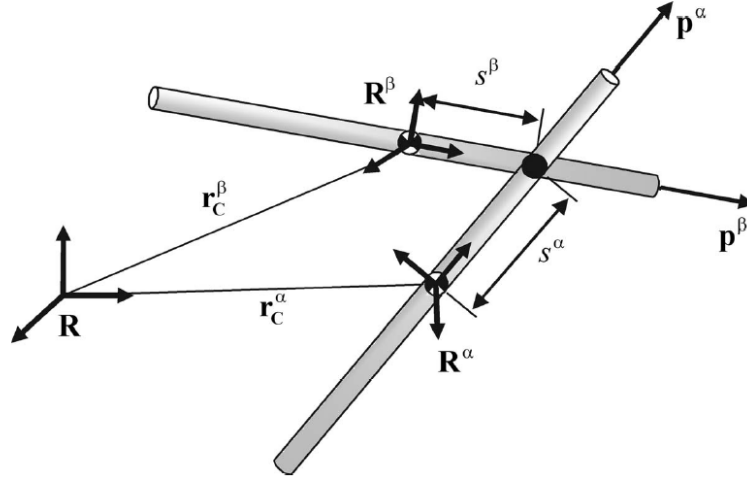


FIG. 2.8 – Représentation schématique d'une fibre test α en interaction avec une fibre voisine, β .
Figure extraite de [Férec et al. 2009]

La loi constitutive s'écrit alors comme une contribution du fluide et des deux interactions hydrodynamiques :

$$\bar{\Sigma} = -P\bar{I}\eta_0\bar{e} + \eta_0\phi\frac{a_r^2}{6\pi}X_A\bar{e} : a_4 + n \int_{p^{\tilde{\alpha}}} \int s^{\alpha} p^{\tilde{\alpha}} dF^{lub} \psi_p^{\alpha} dp^{\tilde{\alpha}} \quad (2.78)$$

où X_A est le coefficient de traînée et est un paramètre ajustable du modèle, en utilisant les équations ((2.75) et (2.77)) dans l'équation (2.78), la relation finale pour la contrainte s'écrit alors :

$$\bar{\Sigma} = -P\bar{I}\eta_0\bar{e} + \eta_0\phi\frac{a_r^2}{6\pi}X_A\bar{e} : \bar{a}_4 + \eta_0\phi^2\frac{4a_r^2}{3\pi^2}k\bar{e} : \bar{b}_4 \quad (2.79)$$

Le dernier terme de l'équation (2.79) fait apparaître le terme d'interaction dû à la présence des forces de lubrification, τ_{int} :

$$\tau_{int} = \eta_0\phi^2\frac{4a_r^2}{3\pi^2}k\bar{e} : \bar{b}_4 \quad (2.80)$$

où \bar{b}_4 , est appelé tenseur d'interaction d'ordre 4 qui apparaît avec le tenseur d'interaction d'ordre 2, \bar{b}_2 dans l'équation d'évolution du tenseur d'orientation \bar{a}_2 . Les tenseurs d'interaction \bar{b}_2 et \bar{b}_4 sont construits par le produit dyadique du vecteur d'orientation de la fibre p^{α} , pondérés par la quantité scalaire, $|p^{\tilde{\alpha}} \times p^{\tilde{\beta}}|$, qui représente le potentiel

de *Onsager*, [Onsager 1949] et sont égaux à :

$$\bar{b}_2 = \int_{p^\alpha} \int_{p^\beta} p^{\bar{\alpha}} \otimes p^{\bar{\alpha}} | p^\alpha \times p^\beta | \psi_p^\alpha \psi_p^\beta dp^\beta dp^\alpha \quad (2.81)$$

$$\bar{b}_4 = \int_{p^\alpha} \int_{p^\beta} p^\alpha \otimes p^\alpha \otimes p^\alpha \otimes p^\alpha | p^\alpha \times p^\beta | \psi_p^\alpha \psi_p^\beta dp^\beta dp^\alpha \quad (2.82)$$

[Férec *et al.* 2009] évaluent le tenseur d'interaction \bar{b}_2 , en fonction du tenseur d'orientation de la fibre \bar{a}_2 et proposent la relation suivante :

$$\bar{b}_2 = \frac{3\pi}{8} (\bar{a}_2 - \bar{a}_4 : \bar{a}_2) \quad (2.83)$$

Le tenseur d'interaction \bar{b}_4 est alors évalué par une approximation de fermeture quadratique similaire à l'équation (2.24) :

$$\bar{b}_4 = \frac{1}{f} (\bar{b}_2 \otimes \bar{b}_2) \quad (2.84)$$

où f est le scalaire d'orientation défini dans l'équation (2.38). Notons que le modèle de [Férec *et al.* 2009] se réduit au modèle de [Djalili-Moghaddam & Toll 2005] si le coefficient X_A est celui proposé par [Shaqfeh & Fredrickson 1990], et que la suspension est peu concentrée. Alors, ϕ^2 est très petit et le terme d'interaction τ_{int} est négligeable, ce qui permet de retrouver la loi rhéologique proposée par [Shaqfeh & Fredrickson 1990]. Cependant le modèle de [Férec *et al.* 2009] est valable pour des suspensions de fibres semi diluées, du fait que lorsque la concentration de fibres augmente, il faut considérer les interactions dues au contacts direct.

- **Modèle avec contact frictionnel : Modèle de [Lindström & Uesaka 2009] :** [Lindström & Uesaka 2009] développent des simulations numériques pour des suspensions de fibres, en sectionnant les fibres en plusieurs morceaux, où ils modélisent aussi les interactions à courte portée par les forces de lubrification $F^{\vec{lub}}$ auxquelles il rajoutent la contribution de forces de friction $F^{\vec{fric}}$ et une force normale $F^{\vec{n}}$ au point de contact, comme illustré sur la figure 2.6. La force, $f_{\alpha\beta}^{\vec{}}$ et le couple total $\Gamma_{\alpha\beta}$ s'exerçant

sur un segment de fibre s'écrivent :

$$\vec{f}_{\alpha\beta} = F^{lub} + F^{fric} + \vec{F}^n \quad (2.85)$$

$$\vec{\Gamma}_{\alpha\beta} = s_\alpha \vec{f}_{\alpha\beta} \quad (2.86)$$

où, $s_\alpha = \frac{ds_\alpha}{dt}$. F^{lub} est la force de lubrification proposée par [Yamane *et al.* 1995], équation (2.69), F^{fric} est la force de friction perpendiculaire à F^n et est estimée en supposant une loi coulombienne :

$$F^{fric} = \mu_{fric} \vec{F}^n \quad (2.87)$$

où μ_{fric} est le coefficient de friction, \vec{F}^n , est la force normale d'origine répulsive, qui croit de manière exponentielle avec le chevauchement de surface des fibres, pour éviter leur recouvrement [Yamamoto & Matsuoka 1995], [Schmid *et al.* 2000]. Cette force prend en compte alors, les effets de rugosité de surface des fibres, δ_s , et la distance moyenne séparant les fibres $h_{\alpha\beta}$. [Lindström & Uesaka 2007] suggèrent l'expression suivante pour la force normale F^n :

$$F^n = \begin{cases} F_0 \exp\left(-\frac{h_{\alpha\beta} + \delta_s}{h_0}\right) & \text{si } h_{\alpha\beta} \leq -\delta_s \\ F_0 \left(\frac{1}{2} - \frac{h_{\alpha\beta}}{2\delta_s}\right) & \text{si } -\delta_s < h_{\alpha\beta} \leq \delta_s \\ 0 & \text{si } h_{\alpha\beta} > \delta_s \end{cases} \quad (2.88)$$

Le signe (−) vient du fait que la distance de séparation moyenne entre fibres, $h_{\alpha\beta}$, peut être négative dans le cas d'un enchevêtrement des fibres. F_0 et δ_0 sont des constantes. En régime semi-dilué, les contacts mécaniques entre fibres sont rares et sont donc considérés comme des événements discrets, qui ont lieu avec une certaine densité de fréquence de collision, qui représente ainsi le nombre de contacts mécaniques par unité de volume et par unité de temps :

$$\nu_e = n^2 L^3 \gamma \frac{\ln r_e}{r_e a_r} \quad (2.89)$$

où r_e est le rapport d'aspect équivalent défini pour les fibres cylindriques :

$$r_e \approx 1.24a_r(\ln a_r)^{-0.5} \quad (2.90)$$

Le scénario proposé par les simulations de [Lindström & Uesaka 2009] repose sur le fait que les fibres dans la suspension sont séparées en deux fractions disjointes : une population de fraction ϕ_d contenant toutes les fibres dont le mouvement est perturbé à l'instant $\tau_i(t)$, par un contact mécanique et une autre population de fraction ϕ_u contenant des fibres non perturbées par des contacts mécaniques, i.e, des fibres isolées. Le nombre total de fibres par unité de volume n et la fonction de distribution d'orientation $\psi(p)$ sont la somme des contributions des deux populations ϕ_d et ϕ_u :

$$n = n_d + n_u \quad (2.91)$$

$$\Psi(p) = \frac{n_d}{n}\psi_d(p) + \frac{n_u}{n}\psi_u(p) \quad (2.92)$$

où $n_d = 2\nu_c\Delta\tau$, et $0 < t - \tau_i < \Delta\tau$, ainsi les grandeurs rhéologiques sont calculées à partir de la méthode de [Batchelor 1971] qui traite la partie hydrodynamique et l'effet des forces non-hydrodynamiques est pris en compte dans la simulation pour calculer la fonction de distribution d'orientation, ce qui donne pour les deux différences de contraintes normales :

$$N_1 = \eta_f\dot{\gamma}\Xi_1[\Psi(\vec{p})] \quad (2.93)$$

$$N_2 = \eta_f\dot{\gamma}\Xi_2[\Psi(\vec{p})] \quad (2.94)$$

où, $\Xi_1[\Psi(\vec{p})]$ et $\Xi_2[\Psi(\vec{p})]$, sont définies dans l'équation (2.52), et η_f , la viscosité due à la contribution de fibres, donnée par l'expression proposée par [Mackaplow & Shaqfeh 1996], pour des fibres alignées. Dans leur simulation, ils font l'hypothèse que $\psi_u(\vec{p})$ est symétrique dans le plan de cisaillement, de ce fait N_1 et N_2

sont dues seulement à la fraction de fibres ϕ_d qui subissent les contacts mécaniques :

$$N_1 = g(nL^2d, \mu_{frc})nL^3 \frac{\ln r_e \eta_f}{r_e a_r \eta_s} \quad (2.95)$$

$$N_2 = K_T nL^3 \frac{\ln r_e \eta_f}{r_e a_r \eta_s} \quad (2.96)$$

où le coefficient, $g(nL^2d, \mu_{frc}) = 0.18 + 0.49nL^2d\mu_{frc}$, est un paramètre qui prend en compte l'effet de la friction et de la concentration, et $K_T = K^h - K^m = -0.010$. Ces coefficients sont déterminés par un fit linéaire des résultats de la simulation. La figure 2.9 montre deux résultats intéressants, d'une part N_1 augmente avec le coefficient de friction μ_{frc} et le paramètre de concentration nL^2d , ceci prouve bien que la première différence de contraintes normales trouvent son origine dans les interactions non hydrodynamiques. D'autre part la comparaison entre N_2^h et N_2^m , montre que l'effet du contact mécanique ne peut être négligée même en absence de friction $\mu_{frc} = 0$, et le signe négatif de N_2^m est dû aux forces de contact mécanique.

La viscosité spécifique $\eta_{spc} = \frac{\eta_s}{\eta_0} - 1$ est calculée à partir de l'hypothèse qu'en régime semi-dilué, l'équation de *Jeffery* reste valable, on s'attend alors à ce que η_{spc} soit égale à :

$$\eta_{spc} = \bar{\eta}_0 \left(\frac{1}{r_e} \frac{\eta_f}{\eta_0} \right)^\lambda \quad (2.97)$$

avec λ , un exposant numérique à déterminer de manière phénoménologique. Une comparaison avec la viscosité spécifique obtenue par la théorie de [Batchelor 1971] et [Rahnama *et al.* 1995] et les données de simulation est illustrée sur la figure 2.10 et montre un assez bon accord pour $\frac{\eta_f}{\eta_0 r_e} < 0.1$, ce qui mène à conclure que l'origine de la viscosité de la suspension est dominée par les forces hydrodynamiques. De plus, pour $\frac{\eta_f}{\eta_0 r_e} > 0.1$, contrairement à la théorie [Rahnama *et al.* 1995], la théorie de [Batchelor 1971] et les simulations [Lindström & Uesaka 2009] restent valables.

– **Modèle avec contact collisionnel avec volume exclu maintenu :**

[Snook *et al.* 2014] proposent dans leur modèle de simuler le comportement de suspensions de fibres concentrées non-browniennes. Le modèle comprend les interactions hydrodynamiques entre fibres et fluide et une contribution des interactions à courte portée, modélisées par une force répulsive pour maintenir le volume exclu. Les interac-

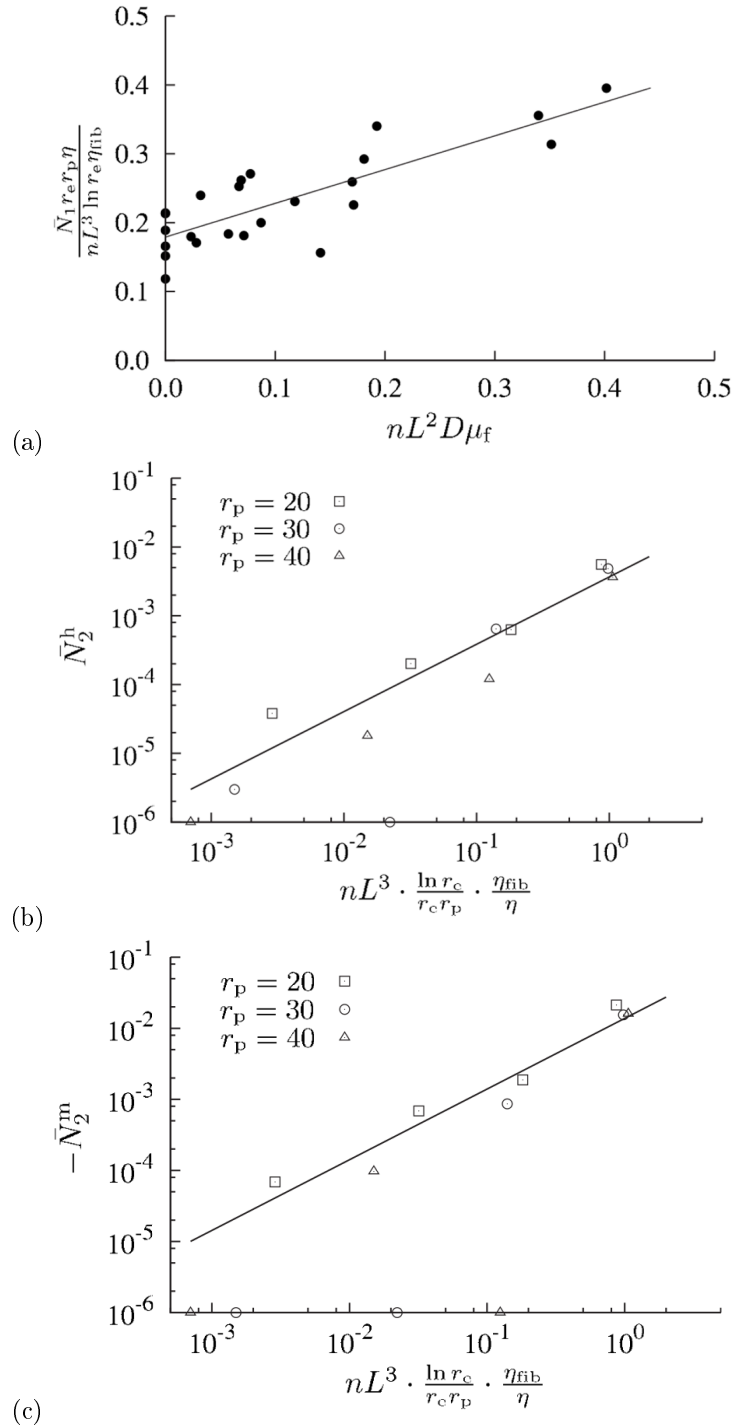


FIG. 2.9 – Figure (a) Effet du coefficient de friction μ_{frc} et nL^2d sur N_1 . Figure (b). Composante hydrodynamique N_2^h en fonction du paramètre $nL^3 \frac{\ln r_c}{r_c r_p} \frac{\eta_f}{\eta}$. Figure (c). Composante mécanique N_2^m en fonction du paramètre $nL^3 \frac{\ln r_c}{r_c r_p} \frac{\eta_f}{\eta}$. Simulation de N_1^h et N_2^m sont effectuées pour $\mu_{frc} = 0$ [Lindström & Uesaka 2009].

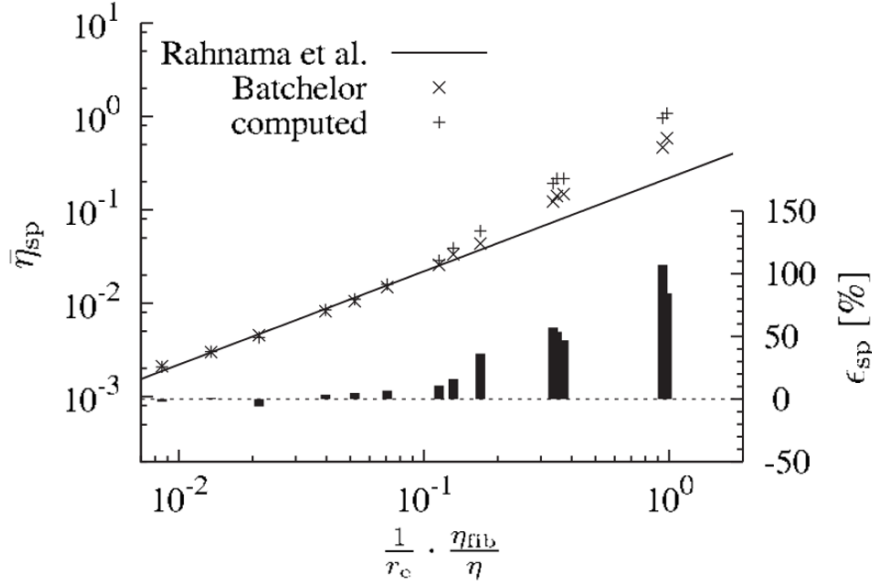


FIG. 2.10 – Comparaison entre la viscosité spécifique η_{sp} calculée par la théorie de [Batchelor 1971] et les simulations de [Lindström & Uesaka 2009]. Les données de η_{sp} sont calculées à partir du jeu de paramètres suivant : $a_r \in [20, 40]$, $nL^3 \in [1, 40]$, et $\mu_{frc} = 0$. La droite représente les prédictions théoriques de [Rahnama et al. 1995]. Les bars en noir représentent le pourcentage d'erreur. Figure extraite de [Lindström & Uesaka 2009].

tions hydrodynamiques à longue portée et de lubrification sont ignorées. La contrainte totale dans la suspensions correspond alors à la contrainte due à la contribution hydrodynamique c.f equation (2.45) à la quelle se rajoute une contrainte due au contact :

$$\bar{\bar{\Sigma}} = \underbrace{-P\bar{I} + \eta_0\bar{e}}_{\doteq \Sigma^0} + \underbrace{\eta_f [\bar{e} : \bar{a}_4] - \frac{N_c}{V} h_{\alpha\beta}^{\vec{}} \cdot f_{\alpha\beta}^{\vec{}}}_{\doteq \Sigma^P} \quad (2.98)$$

où, N_c , est le nombre total de contacts entre les fibres dans un volume, V , $|h_{\alpha\beta}^{\vec{}}|$, est la distance de séparation minimum entre deux fibres, et $f_{\alpha\beta}^{\vec{}}$ représente la force due aux collisions entre fibres et modélisées par une force répulsive :

$$|f_{\alpha\beta}^{\vec{}}| = \begin{cases} O & \text{si } |h_{\alpha\beta}^{\vec{}}| > d_\epsilon \\ \pm f_0 \frac{h_{\alpha\beta}^{\vec{}}}{|h_{\alpha\beta}^{\vec{}}|} & \text{si } |h_{\alpha\beta}^{\vec{}}| \leq d_\epsilon \end{cases} \quad (2.99)$$

où d_ϵ est la distance critique à laquelle le contact a lieu i.e. $|h_{\alpha\beta}^{\vec{}}| \leq d_\epsilon$, où, $d_\epsilon = 0.1d$, pour maintenir le volume exclu, et f_0 est la magnitude de la force répulsive et est

égale à :

$$f_0 = \frac{2\pi\eta_0 L^2}{\ln(2a_r)} \dot{\gamma} \quad (2.100)$$

Le coefficient η_f , est calculée par la théorie de [Mackaplow & Shaqfeh 1996]. Les grandeurs rhéologiques Σ_{12} , N_1 , et N_2 s'écrivent alors :

$$\Sigma_{12} = \eta_0 \dot{\gamma} + \eta_f \dot{\gamma} \langle p_1^2 p_2^2 \rangle - \frac{N_c}{V} \langle r_1 f_2 \rangle \quad (2.101)$$

$$N_1 = \eta_f \dot{\gamma} (\langle p_1^3 p_2 \rangle - \langle p_2^3 p_1 \rangle) - \frac{N_c}{V} (\langle r_1 f_1 \rangle - \langle r_2 f_2 \rangle) \quad (2.102)$$

$$N_2 = \eta_f \dot{\gamma} (\langle p_2^3 p_1 \rangle - \langle p_1 p_2 p_3^2 \rangle) - \frac{N_c}{V} (\langle r_2 f_2 \rangle - \langle r_3 f_3 \rangle) \quad (2.103)$$

où r_1, r_2, r_3 , sont les composantes du vecteur $\vec{r}_{ij} = \vec{x}_i + s_{ij}\vec{p}_i - \vec{x}_j + s_{ji}\vec{p}_j$, où s_{ij} est la

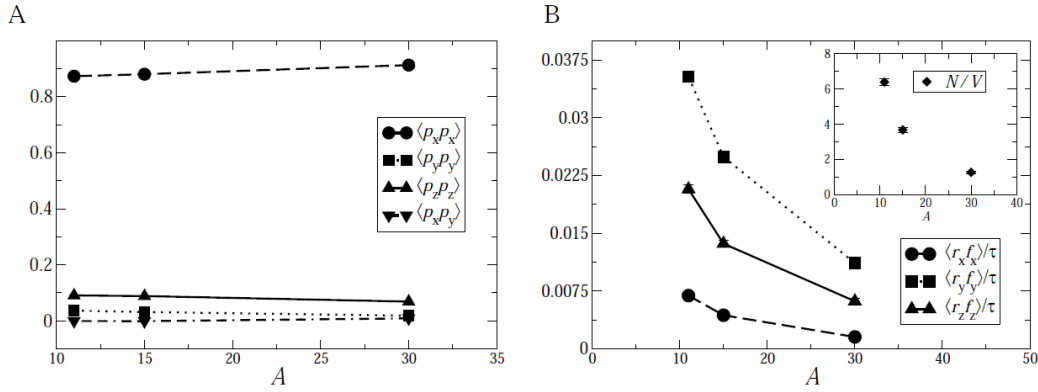


FIG. 2.11 – Figure (A) évolution des composantes du tenseur d'orientation d'ordre 2 qui contribuent à la partie hydrodynamique de la contrainte en fonction du rapport d'aspect des fibres, A , $nL^2d = 3$. Figure (B) évolution des composantes du tenseur d'interaction dû aux forces collisionnelles en fonction du rapport d'aspect, calculées à partir des simulations de [Snook et al. 2014] pour $nL^2d = 3$. $a_r \equiv A$. Figure extraite de [Snook 2015].

distance entre le barycentre de la fibre x_i est le point d'action de la force, $\vec{f}_{\alpha\beta}$, entre deux fibres séparées d'une distance $h_{\alpha\beta}$, dont les composantes sont, h_1, h_2 et h_3 . La Figure 2.11 (A) montre l'évolution des composantes des tenseurs d'orientation d'origine hydrodynamique évalués pour un écoulement stationnaire, en fonction du rapport d'aspect a_r , les tenseurs d'orientation présentent un profil plat, la figure montre que $\langle p_1 p_1 \rangle$ est largement plus que grand que $\langle p_2 p_2 \rangle$, $\langle p_3 p_3 \rangle$ et $\langle p_1 p_2 \rangle$, les simulations prédisent alors un fort alignement des fibres suivant la direction de l'écoulement. La figure 2.11 (B) montre une décroissance des tenseurs d'interaction,

$\langle r_i f_i \rangle$ avec le rapport d'aspect, la valeur de la composante du tenseur $\langle r_2 f_2 \rangle$ est plus grande que les deux autres, ce qui indique que la force de répulsion moyenne agit principalement dans la direction du gradient de vitesse, $\langle r_3 f_3 \rangle$ est plus grand que $\langle r_1 f_1 \rangle$, ce qui suppose qu'une composante de la force répulsive agit aussi suivant la direction de vorticit . L'encadr  de la figure montre aussi que le nombre de contacts N_c diminue avec le rapport d'aspect. Ces valeurs sont inject es dans les expressions de N_1 et N_2 ( quation (2.103)), [Snook *et al.* 2014] trouvent que les diff rences de contraintes normales sont dues principalement aux forces de contact, et sont de signe oppos  $N_1 < 0$, et, $N_2 > 0$ et leur magnitude $N_1 \sim -2N_2$. D'autre part, les r sultats des simulations num riques de [Snook *et al.* 2014] sur le tenseur d'orientation d'ordre 4, $\langle p_1^2 p_2^2 \rangle$, sont en bon accord avec les r sultats exp rimentaux de [Stover *et al.* 1992]. La valeur de la viscosit  de la suspension ainsi calcul e par les simulation est similaire   celle pr dite par [Mackaplow & Shaqfeh 1996].

2.7 Synth se des  tudes exp rimentales sur η_s , N_1 , N_2

Dans cette partie, nous exposerons l' tat de l'art sur les mesures exp rimentales des fonctions rh ologiques η_s , N_1 , N_2 et comparerons les r sultats avec ceux des simulations num riques et des pr dictions th oriques.

2.7.1 R sultats exp rimentaux sur la mesure des tenseurs d'orientation

Il existe peu de donn es exp rimentales sur la mesure de l'orientation des fibres, nous pouvons citer [Koch 1995] qui propose une relation empirique   partir des donn es exp rimentales de [Stover *et al.* 1992], sur l'observation de l'orientation des fibres en r gime semi-dilu , et estime la composante du tenseur d'orientation d'ordre 4, $\langle p_1^2 p_2^2 \rangle$, dans le cas d'un cisaillement simple :

$$\langle p_1^2 p_2^2 \rangle = \frac{0.371}{a_r} \quad (2.104)$$

Cette relation est confirm e par d'autres auteurs. [Rahnama *et al.* 1995] retrouvent cette relation   partir du calcul de la distribution des constantes des orbites pour des fibres de rapport d'aspect $a_r = 33$ et retrouvent ainsi comme pr dit par l' quation (2.104), \langle

$$p_1^2 p_2^2 >_{a_r=33} = 0.01.$$

[Petrich *et al.* 2000] mesurent expérimentalement les composantes des tenseurs, $\langle p_1^2 p_2^2 \rangle$, $\langle p_1^3 p_2 \rangle$, $\langle p_2^3 p_1 \rangle$ et $\langle p_1 p_2 p_3^2 \rangle$ pour des suspensions de fibres de deux rapports d'aspect $a_r = 50$, et 72 et $nL^2 d \in [0.1, 3]$. Les observations sur l'orientation des fibres sont effectuées en cisaillement simple à $\dot{\gamma} = 0.5s^{-1}$, pendant une période assez longue pour que les fibres atteignent une orientation stationnaire. Les valeurs de $\langle p_1^2 p_2^2 \rangle$ mesurées sont légèrement plus élevées que celles prévues par [Koch 1995]. Les mesures expérimentales sur les composantes des tenseurs $\langle p_2^3 p_1 \rangle$, et $\langle p_1 p_2 p_3^2 \rangle$ montrent que l'amplitude de ces tenseurs est négligeable devant $\langle p_1^3 p_2 \rangle$.

2.7.2 Résultats expérimentaux sur les mesures de viscosité

[Mackaplow & Shaqfeh 1996] effectuent des simulations numériques de la viscosité de cisaillement de suspensions fibres non browniennes, et calculent la distribution d'orientation de fibres à partir de la distribution des constantes d'orbite de [Rahnama *et al.* 1995]. L'accord entre la théorie et les simulations est assez bon dans la gamme de concentrations étudiées ($nL^3 < 10$). Comparées aux valeurs expérimentales de [Bibbo 1987], l'accord est assez bon jusqu'à ($nL^3 < 7$). Au-delà, les simulations et la théorie sous-estiment la viscosité de la suspension η_s .

La figure 2.12 montre une comparaison de la viscosité spécifique η_{spc} , calculée à partir des tenseurs d'orientation mesurés par [Petrich *et al.* 2000], où η_f est calculée à partir de l'expression proposée par [Mackaplow & Shaqfeh 1996] c.f équation (2.56) modifiée :

$$\eta_f^{2-corps} = \eta_f^d + \frac{8A\phi^2 a_r^4 \eta_0 \epsilon^3 f(\epsilon)}{3\pi} \quad (2.105)$$

où $f(\epsilon)$ est le terme de correction introduit par Batchelor tel que défini dans l'équation (2.54). La comparaison montre une tendance linéaire de la viscosité spécifique en fonction de $nL^2 d$, et un bon accord entre les simulations de [Sundararakumar & Koch 1997], et les résultats expérimentaux de [Bibbo 1987]. Ce qui signifie que les simulations de [Sundararakumar & Koch 1997] prédisent aussi bien l'orientation des fibres que la viscosité mesurée expérimentalement.

La figure 2.13 montre une comparaison entre les mesures de viscosité relative de

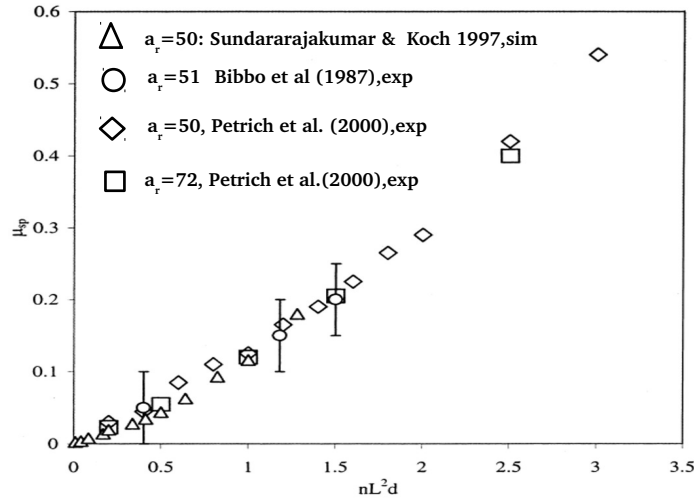


FIG. 2.12 – Viscosité spécifique η_{sp} en fonction de nL^2d , Comparaison entre les expériences de [Petrich *et al.* 2000], les simulations de [Sundararajakumar & Koch 1997] et les données expérimentales de [Bibbo 1987]. Les résultats montrent un bon accord. Figure extraite de [Sundararajakumar & Koch 1997]

[Petrich *et al.* 2000], le modèle de [Férec *et al.* 2009], et les mesures expérimentales de [Férec *et al.* 2009] pour des suspensions de fibres $a_r = 20$, à $\dot{\gamma} = 10s^{-1}$, les paramètres ajustables X_i et κ figurant dans le modèle de [Férec *et al.* 2009], équation (2.78), pour fitter les résultats de [Petrich *et al.* 2000] sont plus grands que ceux qu'il faut introduire pour reproduire les résultats expérimentaux de [Férec *et al.* 2009]. [Férec *et al.* 2009] interprètent ce résultat par le fait que les fibres utilisées dans [Petrich *et al.* 2000] ont subi un traitement de surface qui augmente les interactions fibres-fibres.

Les simulations numériques sur la viscosité spécifique η_{sp} du modèle de [Fan *et al.* 1998] sont comparées aux données expérimentales de [Bibbo 1987], sur la figure 2.14, lorsque la viscosité est tracée en fonction du paramètre nL^3 . Là encore, on peut constater que les résultats numériques sont en bon accord avec les données expérimentales.

La figure 2.15 montre une comparaison de la viscosité spécifique η_{sp} , (équation 2.97) du modèle de [Lindström & Uesaka 2009] avec les données expérimentales de [Bibbo 1987], [Mongruel & Cloitre 1999], [Blakeney 1966], [Chaouche & Koch 2001] et [Petrich *et al.* 2000]. Lorsque celle-ci est tracée en fonction du paramètre $\left(\frac{1}{r_e} \frac{\eta_f}{\eta_s}\right)$, les données collapent sur deux courbes maîtresses, selon que le régime est dilué, droite (A) ou

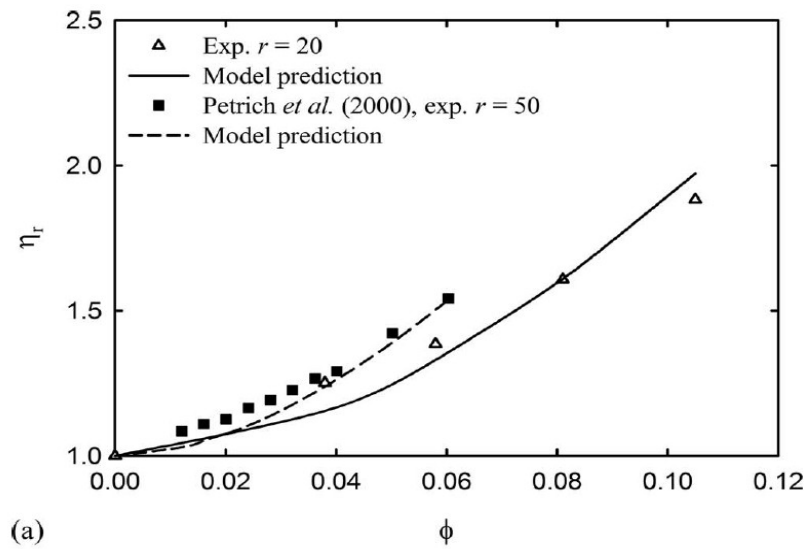


FIG. 2.13 – Viscosité relative η_r en fonction de la concentration ϕ . Comparaison du modèle de [Férec *et al.* 2009], (courbes pleines en pointillé) avec les données expérimentales de [Férec *et al.* 2009] et [Petrich *et al.* 2000] (symboles). Figure extraite de [Férec *et al.* 2009]

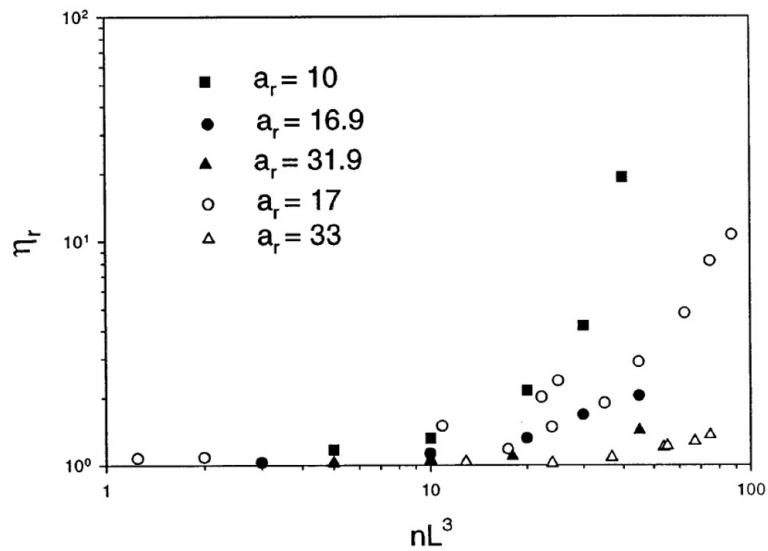


FIG. 2.14 – Une comparaison de la viscosité relative η_r des simulations directes de [Fan *et al.* 1998] (symboles pleins) avec les données expérimentales de [Bibbo 1987] (symboles ouverts). Figure extraite de [Fan *et al.* 1998].

concentré droite, (B). Cette dispersion indique que le paramètre $\left(\frac{1}{r_e} \frac{\eta_f}{\eta_s}\right)$ n'est pas un paramètre universel régissant le comportement de la viscosité quel que soit le régime de concentration.

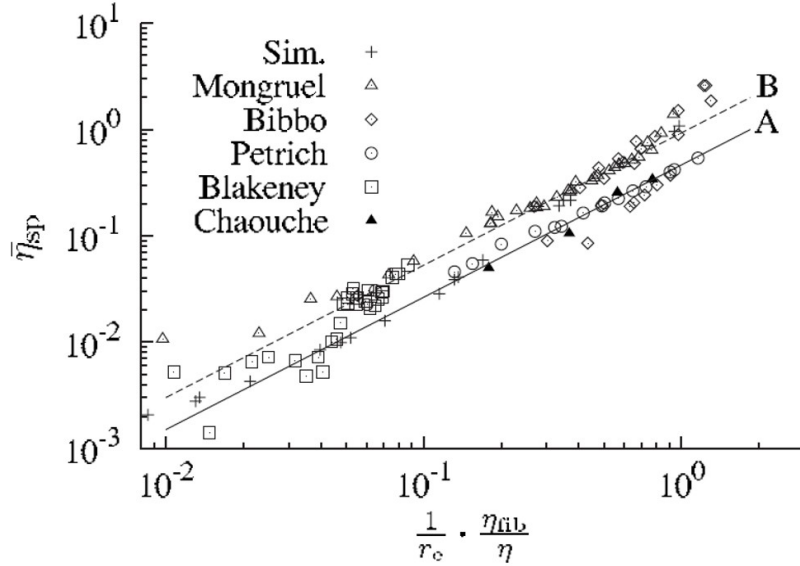


FIG. 2.15 – Comparaison entre la viscosité spécifique calculée des simulations de [Lindström & Uesaka 2009], pour $\mu_{frc} = 0$ avec les résultats expérimentaux de [Blakeney 1966], $a_r = 2$, [Mongruel & Cloitre 1999], $a_r \in [15, 60]$, [Bibbo 1987], $a_r \in [9, 33]$, [Petrich et al. 2000], $a_r = [50, 72]$ et [Chaouche & Koch 2001], $a_r = 36$. Les droites en trait plein et pointillé A, B, représentent les deux courbes maîtresses sur lesquelles des différentes données expérimentales collapent. Figure extraite de [Lindström & Uesaka 2009]

2.7.3 Résultats expérimentaux sur les mesures des deux différences de contraintes normales

Les prédictions théoriques et les simulations numériques sur les différences de contraintes normales en écoulement stationnaire, N_1 , N_2 , (équation (2.50)), dans le cas de suspensions de fibres diluées), donnent des valeurs négligeables ou nulles des composantes des tenseurs d'orientation; $\langle p_1^3 p_2 \rangle$, $\langle p_2^3 p_1 \rangle$, et $\langle p_1 p_2 p_3^2 \rangle$. [Carter 1967] montre qu'effectivement, pour des suspensions diluées, les deux différences de contraintes normales sont nulles, alors que pour des suspensions non diluées et pour des fibres de grand rapport d'aspect, a_r , N_1

est non nul et N_2 , est négligeable devant N_1 , et propose une expression pour N_1 :

$$N_1 = K\eta_0\dot{\gamma}\frac{\phi a_r^{3/2}}{\ln(a_r) - 1.8} \quad (2.106)$$

qu'on peut récrire sous la forme :

$$\frac{N_1(\ln(a_r) - 1.8)}{\eta_0\phi a_r^{3/2}} = K\dot{\gamma} \quad (2.107)$$

où K est une constante à déterminer expérimentalement ; l'équation (2.106) est basée sur l'hypothèse que les collisions entre fibres sont les principales causes d'une première différence de contraintes normales non nulles. L'équation (2.106), montre que la première différence de contrainte normale, N_1 est linéaire en $\dot{\gamma}$ et croît avec le paramètre $\phi a_r^{3/2}$, qui fait intervenir la concentration en fibres, ϕ , et le rapport d'aspect, a_r .

D'autre part, il existe peu de données expérimentales sur les mesures des différences de contraintes normales, [Férec *et al.* 2009], [Petrich *et al.* 2000] c.f. (figure 2.16), [Carter 1967], [Carter & Goddard 1967], [Zirnsak *et al.* 1994]. En effet, en général c'est la différence de contraintes normales $N_1 - N_2$ qui est mesurée en rhéomètre plan-plan, par la mesure directe de la force exercée sur l'un des plan. Au vu des prédictions théoriques, ($N_2 \ll N_1$), il est alors supposé que la valeur mesurée $N_1 - N_2$ est celle de N_1 , ce qui rend la comparaison des résultats expérimentaux avec les modèles théoriques et les simulations numériques difficile.

La figure 2.17, montre une comparaison entre les simulations numériques de [Lindström & Uesaka 2009] et les mesures expérimentales de N_1 , de [Petrich *et al.* 2000], [Carter & Goddard 1967] et [Batchelor 1971]. Les résultats des simulations numériques semblent être en accord avec les données expérimentales en régime semi dilué. Pour des régimes de plus grande concentration, les simulations surestiment N_1 , d'un facteur 2.

[Snook *et al.* 2014] effectuent des mesures expérimentales de N_1 et N_2 , en mesurant la déformation de la surface libre dans un canal incliné et en rhéomètre de Weissenberg, (voir le dispositif décrit dans la section (1.5.4)), et rapportent pour la première fois des mesures de N_1 et N_2 séparément. Ils montrent que N_2 n'est pas négligeable, contrairement à ce qui a été supposé, et obtiennent $N_1 \simeq -2N_2$. De plus dans leurs simulations

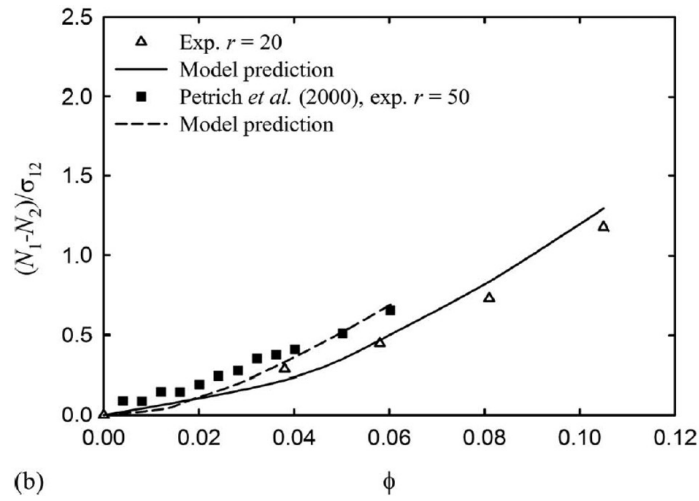


FIG. 2.16 – Différence de contraintes normales $N_1 - N_2$, normalisée par $\eta_0 \dot{\gamma}$ en fonction de la concentration ϕ . Comparaison du modèle de [Férec et al. 2009], (courbes pleines en pointillé) avec les données expérimentales de [Férec et al. 2009] et [Petrich et al. 2000] (symboles). Figure extraite de [Férec et al. 2009]

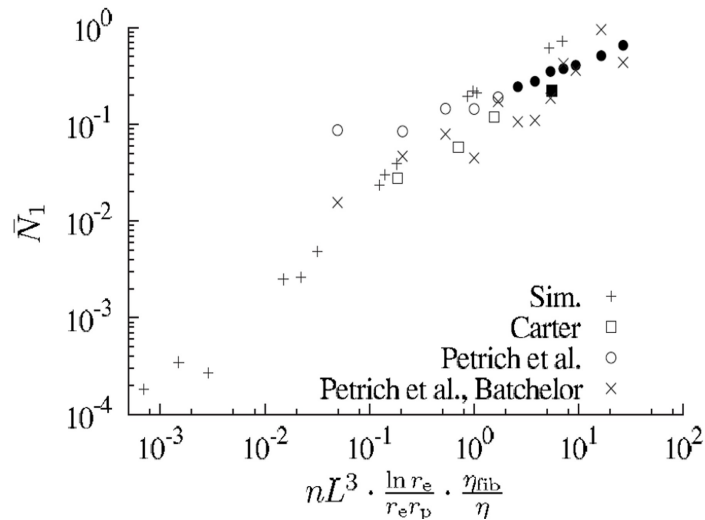


FIG. 2.17 – Comparaison de la première différence de contrainte normale, N_1 , obtenue à partir des simulations de [Lindström & Uesaka 2009], pour $\mu_{frc} = 0$ et $a_r \in [20, 40]$ avec les résultats expérimentaux de [Petrich et al. 2000], $a_r = 50$ et [Carter 1967] $a_r = 57$. Les symboles en \times représentent N_1 , calculée à partir de la distribution d'orientation mesurée par [Petrich et al. 2000] combinée avec le paramètre η_f de [Batchelor 1970]. Les points noirs correspondent à des valeurs de N_1 , prises en régime concentré et donc difficilement comparables aux résultats de la simulation. Figure extraite de [Lindström & Uesaka 2009].

numériques, [Snook *et al.* 2014] explorent l'effet du confinement et montrent que le confinement altère la microstructure et donc les valeurs des différences de contraintes normales. Une comparaison entre les simulations et les expériences établies par [Snook *et al.* 2014] et [Keshtkar *et al.* 2009] est illustrée sur la figure 2.18 qui montre un accord satisfaisant entre simulations et expériences seulement pour $nL^2d = 3$.

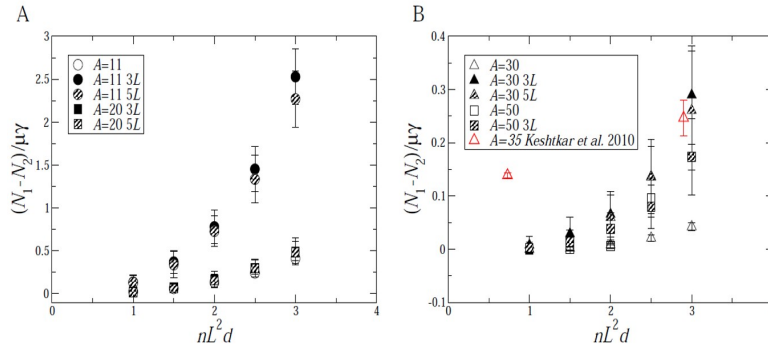


FIG. 2.18 – Comparaison de $N_1 - N_2$ normalisée par Σ_{12} des résultats de simulations numériques de [Snook *et al.* 2014] à différents niveaux de confinement. (A) pour les petits rapports d'aspect. (B) pour les plus grands rapports d'aspect et comparaison avec les résultats expérimentaux de [Keshtkar *et al.* 2009]. Figure extraite de [Snook 2015].

2.8 Conclusion

L'objectif de ce chapitre était de présenter une étude bibliographique qui n'est sans doute pas exhaustive. Nous avons vu que les études expérimentales sur les fonctions matérielles η , N_1 , et N_2 ainsi que les prédictions des modèles théoriques et les simulations numériques sont nombreuses ; mais, leur domaine de validité est souvent restreint à des régimes de concentrations modérés $nL^2d \leq 3$. Lorsque la concentration augmente, ce sont les interactions à courte portée qui deviennent prédominantes et il est difficile de les modéliser. Les modèles et simulations ainsi construits restent approximatifs.

Néanmoins, cette synthèse a permis de donner quelques explications sur l'origine de la vis-

cosité et des différences de contraintes normales; tandis que les forces hydrodynamiques semblent être la contribution essentielle à la viscosité, les forces de contact sont les principales responsables de l'apparition de contraintes normales anisotropes.

L'étude proposée dans ce manuscrit présente deux parties importantes; l'étude du comportement de la viscosité et les mesures de différences de contraintes normales. Pour cela nous avons effectué des expériences avec un dispositif et un protocole qui se différencient de l'état de l'art actuel. Nous présenterons ensuite un modèle théorique en mesure d'interpréter nos mesures expérimentales de viscosité.

Viscosité stationnaire des suspensions de fibres en écoulement torsionnel

3.1 Introduction

Il existe une littérature abondante sur les mesures expérimentales de viscosité des suspensions de fibres, [Carter & Goddard 1967], [Férec *et al.* 2009], [Sepehr *et al.* 2004], [Mongruel & Cloitre 1999]... Cependant, celles-ci sont effectuées pour des suspensions de fibres diluées ou semi diluées, en géométrie conventionnelle, pour laquelle l'entrefer varie entre $H \sim 0.75mm$ et $3mm$ avec des fibres dont la longueur, L , varie entre $300\mu m$ et $4mm$. Au mieux, l'échelle caractéristique de l'écoulement varie entre $2L \sim 5L$. A cette échelle, les fibres sont confinées et les parois de la géométrie jouent un rôle important dans la détermination de l'orientation des fibres, en particulier dans le cas de suspensions concentrées, lorsque les interactions de contact deviennent importantes. Les suspensions de fibres possèdent de ce fait une microstructure qui dépend de l'échelle caractéristique de l'écoulement. Il est ainsi indispensable de s'affranchir des effets de confinement et de les caractériser s'ils existent.

Dans la présente étude, nous avons choisi de mener les expériences dans une cellule d'écoulement où le confinement varie. Les suspensions étudiées sont placées dans une cuve cylindrique et cisailées entre deux disques parallèles en rotation.

L'utilisation de cette cuve nous permet de travailler avec de grands entrefers, jusqu'à une échelle caractéristique de l'écoulement de l'ordre $H = 3L \sim 40L$, pour les plus longues fibres dont nous disposons dans notre lot ($L = 500\mu m$). Par conséquent, les effets des parois sur la mesure de la viscosité sont considérablement limités.

Ce chapitre est organisé comme suit : nous présenterons une description des fibres utilisées

et les caractéristiques des suspensions préparées, puis, nous décrirons le dispositif expérimental sur lequel les mesures de viscosité ont été effectuées. Enfin, nous présenterons une étude de l'effet du confinement pour des suspensions de fibres de différents rapports d'aspect et plusieurs concentrations. Nous confronterons alors nos résultats avec les données expérimentales, les simulations numériques et les modèles théoriques de la littérature.

3.2 Description des suspensions de fibres

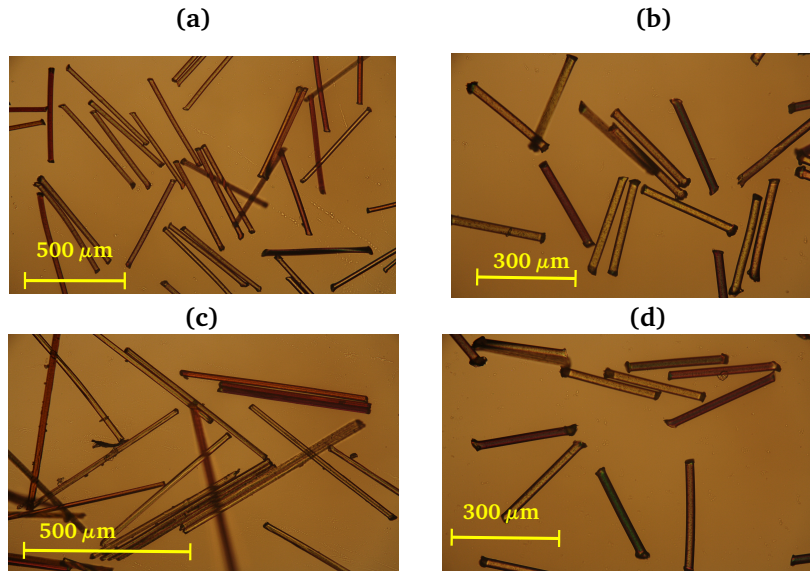


FIG. 3.1 – Image microscopique des fibres polyamides étudiées de différents rapports d'aspect. (a) $a_r = 18, L = 500\mu m$. (b) $a_r = 18, L = 300\mu m$. (c) $a_r = 33, L = 500\mu m$, (d) $a_r = 10, L = 300\mu m$.

Les suspensions de fibres étudiées sont composées de fibres de polyamide monodisperses, immergées dans un fluide newtonien. Nous donnerons par la suite les caractéristiques de chacune des phases des suspensions préparées pour notre étude.

3.2.1 Monodispersité des fibres

Les particules étudiées sont des particules anisotropes, rigides, de géométrie allongée, et axisymétrique, de forme cylindrique, de longueur L , et de diamètre d , avec $L \gg d$, tel que

présenté dans la section (2.2.1). L'ensemble des fibres est constitué de fibres de polyamide. La figure (3.1) illustre quatre lots de fibres de polyamide que nous avons utilisées pour notre étude et montre une assez bonne monodispersité des fibres. Selon le fournisseur, les fibres sont coupées précisément sur des machines de coupe à guillotine ; nous avons cependant vérifié la monodispersité des fibres, à partir de plusieurs images collectées et analysées, et nous avons déterminé la distribution de longueur L , et de diamètre d , dont le résultat est illustré sous forme d'histogramme sur la figure (3.2), qui montre une assez bonne monodispersité des fibres.

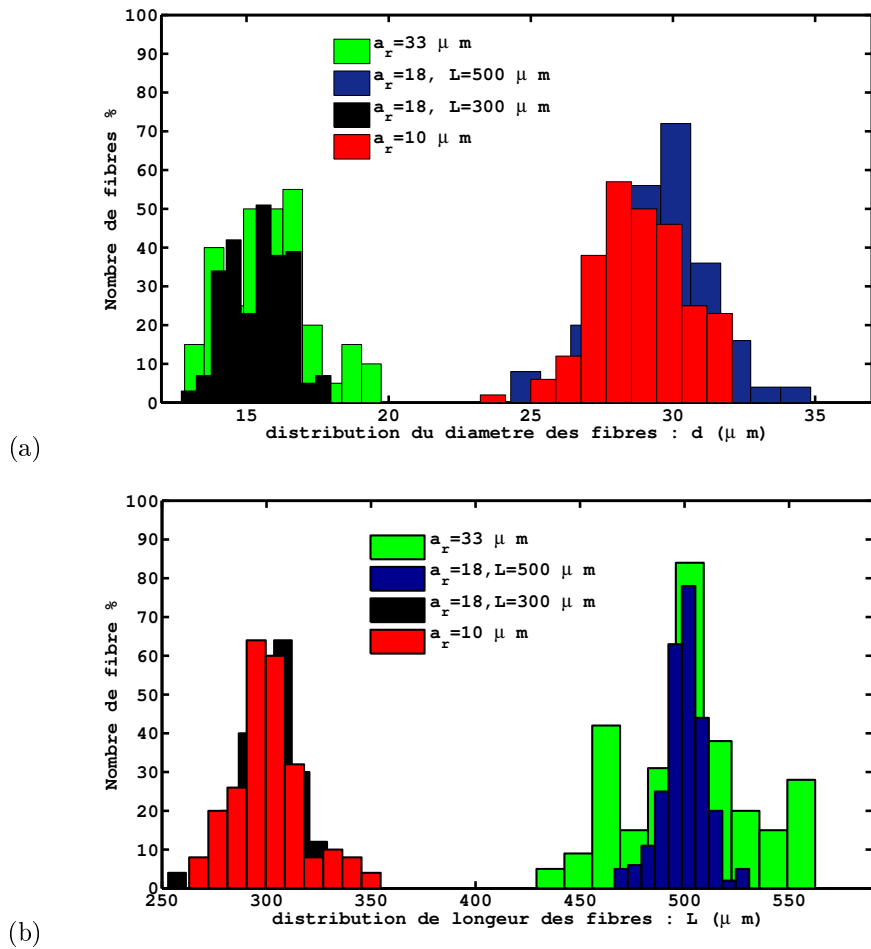


FIG. 3.2 – Histogramme de distribution de diamètre et de longueur des fibres pour les quatre lots de fibres utilisées. (a) diamètre. (b) Longueur de la fibre. Les fibres ont une bonne monodispersité.

3.2.2 Mesures de la rugosité des fibres

Les mesures de rugosité des fibres ont été réalisées à l'aide d'un microscope à force atomique (AFM) ; le principe consiste à mesurer les forces entre une pointe sonde et la surface d'un échantillon. La sonde de l'AFM est une pointe ultra-fine intégrée à l'extrémité d'un levier flexible. Ces forces sont détectées et analysées par l'intermédiaire de la déflexion du levier avec une résolution de 1Å . Le levier pouvant se déplacer dans les trois directions, un système piézoélectrique permet d'effectuer un balayage parallèlement à la surface de l'échantillon et de déterminer le parcours du levier, ainsi que la topographie de la surface de l'échantillon.

La figure (3.3) illustre l'aspect de surface pour deux échantillons de fibres de rapport d'aspect $a_r = 18$ et $a_r = 33$. Nous pouvons remarquer que l'aspect de surface est différent ; les fibres de rapport d'aspect $a_r = 18$ présentent un aspect de surface en forme de spots (figure 3.3 (a)), alors que les fibres de rapport d'aspect $a_r = 33$, (figure 3.3 (b)) présentent une surface avec un aspect strié.

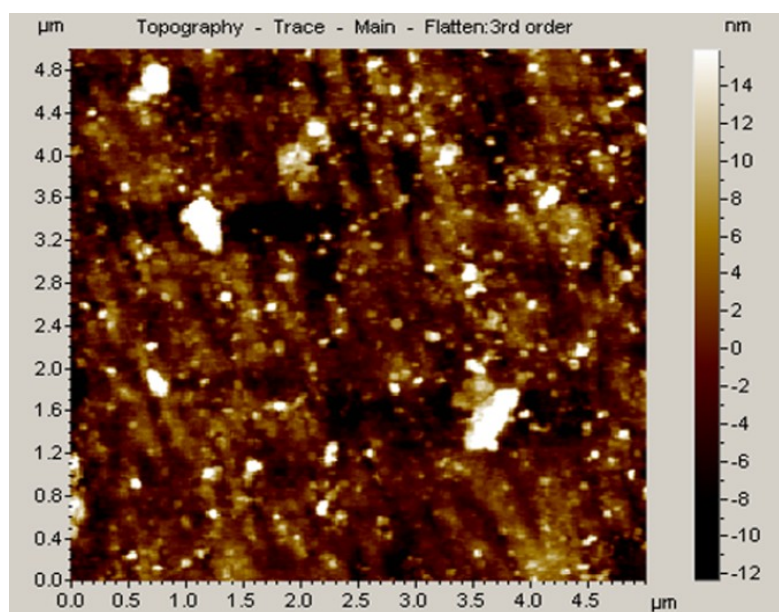
La rugosité des fibres est alors analysée à travers la différence de distance entre l'extrémité de la pointe de l'AFM et les différentes positions à la surface de la fibre, y . La hauteur moyenne de rugosité, y_0 s'écrit :

$$y_0 = \frac{\int_{x_1}^{x_2} y(x) dx}{x_2 - x_1} = \frac{\sum y_i}{n} \quad (3.1)$$

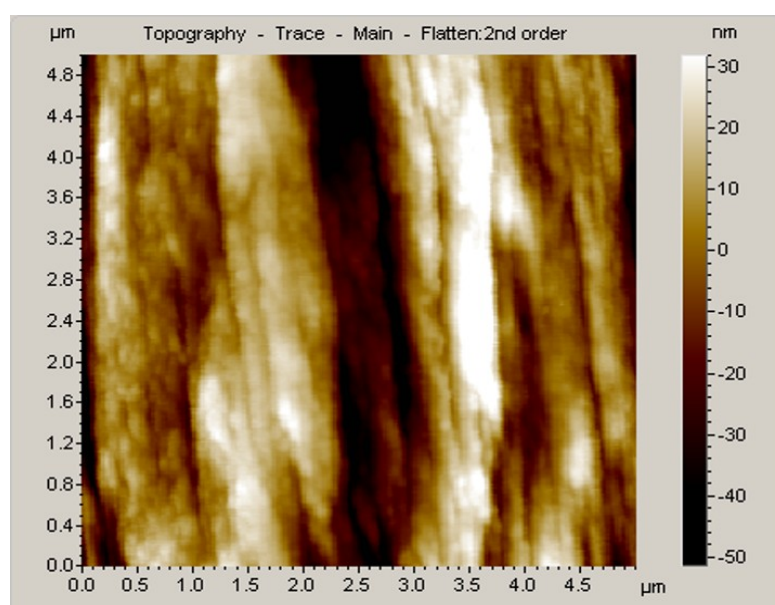
où, x_1 et x_2 déterminent les positions, x , sur la surface de la fibre. La moyenne et l'écart-type de rugosité sont donnés par :

$$\left\{ \begin{array}{l} R_a = \frac{1}{n} \sum |y_i - y_0| \\ R_q = \sqrt{\frac{1}{n} \sum |y_i - y_0|^2} \end{array} \right. \quad (3.2)$$

Le profil de rugosité en fonction de la position x sur la surface d'une fibre est présenté sur la figure (3.4) (courbes noires). Pour les deux rapports d'aspect $a_r = 18$, figure (3.4 (a)) et $a_r = 33$, (figure 3.4 (b)). La ligne en rouge représente la rugosité moyenne des surfaces des fibres. La hauteur entre le pic minimal et maximal est désignée par R_{max} . Les valeurs des



(a)



(b)

FIG. 3.3 – Profil de rugosité obtenu par AFM. (a) Fibres de rapport d'aspect $a_r = 18$. (b) Fibres de rapport d'aspect $a_r = 33$.

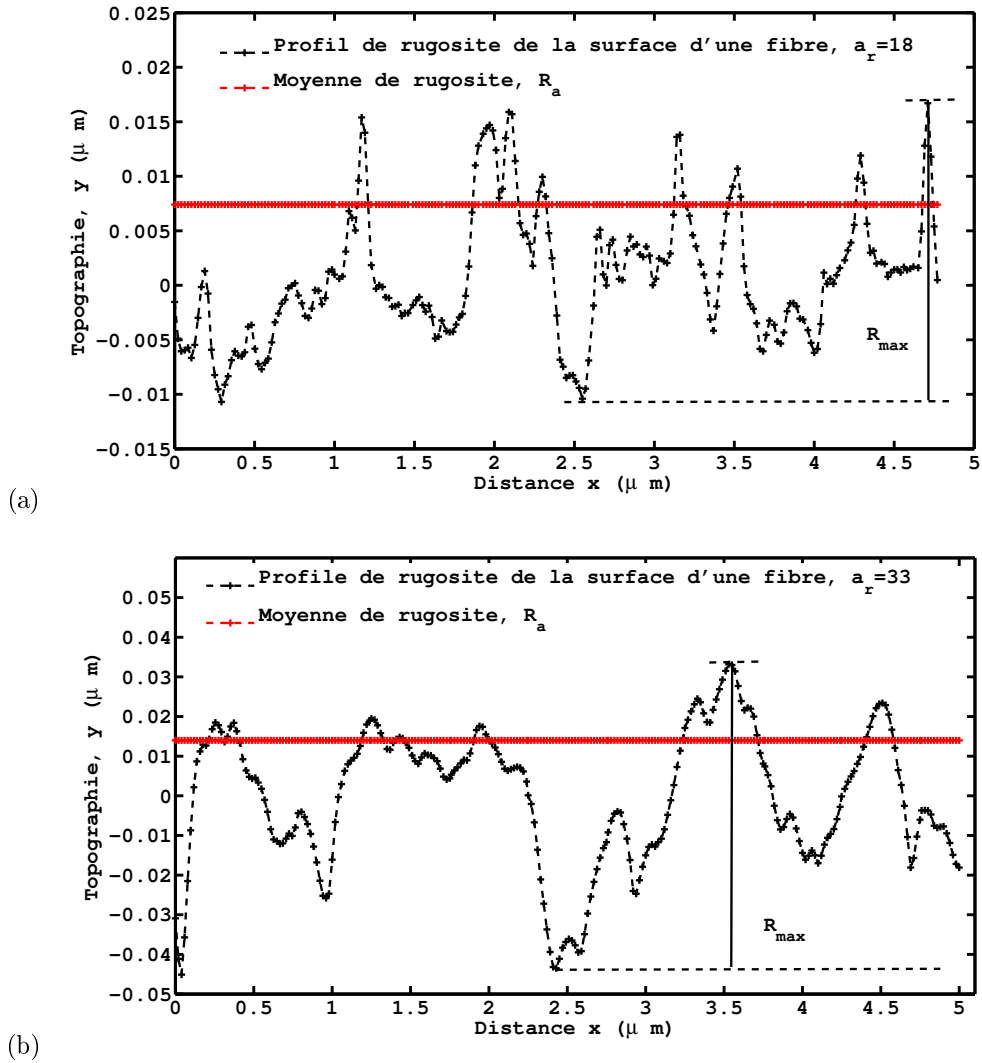


FIG. 3.4 – Profil de rugosité obtenue par AFM. (a) Fibres de rapport d'aspect $a_r = 18$. (b) Fibres de rapports d'aspect $a_r = 33$.

différentes distances mesurées sont reportées sur la table (3.1).

Rapport d'aspect a_r	R_{max} (μm)	R_a (μm)	R_q (μm)
18	0.028	0.0047	0.006
33	0.075	0.014	0.017

TAB. 3.1 – Mesure de rugosité de surface par AFM : R_{max} , est la distance entre le pic minimal et maximal, R_a est la moyenne de mesure de rugosité de la surface des fibres et R_q , représente l'écart type de la mesure. L'analyse est effectuée pour des fibres de rapport d'aspect $a_r = 18$ et $a_r = 33$.

3.2.3 Fluide suspendant

Le fluide suspendant utilisé est une composition de UCON oil 75H90000 fourni par la société (Dow Chemical, France), de viscosité ($\eta_{ucon} = 30Pas$ à $T = 25^\circ$ et de densité $\rho_U = 1.09g/cm^3$), mélangé avec de l'eau et du bromure de zinc $ZnBr_2$ ou de sodium, $NaBr$ fourni par la société (Sigma-Aldrich, France). Ce fluide présente différents avantages : le UCON oil est bien miscible avec l'eau, donnant un mélange de fluide newtonien. L'ajustement des fractions volumiques, $\frac{V_{H_2O+NaBr}}{V_{T_0}}$ eau et UCON OIL, $\frac{V_U}{V_{T_0}}$, nous permet de travailler avec des gammes de viscosité variées.

L'ajout du bromure de sodium $NaBr$ ou du bromure de zinc $ZnBr_2$ à l'eau avant le mélange final, permet d'ajuster la densité du fluide suspendant à celles des fibres de sorte que :

$$\rho_p = \rho_0 = \frac{V_{H_2O+NaBr}}{V_{T_0}} \times \rho_{H_2O+NaBr} + \frac{V_U}{V_{T_0}} \times \rho_U \quad (3.3)$$

où, ρ_p est la densité des fibres, $V_{T_0} = V_U + V_{H_2O+NaBr}$, est le volume total du mélange. Ainsi, on peut alors déterminer la fraction volumique du mélange (H_2O , $ZnBr_2$) à rajouter, pour laquelle la suspension de fibres est isodense :

$$\rho_{H_2O+ZnBr_2} = \frac{(V_{T_0} \times \rho_p) - (V_U \times \rho_U)}{V_{H_2O+NaBr}} \quad (3.4)$$

Les densités ρ_0 , des fluides suspendants pour les suspensions de fibres de rapport d'aspect $a_r = 10$ et $a_r = 18$, ont été ajustées par l'ajout du bromure de sodium, pour atteindre la valeur de $\rho_0 = 1.09g/cm^3$, et ont pour viscosité $\eta_0 = 1.0Pas$ et $\eta_0 = 0.364Pas$, respec-

tivement. Alors que la densité du fluide suspendant pour les fibres $a_r = 33$, a été ajustée par l'ajout du bromure de zinc, $ZnBr_2$, pour atteindre $\rho = 1.34g/cm^3$, et a pour viscosité, $\eta_0 = 0.860Pas$.

3.3 Préparation des suspensions

Les suspensions de fibres étudiées sont une composition de fibres de polyamide monodisperses, immergées dans le fluide suspendant (*UCONOIL-H₂O*), de même densité que les fibres $\rho_p = \rho_0$. L'ajustement des densités permet d'éviter tout phénomène de sédimentation ou de flottaison, ainsi que de contrôler l'homogénéité de la suspension (section 1.7.2).

Avant de préparer les suspensions, nous avons lavé les fibres, afin d'éliminer tout agent d'enrobage des fibres susceptible d'être rajouté lors du processus de fabrication des fibres. Ensuite, les fibres sont séchées dans une étuve à 35° , pour une durée de 12 heures.

Nous avons préparé pour les trois lots de fibres (voir figure 3.2), ($a_r = 18, L = 500\mu m$), ($a_r = 33, L = 500\mu m$), ($a_r = 10, L = 300\mu m$)ⁱ une série de suspensions de fractions volumiques allant de $\phi = 0.01 \sim \phi = 0.22$, i.e, $0.35 \leq nL^2d \leq 6$, en ajoutant une masse de fibres dans le fluide telle que :

$$\phi = \frac{V_{fibre}}{V_{fibre} + V_{liquide}} \quad (3.5)$$

avec V_{fibre} et $V_{liquide}$, le volume des fibres et du fluide respectivement. Puisque les densités des fibres et du fluide sont ajustées $\rho_p = \rho_0$, cela revient à définir la concentration massique :

$$\phi_m = \frac{M_{fibre}}{M_{fibre} + M_{liquide}} = \phi \quad (3.6)$$

Les quantités de fibres et de liquide sont entreposées dans une boîte de Pétrie, de diamètre assez large pour faciliter le mélange et la dispersion des fibres dans le fluide. Les masses des deux phases sont pesées séparément à l'aide d'une balance de précision $10^{-3}g$. La suspension est préparée de manière à rajouter progressivement de faibles quantités de fibres dans le fluide suspendant, et mélanger délicatement avec une spatule, pour éviter la formation de paquets de fibres. Il est en effet important de faire le mélange soigneusement afin d'obtenir

i. Les fibres de rapport d'aspect $a_r = 18$ et de longueur $L = 300\mu$, seront utilisées pour l'étude des contraintes normales au chapitre 6

une suspension homogène.

Pendant ce mélange, des bulles d'air sont piégées dans la suspension. Afin de les extraire, les suspensions sont versées dans des flacons hermétiques et placées dans une étuve pendant 12 heures à une température de $T = 50^\circ$. Les flacons sont pesés avant et après avoir été placés dans l'étuve, pour vérifier qu'il n'y a eu aucune perte de masse, et que la concentration estimée initialement est restée inchangée.

Le fait de mettre les suspensions dans l'étuve permet de diminuer la viscosité, et ainsi d'accélérer le processus de dégazage. Ensuite les flacons sont soumis aux ultra-sons pendant une durée de 2 heures à 4 heures selon la fraction volumique.

A la fin du dégazage, les suspensions sont maintenues dans les flacons fermés jusqu'à ce que la température ait décri à la température de la salle d'expérimentation qui est contrôlée à $T = 20^\circ$.

Rapport d'aspect a_r	Longueur $L(\mu m)$	Diamètre $d(\mu m)$	Densité ρ g/cm^3	limite des régimes de concentration		$\frac{\Sigma_{crit}}{\Sigma_{max}}$
				$\phi' = 1/a_r^2$	$\phi'' = 1/a_r$	
18	500	28	1.09	0.003	0.05	75
10	300	30	1.09	0.01	0.10	450
33	500	15	1.34	9.110^{-4}	0.03	6

TAB. 3.2 – Caractéristiques des suspensions de fibres étudiées dans nos expériences. $\phi' = 1/a_r^2$ et $\phi'' = 1/a_r$ désignent la limite qui sépare le régime dilué du régime semi-dilué, et semi-dilué de concentré, respectivement. Σ_{crit} est la contrainte critique à partir de laquelle les fibres flambent, et Σ_{max} est la contrainte de cisaillement maximale appliquée dans notre expérimentation.

La table (3.2) résume les différentes caractéristiques des fibres, qui sont : la longueur, L , et le diamètre des fibres, d , la concentration limite entre les différents régimes de concentration, ϕ' et ϕ'' , le rapport de la contrainte maximale appliquée Σ_{max} sur la contrainte critique de flambement de fibres, qui détermine le critère de flexibilité des fibres. [Forgacs & Mason 1959] évaluent la valeur de Σ_{crit} , pour le cas des fibres cylindriques et proposent la relation suivante :

$$\Sigma_{crit} \cong \frac{E_b(\ln 2a_r - 1.75)}{2a_r^4} \quad (3.7)$$

où, E_b , est le module de flexion, qui est de l'ordre de $3.10^9 Pa$, pour les fibres de polyamide. Le rapport $\frac{\Sigma_{crit}}{\Sigma_{max}}$, étant grand, les fibres sont considérées comme rigides.

3.4 Expérimentation

Dans cette partie, nous allons décrire le dispositif expérimental sur lequel les mesures de viscosité ont été effectuées, ensuite, nous présenterons le protocole expérimental. Nous discuterons alors les résultats expérimentaux sur le comportement de la viscosité en fonction de la concentration pour des fibres de rapports d'aspect différents et montrerons l'effet du confinement sur les valeurs de viscosité. Nous terminerons par une comparaison avec quelques modèles théoriques et données expérimentales de la littérature.

3.4.1 Détermination de la viscosité dans un écoulement torsionnel

Les mesures de viscosité ont été effectuées en géométrie plan-plan (section 1.5.3), montée sur un rhéomètre à contrainte imposée *HAAKE MARS II* dont le descriptif a déjà été abordé dans la section (1.6). Les deux disques sont séparés d'une distance H . Un couple Γ est appliqué au disque supérieur qui tourne avec une vitesse angulaire Ω . L'écoulement torsionnel est généré par la contrainte de cisaillement Σ_{12} , où les indices 1 et 2 désignent la direction de l'écoulement et celle du gradient de vitesse respectivement. La vitesse de l'écoulement a seulement une composante orthoradiale :

$$v_r = 0 \quad , \quad v_\theta = r\Omega(z) \quad , \quad v_z = 0 \tag{3.8}$$

Le taux de cisaillement dépend linéairement de la distance radiale, r :

$$\dot{\gamma}(r) = \frac{\partial v_\theta}{\partial z} = \frac{\Omega r}{H} \tag{3.9}$$

La valeur de viscosité mesurée par le rhéomètre, η_{app} , est donnée par le rapport de la contrainte au bord ($r = R$) sur le taux de cisaillement au bord, $\dot{\gamma}(R)$:

$$\eta_{app} = \frac{\Sigma_{12}(R)}{\dot{\gamma}(R)} \tag{3.10}$$

avec, $\Sigma_{12}(R) = \frac{2\Gamma}{\pi R^3}$, et $\dot{\gamma}(R) = \frac{\Omega R}{H}$.

Or, il est communément admis dans la littérature [Ganani & Powell 1985], [Sepehr *et al.* 2004], [Mongruel & Cloitre 1999], que dans le cas des suspensions de fibres, et lorsque la concentration ϕ devient suffisamment grande, les suspensions de fibres présentent un comportement rhéofluidifiant. Dans ce chapitre, nous allons considérer alors que la viscosité apparente suit une loi en puissance telle que déjà mentionnée dans la section (1.3.3) :

:

$$\eta_{app} = K^* \dot{\gamma}^{m-1} \quad (3.11)$$

Du fait que les suspensions de fibres étudiées dans ce travail présentent un comportement rhéofluidifiant, la correction de *Monney-Rabinovich* doit être appliquée afin de retrouver la viscosité et le taux de cisaillement réels, [Bird *et al.* 1977] :

$$\eta(\dot{\gamma}_R) = \frac{\Gamma}{2\pi R^3 \dot{\gamma}_R} \cdot \left[3 + \frac{d \ln \Gamma}{d \ln \dot{\gamma}_R} \right] \quad (3.12)$$

où, l'expression équivalente :

$$\eta(\dot{\gamma}_R) = \frac{\eta^{app}}{4} \left[4 + \frac{d \ln \eta^{app}}{d \ln \dot{\gamma}_R} \right] \quad (3.13)$$

La viscosité réelle a donc l'expression suivante :

$$\eta(\dot{\gamma}_R) = \left(\frac{m+3}{4} \right) \cdot \eta^{app}(\dot{\gamma}) \quad (3.14)$$

Ainsi, pour chaque suspension, l'indice de rhéofluidification, m , est déterminé à partir de la loi de comportement qui servira à calculer la viscosité réelle des suspensions.

3.4.2 Dispositif expérimental : Cellule d'écoulement

La cellule d'écoulement consiste en une cuve cylindrique de diamètre $78mm$, au dessus de laquelle est placé le rotor du rhéomètre, un disque de $30mm$ de rayon (figure (3.5)). Les suspensions de fibres sont placées de manière à remplir tout le volume de la cuve qui se

trouve en dessous du rotor.

Avant de commencer les mesures de viscosité des suspensions, nous avons déterminé la viscosité du fluide suspendant, η_0 , en géométrie conventionnelle, pour laquelle la surface du fluide au bord du disque est libre, ainsi que la viscosité du fluide mesurée en présence de la cuve, notée $\eta_0(H)$ pour différentes valeurs d'entrefer H .

On peut alors évaluer le rapport des viscosités $\frac{\eta_0(H)}{\eta_0}$, mesurées dans les deux cas. On

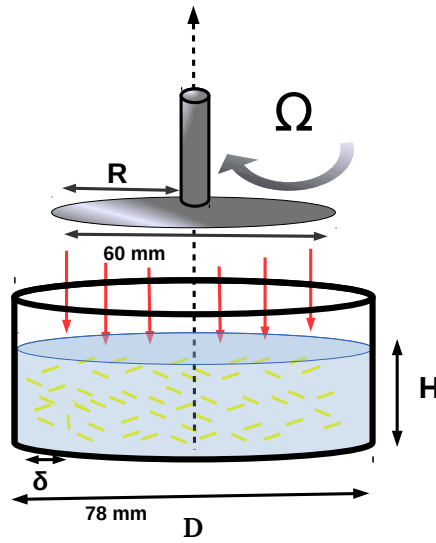


FIG. 3.5 – Dispositif expérimental utilisé dans notre étude. Une cuve cylindrique implémentée dans une géométrie plan-plan. L'entrefer H désigne l'échelle caractéristique de l'écoulement et δ est la distance entre le bord du disque et la cuve.

s'attend alors à ce que le rapport des viscosités soit une fonction uniquement de H :

$$\frac{\eta_0(H)}{\eta_0} = f(H) \quad (3.15)$$

Pour déterminer l'allure de la courbe, nous avons effectué une mesure de viscosité du fluide suspendant pour différentes valeurs de H . Sur la figure (3.6), nous reportons les valeurs du rapport des viscosités mesurées, $\frac{\eta_0(H)}{\eta_0}$ en fonction de H . Le meilleur fit de la fonction $f(H)$, correspond à la courbe bleue en pointillé, qui varie linéairement ; $f(H) = a \cdot H + b$. On

trouve alors les paramètres d'ajustement suivants :

$$\eta_0(H) = \eta_0 \times f(H) = \eta_0(0.0579 \cdot H + 1.003) \quad (3.16)$$

La pente a , décrit l'effet des bords de la cuve pondéré par l'entrefer H . L'ordonnée à l'origine b , se réfère à la valeur de viscosité mesurée en absence de bord, $\eta_0(H = 0)$. Dans l'équation (3.16), $b \sim 1$, on retrouve alors la valeur de la viscosité mesurée en géométrie conventionnelle, $\eta_0(H = 0) = \eta_0$.

Par conséquent, en tenant compte de cette correction, la viscosité relative des suspensions

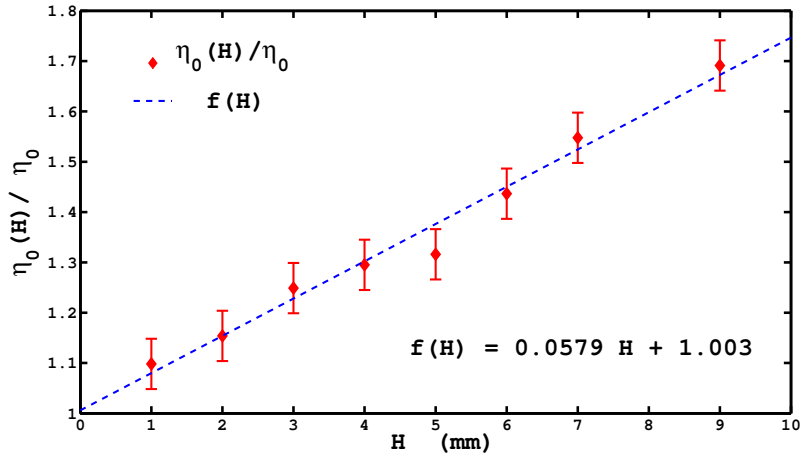


FIG. 3.6 – Variation de la viscosité du fluide suspendant mesurée, $\eta_0(H)$, en fonction de l'entrefer, H (points rouges). La courbe en bleu, $f(H)$, décrit le meilleur fit des données expérimentales.

de fibres $\eta_r(H)$ s'écrit alors comme suit :

$$\eta_r(H) = \frac{\eta_s(H)}{\eta_0 \cdot (0.0579 \cdot H + 1.003)} \quad (3.17)$$

où $\eta_s(H)$ est la viscosité de la suspension corrigée des effets de bord de la cuve, pour une valeur de confinement H donné.

3.4.3 Conditions d'écoulement

Dans nos expériences, nous considérons un écoulement laminaire. Le fluide suspendant est préparé de telle sorte que les forces visqueuses dominent les forces inertielles. On s'as-

sure que pour la plus grande valeur du couple appliqué Γ , le nombre de *Reynolds* (Forces inertielles / Forces visqueuses) est suffisamment petit, on trouve alors :

$$N_{Re} = \frac{\rho\Omega RH}{\eta} \lesssim 10^{-1} \quad (3.18)$$

Par ailleurs, les suspensions étudiées sont considérées comme non-browniennes. Les dimensions des fibres sont suffisamment grandes pour que les forces hydrodynamiques dominent les forces browniennes tel que décrit par le nombre de *Péclet* (Forces hydrodynamiques/ forces browniennes), $N_{Pe} = \frac{\dot{\gamma}}{D_r}$, où D_r est le coefficient de diffusion brownienne :

$$N_{Pe} = \frac{\eta_0 \dot{\gamma} \pi L^3}{3k_B T \ln(r)} \sim 10^9 \gg 1 \quad (3.19)$$

Pour éviter d'éventuels problèmes d'évaporation qui pourraient survenir car le fluide suspendant est à base d'eau (voir section (1.7.4)), un couvercle est placé au dessus de la géométrie. Les expériences sont conduites à une température $T = 20^\circ$, contrôlée à l'aide d'un module de Peltier. La variation de la température se trouve être négligeable, $\Delta T = 0.1^\circ$.

3.4.4 Protocole expérimental

Pour débiter nos expériences, nous plaçons doucement la suspension dans la cuve de telle sorte qu'elle occupe tout le volume compris en dessous du disque. Afin d'éviter le piégeage de bulles d'air, une goutte de suspension est placée au centre du disque supérieur qui est ramené lentement vers le bas jusqu'à atteindre l'entrefer H voulu.

Lorsque la suspension est complètement répartie dans la cuve, le disque supérieur est légèrement remonté de $50\mu m$, et doit être exactement ajusté au niveau de la suspension ; ensuite le surplus de suspension est nettoyé afin de prévenir d'éventuels effets de capillarité.

Les mesures de viscosité sont effectuées en mode contrainte imposée selon le protocole expérimental suivant : nous avons appliqué des échelons de contraintes, Σ_{12} , d'intensité croissante, tel qu'illustré sur la figure (3.7). Le temps de cisaillement, T_{shear} , est assez long pour que les fibres accomplissent leur rotation suivant l'orbite de Jeffery :

$$T_J = \frac{2\pi}{\dot{\gamma}} \times \left(\frac{1}{a_r} + a_r \right) \quad (3.20)$$

La demi-période de Jeffery, $T_J/2$, correspond à la période à partir de laquelle la viscosité η_s atteint l'état stationnaire : $T_{sta} = \frac{T_J}{2}$. La durée de cisaillement est choisie de telle sorte que $T_{shear} \sim 2T_J$, quelque soit la valeur de la contrainte de cisaillement, Σ_{12}^i , appliquée. Ceci nous conduit à fixer la période de cisaillement T_{shear} , pour deux contraintes successives, Σ_{12}^i et Σ_{12}^{i+1} comme suit :

$$T_{shear}^{i+1} = T_{shear}^i \frac{\Sigma_{12}^i}{\Sigma_{12}^{i+1}} \quad (3.21)$$

Ainsi, la courbe d'écoulement est obtenue, point par point, de façon à permettre une mesure de la viscosité stationnaire.

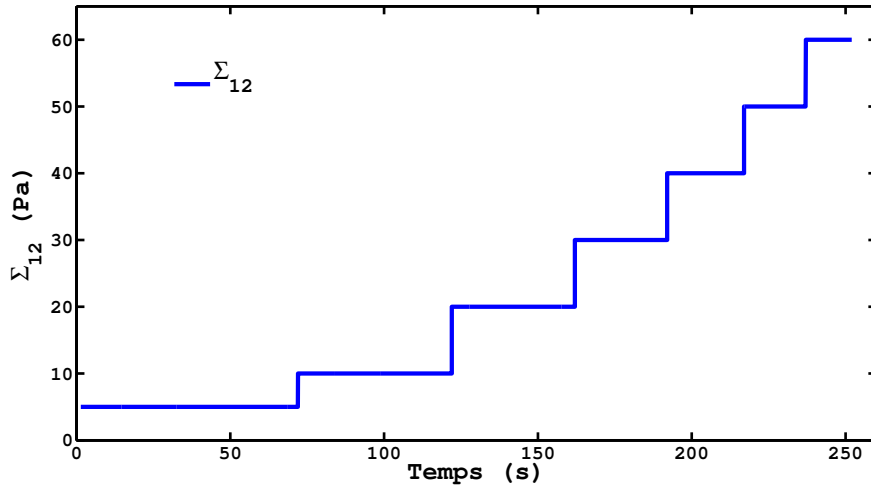


FIG. 3.7 – Paliers de contraintes appliquées en cisaillement simple ; la période de chaque palier est suffisamment longue pour que les fibres atteignent leur orientation d'équilibre et pour mesurer ainsi la viscosité stationnaire.

3.4.5 Correction de glissement

Avant d'entamer les mesures de viscosité, nous devons nous assurer de la présence, ou non, d'éventuels effets de glissement aux parois. Cet artefact a déjà été présenté dans le chapitre 1, section (1.7.1). Un moyen de le quantifier est de placer une surface rugueuse sur le plan des deux disques. Nous avons donc choisi du papier de verre de rugosité modérée $120\mu m$ pour ne pas perturber l'écoulement.

Pour cela, nous avons soumis une suspension de fibres concentrée ($r = 18, \phi = 0.13$) à un

écoulement torsionnel, en appliquant un essai de palier de contrainte, tel que décrit dans la section (1.4), pour les deux configurations de la surface des disques, lisse, et rugueuse. La comparaison des courbes d'écoulement respectives est reportée sur la figure (3.8).

La figure (3.8) montre clairement que les courbes d'écoulement obtenues avec les géométries

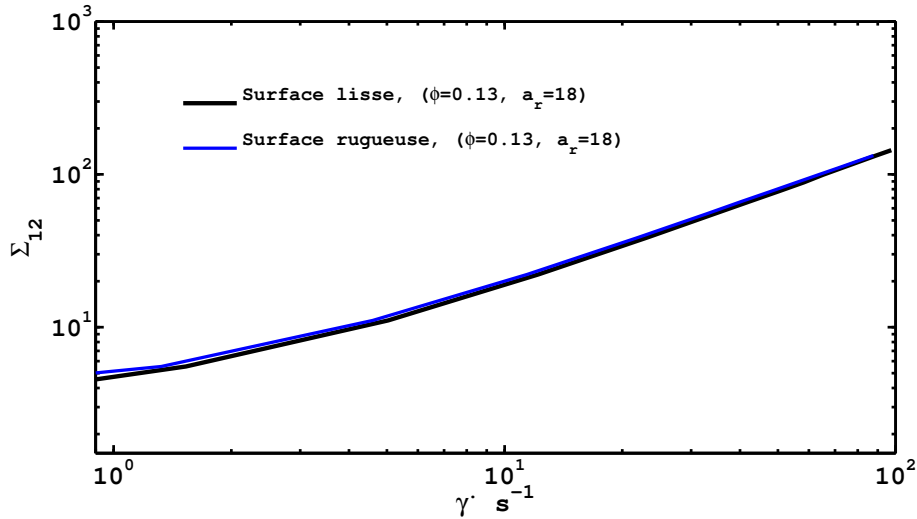
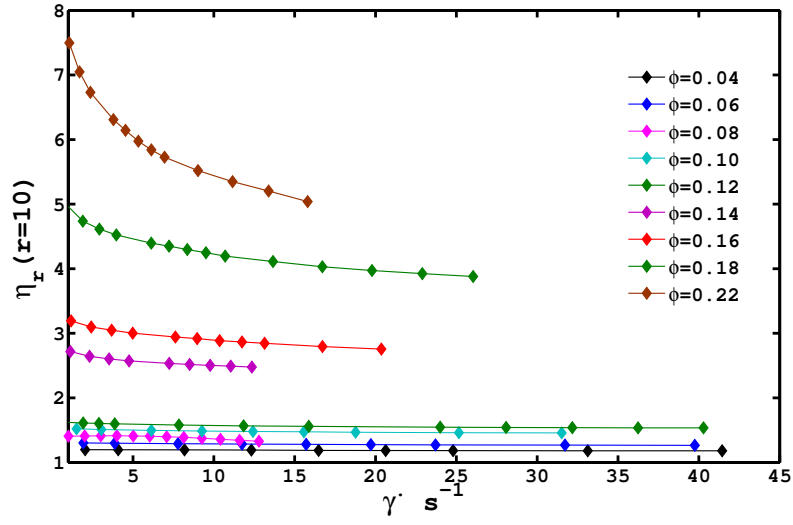


FIG. 3.8 – Comparaison des courbes d'écoulement pour une suspension de fibres $\phi = 0.13, r = 18$, obtenues avec une géométrie rugueuse (courbe bleue), et lisse (courbe noire). Les courbes se confondent sur une large gamme de taux de cisaillement, $\dot{\gamma}$, indiquant que le glissement est négligeable.

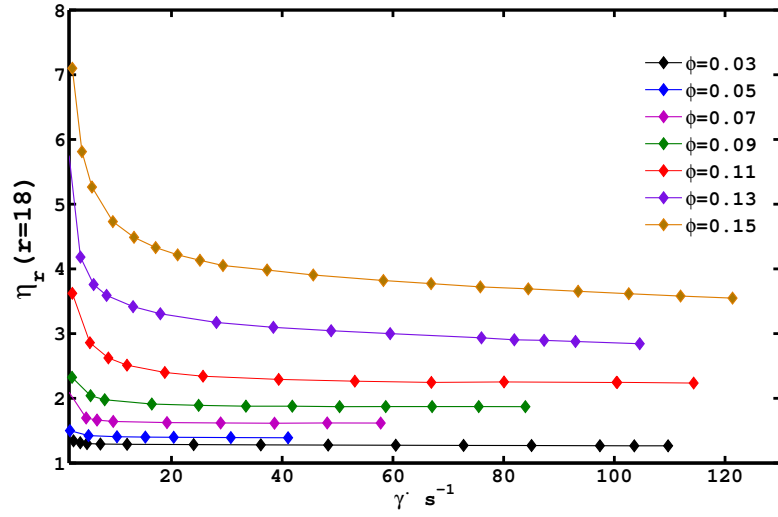
lisses et rugueuses se confondent sur une large gamme de taux de cisaillement ; ce qui prouve que la vitesse de glissement, v_s , équation (1.54) est très petite. Par conséquent, le taux de cisaillement mesuré par le rhéomètre, $\dot{\gamma}_{app}$, est en effet le taux de cisaillement réel $\dot{\gamma}_{rel}$. Cette comparaison donne une estimation quantitative du glissement que nous considérerons négligeable dans la suite de nos expériences.

3.5 Comportement de la viscosité stationnaire en fonction du taux de cisaillement

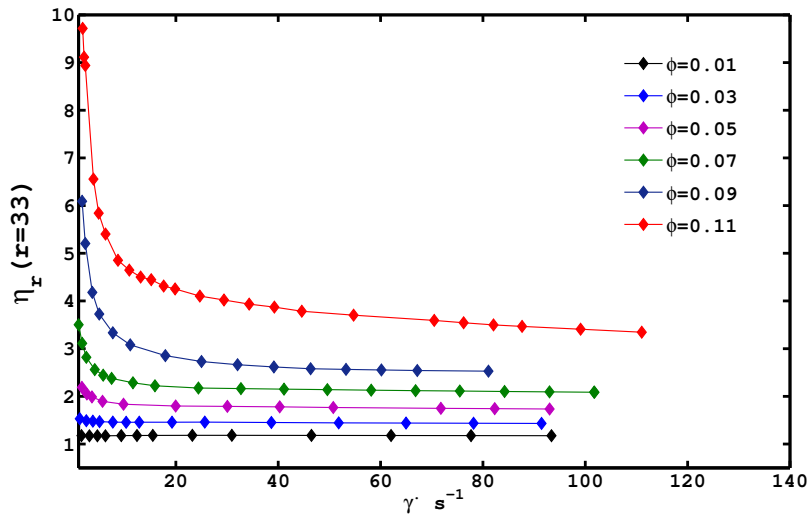
Le comportement de la viscosité relative, η_r , stationnaire pour différentes concentrations et trois rapports d'aspect, en fonction du taux de cisaillement, $\dot{\gamma}_R(t)$, est illustré sur la figure (3.9). De ces observations, nous pouvons déduire trois résultats majeurs :



(a)



(b)



(c)

FIG. 3.9 – Viscosité relative η_r en fonction du taux de cisaillement $\dot{\gamma}_R$ pour des suspensions de fibres de trois rapports d'aspect. (a) $a_r = 10$. (b), $a_r = 18$. (c) $a_r = 33$. Les mesures sont effectuées pour un entrefer $H = 12L$.

- (a) : La viscosité stationnaire augmente avec la concentration ϕ des fibres et le rapport d'aspect a_r .
- (b) : Lorsque la concentration augmente, la viscosité stationnaire exhibe un comportement rhéofluidifiant qui est d'autant plus prononcé que la concentration et le rapport d'aspect augmentent ; la viscosité diminue à partir d'une valeur maximale dans les régions de faibles taux de cisaillement jusqu'à atteindre une valeur plateau, pour les grands taux de cisaillement, que nous désignerons dans la suite par η_{flat} .
- (c) : La viscosité stationnaire est indépendante du taux de cisaillement pour les suspensions diluées.

Notons que, puisque le fluide suspendant est newtonien, le comportement rhéofluidifiant des suspensions de fibres est dû uniquement à la présence des fibres dans la suspension.

Le comportement rhéofluidifiant dans les suspensions de fibres a déjà été observé expérimentalement [Mongruel & Cloitre 1999], [Ganani & Powell 1986], [Sepehr *et al.* 2004], cependant son origine est encore une question ouverte.

Or, la plupart des modèles théoriques [Férec *et al.* 2009], ou simulations numériques, [Snook *et al.* 2014], [Sundararajakumar & Koch 1997], proposent une relation linéaire entre le taux de cisaillement et les forces d'interactions à courte portée, qu'elles soient des forces de lubrification, ou de contact mécanique (voir section (2.6.2), et ne parviennent donc pas à reproduire ce comportement rhéofluidifiant.

Nous verrons dans le chapitre 5, consacré à l'étude de la rhéofluidification observée dans les suspensions de fibres, que celle-ci peut être expliquée par l'introduction de forces de contact ou d'adhésion entre fibres, indépendantes des contraintes liées à l'écoulement.

3.6 Viscosité au plateau newtonien

Dans la majorité des expériences de cisaillement effectuées, le plateau newtonien est atteint (voir figure (3.9), à l'exception de quelques mesures réalisées sur des suspensions de fibres en régime concentré, (par exemple , $\phi = 0.22$, $a_r = 10$).

Pour déterminer la viscosité plateau réelle, nous avons alors effectué une extrapolation des

données expérimentales par la loi suivante :

$$\eta_r = A^* \dot{\gamma}^{(s-1)} + \eta_{flat} \quad (3.22)$$

où, A^* et s , et η_{flat} , qui correspondent à la viscosité recherchée, sont les paramètres du fit. Il faut s'assurer que cette méthode conduit à des valeurs réalistes de η_{flat} , et en particulier que la valeur extrapolée ne dépend pas de la gamme du taux de cisaillement qui a été choisie pour conduire à l'extrapolation.

Pour cela, nous réalisons deux extrapolations à partir de deux gammes de taux de cisaillement différentes : $\dot{\gamma} \in [0, 40](s^{-1})$ et $\dot{\gamma} \in [0, 200](s^{-1})$ et nous nous assurons que nous obtenons des valeurs comparables pour η_{flat} .

Les figures (3.10) et (3.11), montrent que quelque soit la gamme de taux de cisaillement choisie, l'extrapolation des données conduit à la même courbe de viscosité en fonction de $\dot{\gamma}$. La table (3.3) regroupe les différents paramètres du fit, A^* et s , ainsi que la viscosité plateau, η_{flat} obtenus par les deux méthodes d'extrapolation et les suspensions de fibres présentées sur les figures (3.10) et (3.11).

a_r	$\dot{\gamma}$ s^{-1}	$\phi = 0.11$			$\phi = 0.15$		
		A^*	s	η_{flat}	A^*	s	η_{flat}
18	[1 : 200]	2.75	0.203	2.19	5.39	0.445	3.32
	[1 : 40]	3.00	0.184	2.18	5.22	0.412	3.35
a_r	$\dot{\gamma}$ s^{-1}	$\phi = 0.09$			$\phi = 0.11$		
		A^*	s	η_{flat}	A^*	s	η_{flat}
33	[1 : 200]	6.07	0.092	2.45	10.9	0.124	3.34
	[1 : 40]	5.22	0.0297	2.47	11.8	0.060	3.32

TAB. 3.3 – Valeurs des paramètres du fit obtenues par les deux méthodes d'extrapolation, pour des suspensions de fibres rhéofluidifiantes. Tableau en haut ($a_r = 18$, $\phi = 0.11$, $\phi = 0.15$). Tableau en bas ($a_r = 33$, $\phi = 0.09$, $\phi = 0.11$). Les différentes colonnes représentent : la gamme de taux de cisaillement sur laquelle l'extrapolation est effectuée, les différentes concentrations, la constante, A^* , l'exposant, s , et la viscosité plateau η_{flat} . Pour une concentration et un rapport d'aspect donnés, les deux méthodes d'extrapolation donnent la même viscosité plateau η_{flat} .

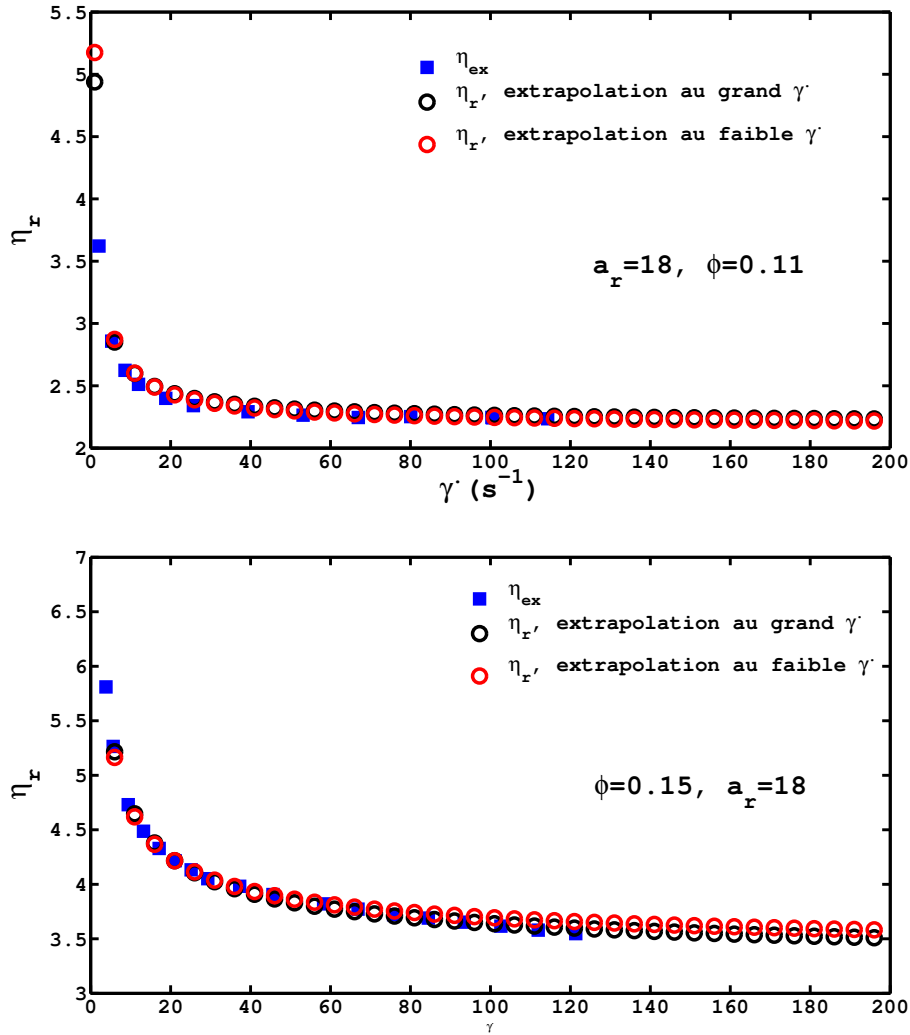


FIG. 3.10 – Viscosité relative en fonction du taux de cisaillement : (a) Pour une suspension ($a_r = 18, \phi = 0.11$). (b) Pour une suspension ($a_r = 18, \phi = 0.15$). Exemple de méthode d'extrapolation des données expérimentales de viscosité pour la détermination de la viscosité au plateau newtonien. Données expérimentales, (carrés bleus), données obtenues par extrapolation à partir de faibles taux de cisaillement (cercles noirs), et les points en rouge représentent les données obtenues par extrapolation des données expérimentales à partir de grands taux de cisaillement. Les courbes se confondent sur toute la plage du taux de cisaillement.

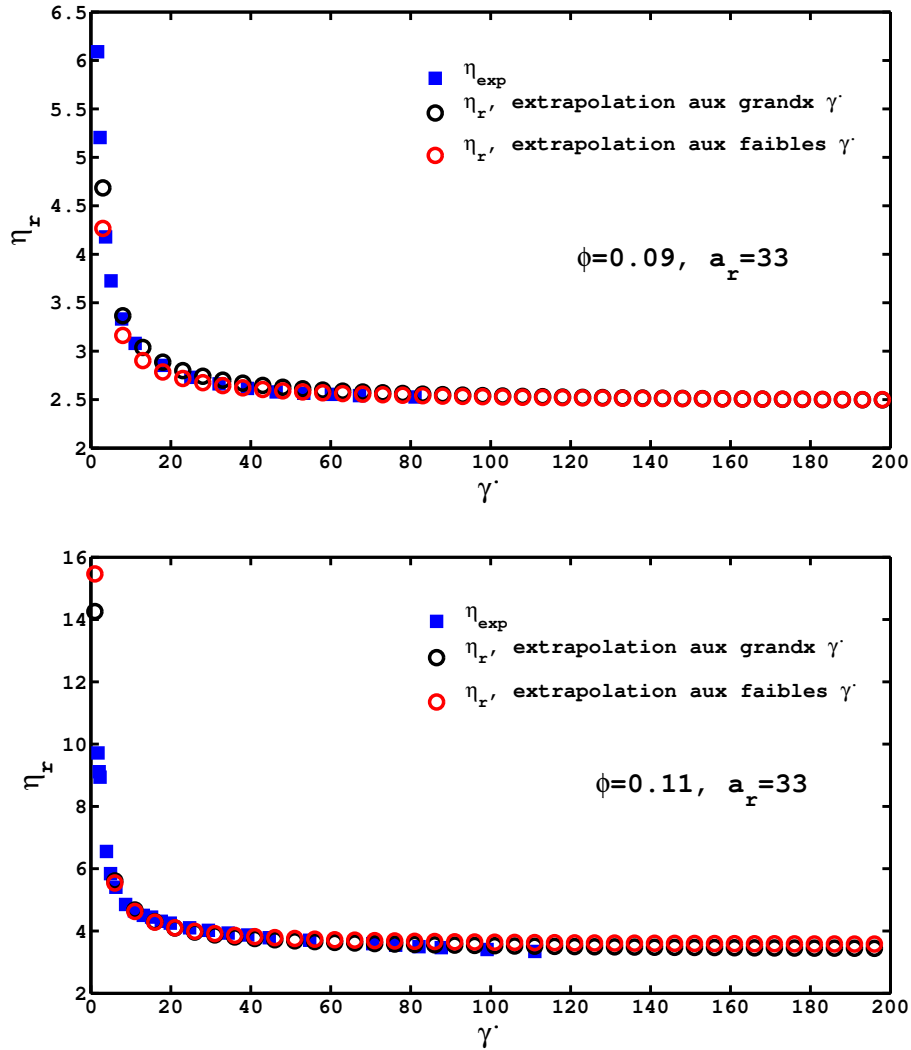


FIG. 3.11 – Viscosité relative en fonction du taux de cisaillement : (a) Pour une suspension ($a_r = 33, \phi = 0.09$). (b) Pour une suspension ($a_r = 33, \phi = 0.11$). Exemple de méthode d'extrapolation des données expérimentales de viscosité pour la détermination de la viscosité au plateau newtonien. Données expérimentales, (carrés bleus), données obtenues par extrapolation à partir de faibles taux de cisaillement (cercles noirs), et les points en rouge représentent les données obtenues par extrapolation des données expérimentales à partir de grands taux de cisaillement. Les courbes se confondent sur toute la plage du taux de cisaillement.

3.7 Influence de l'échelle caractéristique de l'écoulement H

Dans cette partie nous nous sommes intéressés à l'effet du confinement sur les mesures de viscosité. Rappelons que les mesures de viscosité ont été effectuées sur une géométrie plan-plan implémentée dans une cuve cylindrique (section 3.4.2).

Deux motivations majeures nous ont amenés à choisir cette géométrie. La première est de nous permettre d'effectuer des mesures de viscosité avec un large entrefer, allant jusqu'à $H = 10mm$. Par ailleurs, il est connu que, en géométrie conventionnelle, lorsque la suspension présente une surface libre et pour un taux de cisaillement $\dot{\gamma}_R$ assez grand, des effets de fracturation de la suspension peuvent apparaître pendant l'écoulement [Keentok & Xue 1999], (section 1.7.3).

L'utilisation de cette cellule permet d'augmenter le taux de cisaillement jusqu'à $\dot{\gamma}_R \sim 100s^{-1}$, et ainsi d'atteindre la viscosité plateau, η_{flat} , sans observer de perturbation de l'écoulement.

A notre connaissance, ce type de cellule d'écoulement a été utilisé uniquement par [Bibbo 1987] et [Zirnsak *et al.* 1994]. [Zirnsak *et al.* 1994] ont effectué les mesures rhéologiques sur des suspensions en régime semi-dilué, avec des fibres très longues et de très grands rapports d'aspect : $(a_r = 276, L = 3.2mm)$ et $(a_r = 552, L = 6.4mm)$. Dans leurs expériences, l'entrefer varie de $2.5mm$ à $5mm$, donnant ainsi un paramètre de confinement variant de 0.8 à 1.6, ce qui n'exclut pas les effet de parois.

[Bibbo 1987] effectue des mesures rhéologiques pour des suspensions de fibres dont le rapport d'aspect est proche de celui des fibres que nous étudions $a_r = 10$, $a_r = 17$ et $a_r = 33$, mais la longueur des fibres est très grande, $L \sim 1mm - 5mm$, pour un entrefer $H = 2L$.

Pour notre étude, nous avons mené une étude systématique de l'influence de l'entrefer, en faisant varier le confinement de $H = 5L$ à $H = 26L$, pour des suspensions de fibres de faible longueur $L = 300\mu m$ et $L = 500\mu m$.

3.7.1 Influence du confinement sur la rhéofluidification

Lorsque les suspensions de fibres sont confinées, leur microstructure (distribution d'orientation) et les interactions au sein de la suspension sont différentes de celles des suspensions de fibres non confinées, ce qui peut modifier les mesures des propriétés rhéologiques.

[Zirnsak *et al.* 1994] montrent que, dans le cas des suspensions de fibres semi diluées, si les fibres sont alignées suivant la direction de l'écoulement et pour un grand rapport d'aspect, les effets de bords sont absents. [Bibbo 1987] montre que l'effet du confinement est négligeable lorsque $H > 2L$.

Ces observations nous ont amenés à explorer l'effet du confinement pour les trois régimes de concentration, dilué, semi dilué et concentré, pour lesquels les suspensions possèdent une microstructure différente.

Pour le cas de suspensions diluées, nous avons considéré deux suspensions de rapport d'aspect $a_r = 10$, et de concentration, $\phi = 0.02$ et $\phi = 0.08$. Nous avons fait varier l'entrefer de $H = 6L$ à $H = 26L$; les résultats des courbes d'écoulement sont reportés sur la figure (3.12 (a) et (b)).

La figure montre que les deux suspensions ont un comportement quasi newtonien, et quel que soit l'entrefer aucune rhéofluidification n'est observée, (ou une légère rhéofluidification, dans le cas de la suspension de concentration $\phi = 0.08$). De plus, les courbes d'écoulement sont quasiment identiques quel que soit le confinement (aux erreurs de mesure près).

Ce résultat est en accord avec les résultats de [Zirnsak *et al.* 1994] et [Bibbo 1987], en l'absence d'interactions entre fibres.

Contrairement, lorsque les suspensions sont concentrées, l'effet du confinement sur les mesures de viscosité se fait sentir. Sur la figure (3.13) et (3.14), nous présentons l'effet du confinement sur la rhéofluidification pour des suspensions de fibres de rapport d'aspect $a_r = 18$ et $a_r = 33$ respectivement. Les indices (a), (b), (c) se réfèrent à trois différentes concentrations $\phi = 0.11$, $\phi = 0.12$ et $\phi = 0.13$.

Dans les trois cas, on voit que l'augmentation du confinement augmente la rhéofluidification, ainsi que la viscosité plateau. Les courbes d'écoulement collapser à partir d'un paramètre de confinement $H = 12L$.

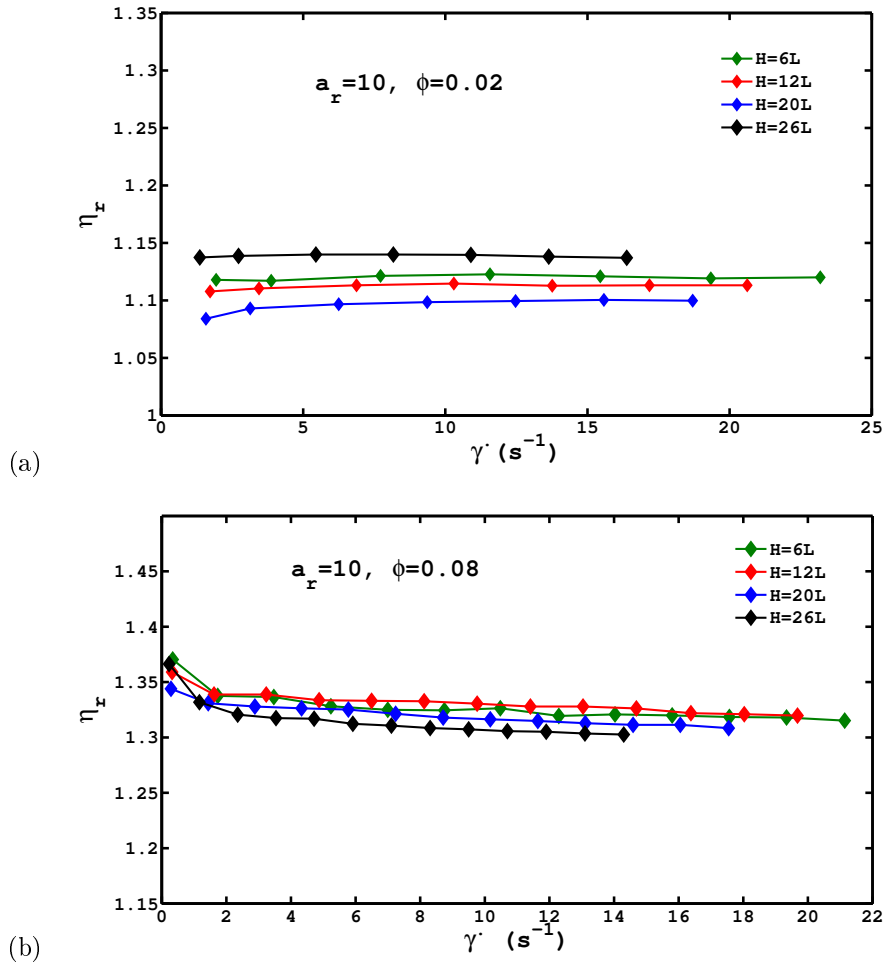


FIG. 3.12 – Effet du confinement sur le comportement de suspensions "newtoniennes". Viscosité relative η_r en fonction du taux de cisaillement $\dot{\gamma}_R$, pour une suspension de fibres de rapport d'aspect $a_r = 10$ et 2 concentrations différentes. (a) $a_r = 10, \phi = 0.02$. (b), $a_r = 10, \phi = 0.008$. L'effet du confinement sur les deux suspensions est quasi inexistant.

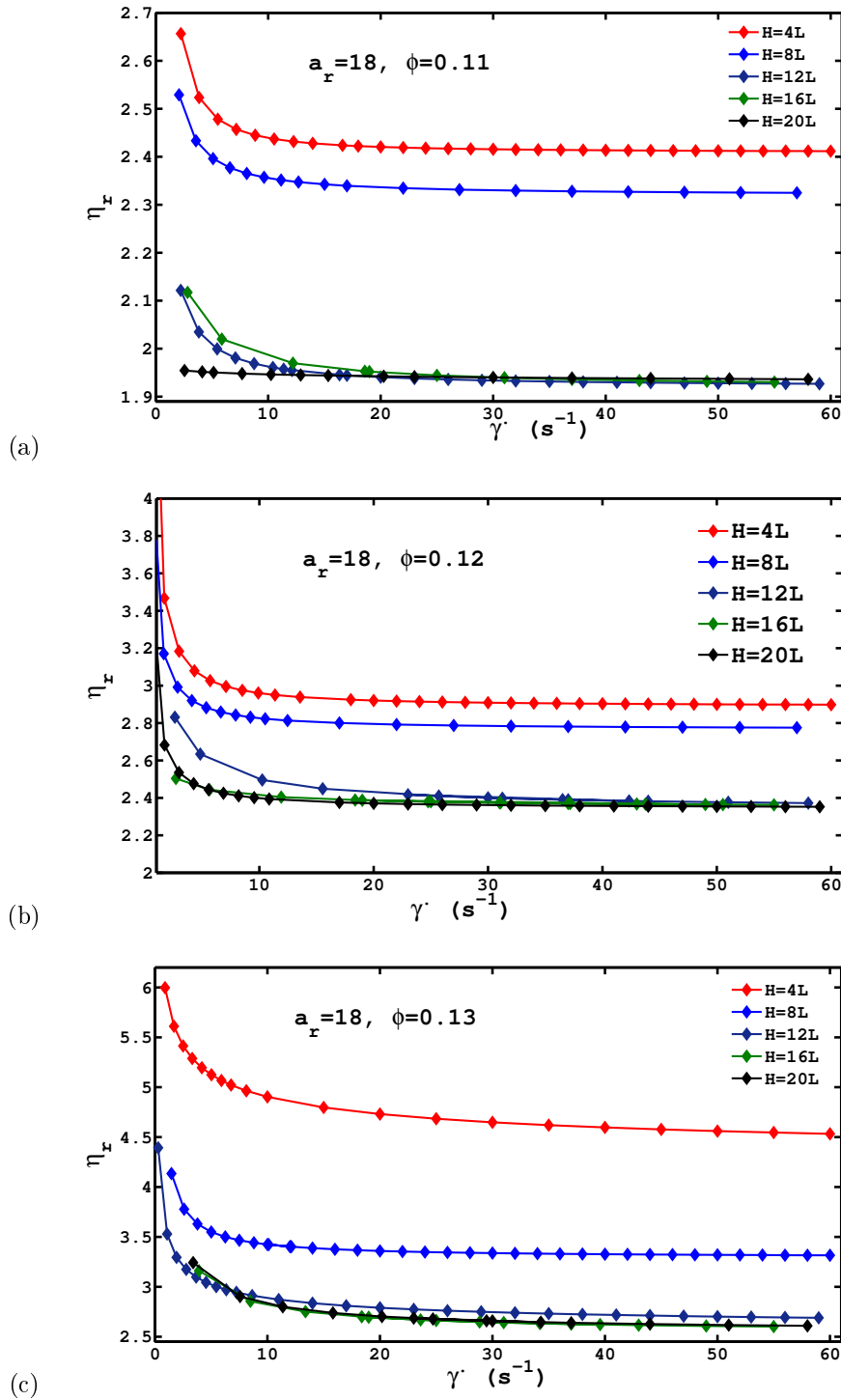


FIG. 3.13 – Effet du confinement sur la rhéofluidification des suspensions concentrées. Viscosité relative η_r en fonction du taux de cisaillement $\dot{\gamma}_R$, pour des suspensions de fibres de rapport d'aspect $a_r = 18$ et 3 concentrations différentes. (a) $\phi = 0.11$. (b) $\phi = 0.12$ et (c) $\phi = 0.13$. La viscosité est d'autant plus grande que l'entrefer est petit, la viscosité à grand taux de cisaillement $\dot{\gamma}_R$ devient indépendante de H quand $H \geq 12L$.

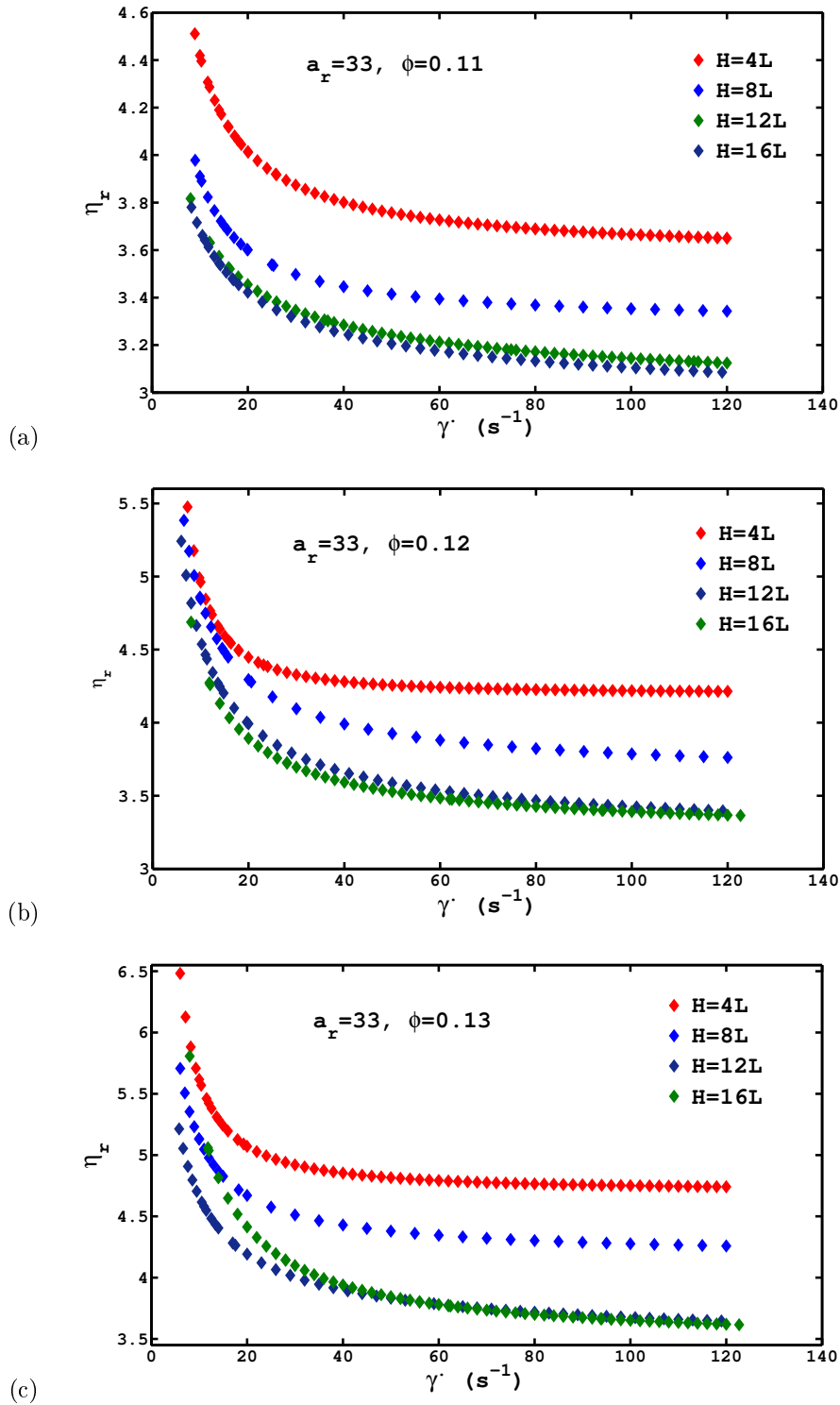


FIG. 3.14 – Effet du confinement sur la rhéofluidification des suspensions concentrées. Viscosité relative η_r en fonction du taux de cisaillement $\dot{\gamma}_R$, pour une suspensions de fibres de rapport d'aspect $a_r = 33$ et 3 concentrations différentes. (a) $\phi = 0.11$. (b), $\phi = 0.12$ et (c) $\phi = 0.13$. La viscosité est d'autant plus grande que l'entrefer est petit, la viscosité à grand taux de cisaillement $\dot{\gamma}_R$ devient indépendante de H quand $H \geq 12L$.

3.7.2 Influence du confinement sur la viscosité au plateau newtonien

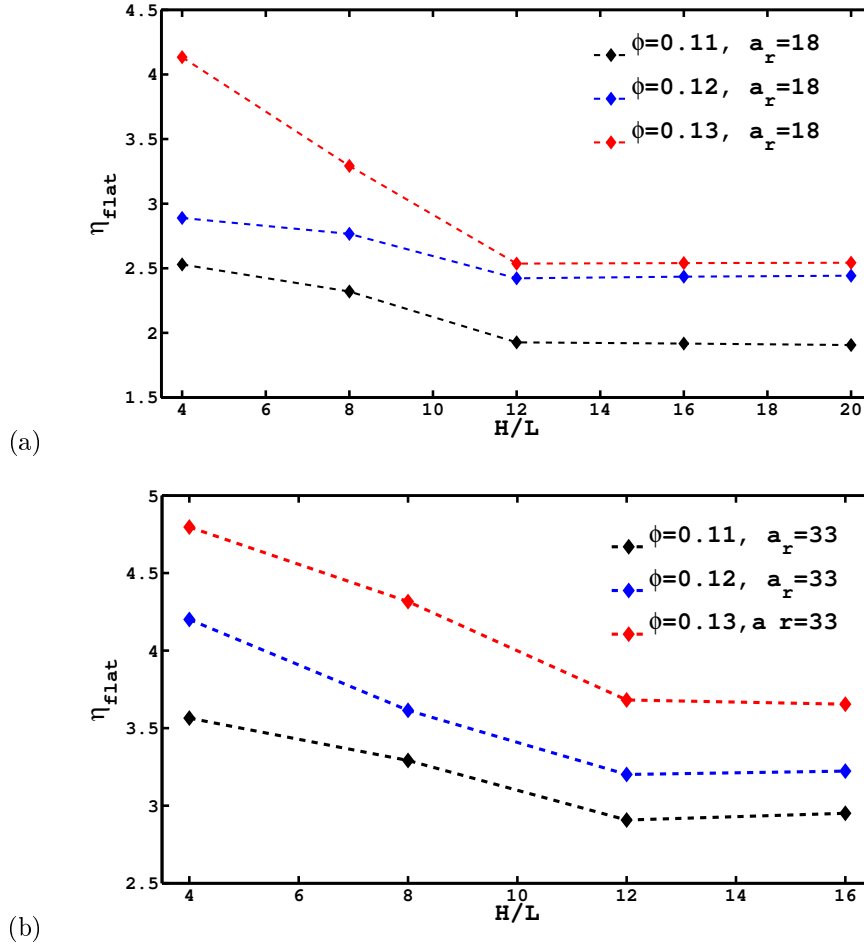


FIG. 3.15 – Viscosité relative η_{flat} du plateau newtonien en fonction du paramètre de confinement, H/L , pour des suspensions de fibres de trois concentrations, $\phi = 0.11$, $\phi = 0.12$, $\phi = 0.13$ et de 2 rapports d'aspect. (a) $a_r = 18$. (b), $a_r = 33$. La longueur des fibres pour les deux lots est $L = 500\mu m$. L'effet du confinement est plus important pour les suspensions à grand rapport d'aspect et de grande concentration.

La figure (3.15) reporte les valeurs de viscosité relative η_{flat} du plateau newtonien en fonction du paramètre du confinement H/L pour trois concentrations $\phi = 0.11$, $\phi = 0.12$ et $\phi = 0.13$. La figure (3.15 (a)) correspond aux suspensions de fibres de rapport d'aspect $a_r = 18$, et la figure (3.15(b)) correspond aux suspensions de fibres de rapport d'aspect $a_r = 33$.

Pour les deux rapports d'aspect de fibres et les trois concentrations, la viscosité présente une

valeur très grande lorsque le confinement est important, qui diminue lorsque H augmente jusqu'à atteindre une valeur constante pour laquelle l'entrefer vaut $H = 12L$. Ce résultat est intéressant, car il montre qu'en régime concentré, l'effet du confinement ne dépend pas du rapport d'aspect ou de la concentration, mais uniquement du rapport de la taille caractéristique de l'écoulement H sur la longueur de fibres L .

De cette mesure, nous parvenons à déterminer l'entrefer critique au dessus duquel les mesures de viscosité sont indépendantes du confinement ($H_c = 12L$).

Afin d'apporter une confirmation à ce résultat, nous avons effectué la même étude systé-

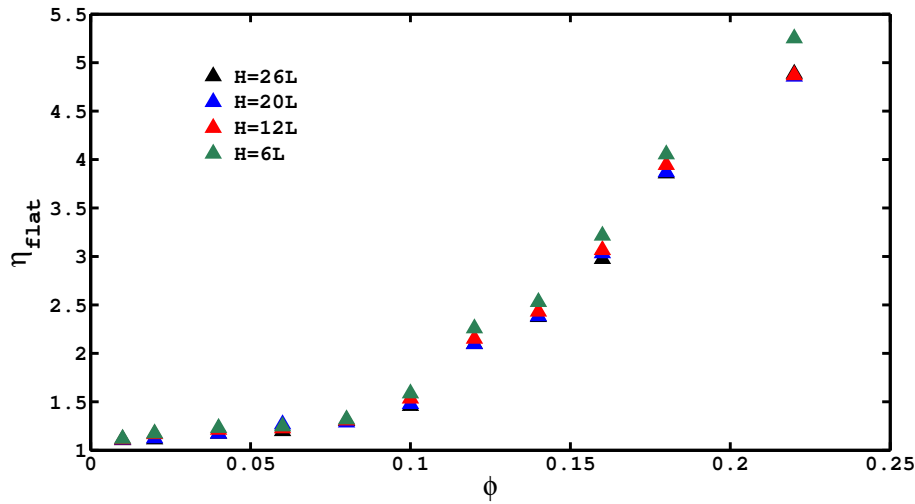


FIG. 3.16 – Viscosité relative en fonction de la concentration, et à différents paramètres du confinement H/L , pour des fibres de rapport d'aspect $a_r = 10$ et de longueur $L = 300\mu m$

matique de l'effet de l'entrefer pour des suspensions de fibres de rapport d'aspect $a_r = 10$, pour lesquelles la longueur de fibres est de $L = 300\mu m$, ce qui nous permet d'augmenter l'exploration du confinement, et ce, pour une large gamme de concentration, permettant ainsi d'explorer les trois régimes de concentration : dilué semi-dilué et concentré.

Sur la figure (3.16), nous reportons les résultats de mesure de la viscosité plateau η_{flat} . Pour chaque concentration, nous avons fait varier le paramètre de confinement de $H = 6L$ jusqu'à $H = 26L$. La figure montre d'une part, que la viscosité plateau, η_{flat} , augmente avec la concentration, et d'autre part, que, pour une concentration inférieure à $\phi = 0.12$, la valeur de η_{flat} ne dépend pas de l'échelle caractéristique de l'écoulement H .

Dans cette gamme de concentration l'effet du confinement est alors absent, alors que pour des concentrations supérieures à $\phi = 0.12$, l'effet du confinement ne peut être négligé. La viscosité diminue lorsque l'entrefer augmente et n'atteint une valeur constante qu'à partir de $H = 12L$. Ce résultat est en accord avec les mesures reportées sur la figure (3.15). Nous pouvons alors nous interroger sur la raison pour laquelle l'effet du confinement est absent pour des concentrations inférieures à $\phi = 0.12$.

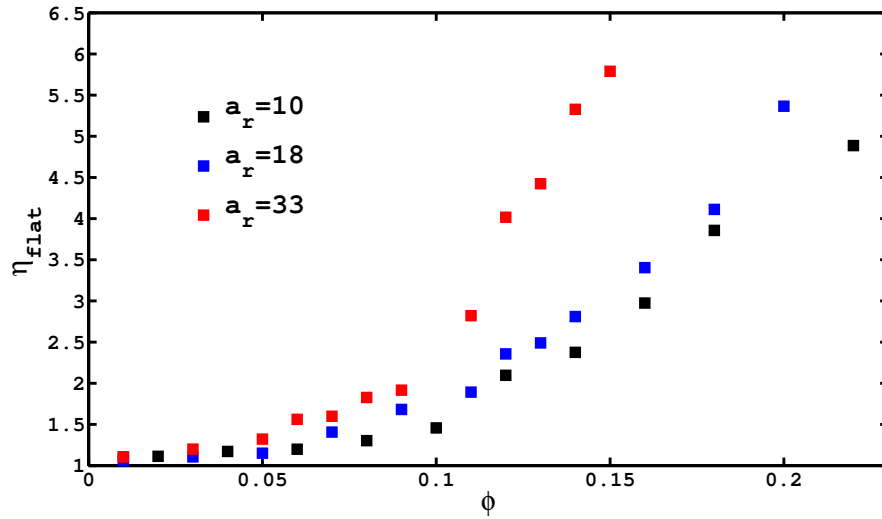
Il faut d'abord rappeler que la suspension est faiblement concentrée, en effet, $\phi = 0.12$ et $a_r = 10$, correspondent à un paramètre de concentration, $nL^2d \sim 1.5$, ce qui montre que nous sommes à la limite entre le régime semi-dilué et concentré.

Par ailleurs, en se référant à la figure (3.9 (a)) qui décrit le comportement de la viscosité relative en fonction du taux de cisaillement $\dot{\gamma}_R$, nous pouvons faire le lien avec la rhéofluidification des suspensions, qui apparaît seulement à partir de $\phi = 0.12$, pour $a_r = 10$. Cela nous amène à conclure que l'effet du confinement est absent pour des suspensions de fibres exhibant un comportement newtonien. En revanche, pour des suspensions rhéofluidifiantes, lorsque les interactions inter-fibres deviennent prédominantes, l'effet du confinement devient important, sans doute parce qu'il peut altérer la microstructure.

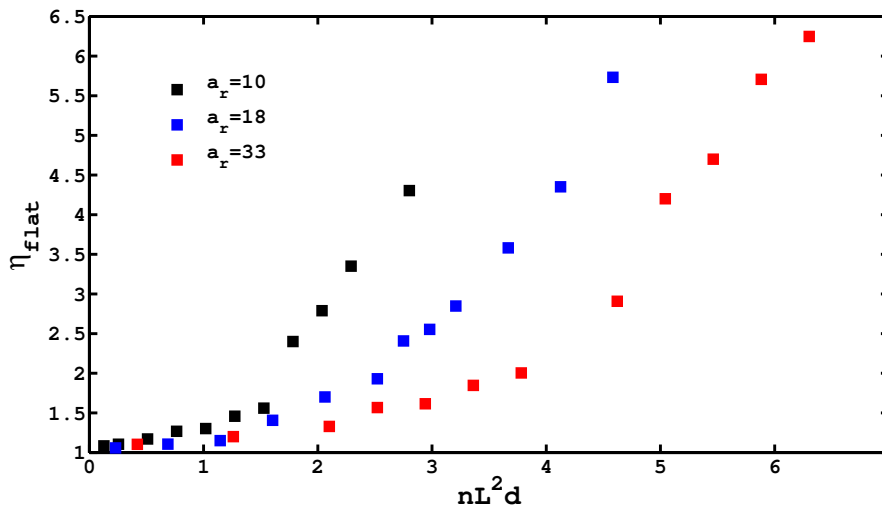
Ceci est en accord avec les résultats rapportés par [Bibbo 1987] et [Zirnsak *et al.* 1994]. En effet, les suspensions de fibres que les auteurs ont étudiées ont un comportement newtonien, bien que le paramètre de confinement ait varié de manière faible, les auteurs n'ont observé aucun changement des propriétés rhéologiques des suspensions de fibres.

3.8 Comportement en loi d'échelle : Influence de la concentration

L'étude que nous avons menée précédemment, nous a permis d'obtenir une mesure de viscosité relative de la suspension. Pour une concentration, ϕ , et un rapport d'aspect, a_r , donnés, cette viscosité correspond à la viscosité relative prise au plateau newtonien et mesurée pour un entrefer H , suffisamment grand pour qu'il n'y ait pas d'effets liés au confinement. De ce fait, les mesures effectuées ne sont pas biaisées par les paramètres de l'expérimentation : effet du confinement, effet des parois de la cellule d'écoulement, ou encore taux de cisaillement. Par la suite, nous utiliserons ces valeurs pour tester certains modèles théoriques,



(a)



(b)

FIG. 3.17 – Viscosité plateau η_{flat} pour trois rapports d'aspect, $a_r = 10$, $a_r = 18$, $a_r = 33$. (a) en fonction de la concentration. (b), en fonction du paramètre nL^2d .

simulations numériques et comparer avec d'autres mesures expérimentales.

Les figures (3.17 (a) et (b)) illustrent le comportement de viscosité plateau, η_{flat} , en fonction de la concentration et du paramètre nL^2d , pour trois rapports d'aspect $a_r = 10$, $a_r = 18$, $a_r = 33$. Nous observons que la viscosité η_r croît avec la concentration et le rapport d'aspect.

3.8.1 Loi d'échelle en régime dilué et semi dilué

En régime dilué et semi dilué $nL^2d < 1$, [Shaqfeh & Fredrickson 1990] établissent une loi de comportement décrite dans le chapitre (2), section (2.6.1). Rappelons alors l'expression de la viscosité relative, prédite par leur modèle, dans le cas où les fibres sont alignées :

$$\eta_r = 1 + \frac{4\phi a_r^2}{3[\ln(1/\phi) + \ln(\ln(1/\phi)) + 0.1585]} \langle p_1^2 p_2^2 \rangle \quad (3.23)$$

avec $\langle p_1^2 p_2^2 \rangle = 0.371/a_r$, qui correspond à la loi empirique établie par [Stover *et al.* 1992]. En réécrivant l'équation (3.23) de manière à faire apparaître le paramètre nL^2d , l'expression de la viscosité relative prend la forme suivante :

$$\eta_r^{n-corps} = 1 + 0.388 \frac{nL^2d}{[\ln(1/\phi) + \ln(\ln(1/\phi)) + A]} \quad (3.24)$$

On s'attend alors à un comportement linéaire de la viscosité lorsque celle-ci est tracée en fonction du paramètre β , où $\beta = \frac{nL^2d}{[\ln(1/\phi) + \ln(\ln(1/\phi)) + A]}$, avec une pente $\alpha = 0.388$. Sur la figure (3.18), nous reportons une analyse de la loi de comportement de la viscosité, décrite par le modèle de [Shaqfeh & Fredrickson 1990] (équation (3.24)). Toutes nos données expérimentales collapent en une seule courbe linéaire jusqu'à $\beta \leq 0.2$, valeurs correspondantes au régime semi-dilué ($nL^2d \sim 1$), ce qui montre que la variable β capture le mécanisme d'interaction qui gouverne la contribution des fibres à la viscosité. En revanche, la théorie semble sous-estimer la viscosité, puisque nous trouvons une droite dont la pente, $\alpha = 0.784$, est bien plus élevée que celle prédite par la théorie $\alpha = 0.388$.

3.8.2 Loi d'échelle en régime concentré

En régime concentré, différents modèles semi-empiriques ont été établis pour tenir compte des interactions à courte portée dans les suspensions de fibres. Un des modèles

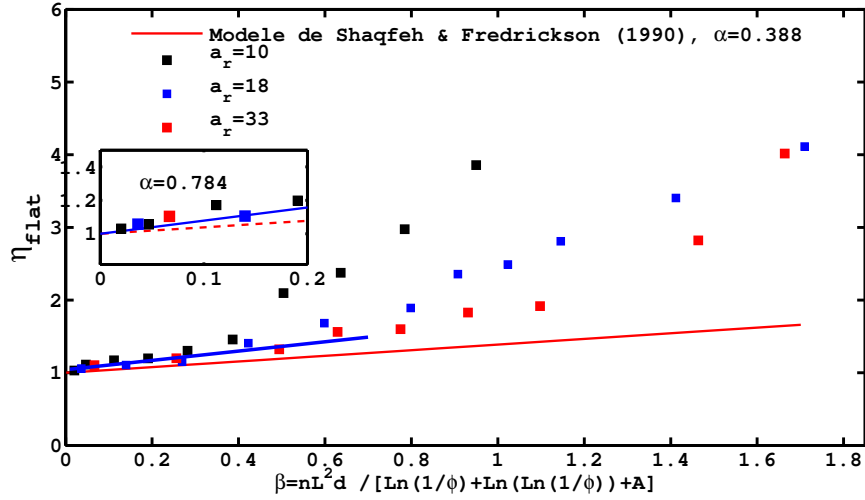


FIG. 3.18 – Viscosité relative en fonction du paramètre β , pour trois rapports d'aspect, $a_r = 10$, $a_r = 18$, $a_r = 33$, dans le présent travail. Les données expérimentales collapent sur une même courbe maîtresse linéaire de pente 0.784.

que nous aborderons est le TIF modèle (Transversally isotropic fluid model) proposé par [Ericksen 1959], [Kitano *et al.* 1980] et [Phan-Thien & Graham 1991].

[Phan-Thien 1995] proposent de modéliser le comportement des suspensions en régime concentré par la loi suivante :

$$\eta_r = 1 + k \cdot \phi \cdot \left(2 - \frac{\phi}{\phi^*}\right) \cdot \left(1 - \frac{\phi}{\phi^*}\right)^{-2} \quad (3.25)$$

où k , est un paramètre qui prend en compte la moyenne d'orientation des fibres et ϕ^* , représente la concentration de packing. Il est assez intuitif de s'attendre à ce que les paramètres, k et ϕ^* , dépendent du rapport d'aspect des fibres, a_r . Plus le rapport d'aspect est grand, plus ϕ^* est petit et plus k , est grand.

Dans leur modèle, [Phan-Thien & Graham 1991] calculent le paramètre k à partir des moyennes d'orientation des fibres; ils montrent que $\langle p_1^2 p_2^2 \rangle \sim 1/a_r^2$, et utilisent la relation de [Kitano *et al.* 1981] pour la détermination de ϕ^* , qui est une loi empirique valable pour des solutions de polymère chargées de fibres de rapport d'aspect $5 \leq a_r \leq 30$. Les paramètres ϕ^* , et k , utilisés dans le modèle de [Phan-Thien & Graham 1991] ont la dépen-

dance suivante en fonction de a_r :

$$\begin{cases} \phi^* = 0.53 - 0.013 \cdot a_r & [\text{Kitano } et al. 1981] \\ k = 0.731 + 0.069 \cdot a_r & [\text{Phan-Thien \& Graham 1991}] \end{cases} \quad (3.26)$$

Cependant, l'introduction de ces expressions de ϕ^* , et k , dans l'équation (3.25), ne permet pas de modéliser nos résultats expérimentaux. Nous avons donc considéré, ϕ^* , et k , comme des paramètres ajustables et nous obtenons alors la dépendance suivante de ϕ^* , et k en fonction de a_r :

$$\begin{cases} \phi^* = 0.47 - 0.0074 \cdot a_r \\ k = 1.247 + 0.099 \cdot a_r \end{cases} \quad (3.27)$$

Une comparaison entre les paramètres k , et ϕ^* du modèle de [Phan-Thien & Graham 1991] et [Kitano *et al.* 1981] et ceux donnés dans l'équation (3.27) est illustrée sur la figure (3.19). La fraction volumique de packing, ϕ^* , est représentée sur la figure (3.19 (a)), nous trouvons des valeurs plus élevées que celles données par [Kitano *et al.* 1981]. La comparaison des valeurs de k est illustrée sur la figure (3.19 (b)), pour laquelle nous trouvons à nouveau des valeurs plus élevées que celles données par [Phan-Thien & Graham 1991]. Sur la figure (3.20), nous présentons le comportement de la viscosité relative η_r , en fonction de la concentration pour les trois rapports d'aspect $a_r = 10, 18, 33$. La figure (3.20 (a)), illustre le modèle de [Phan-Thien & Graham 1991], pour lequel les paramètres ϕ^* , et k sont donnés dans l'équation (3.27). Le modèle reproduit bien les données expérimentales de la viscosité relative, sur une large gamme de concentration, et pour les trois rapports d'aspect. La figure (3.20 (b)) représente le modèle de [Phan-Thien & Graham 1991], pour lequel les paramètres ϕ^* et k correspondent à ceux donnés par [Kitano *et al.* 1981] et [Phan-Thien & Graham 1991], respectivement, tels que définis dans l'équation (3.26). La comparaison est alors possible uniquement pour les suspensions de fibres de rapport d'aspect $a_r = 10$ et $a_r = 18$, pour ce jeu de paramètres, le modèle [Phan-Thien & Graham 1991] ne semble reproduire les données expérimentales que jusqu'à $\phi \simeq 0.10$.

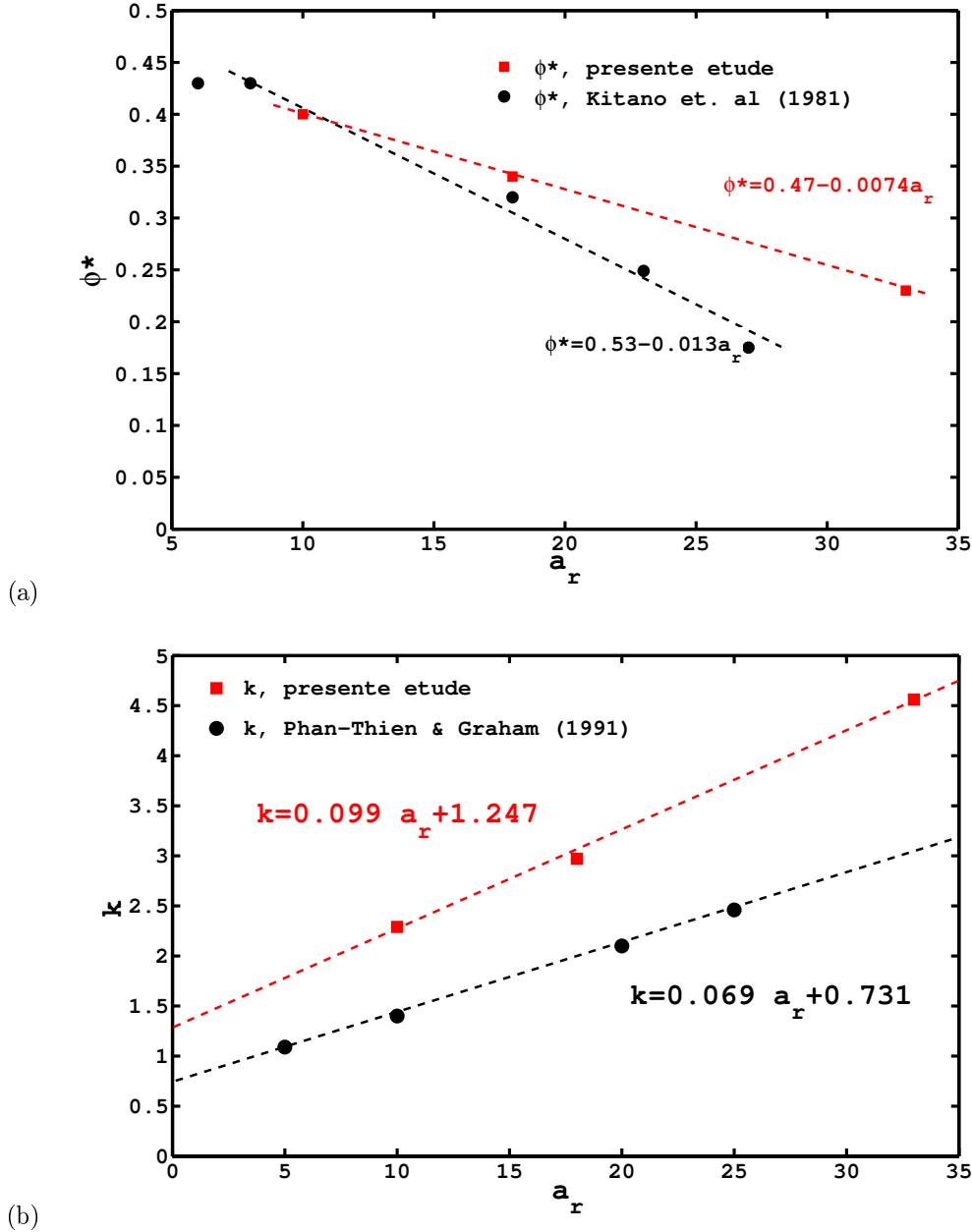
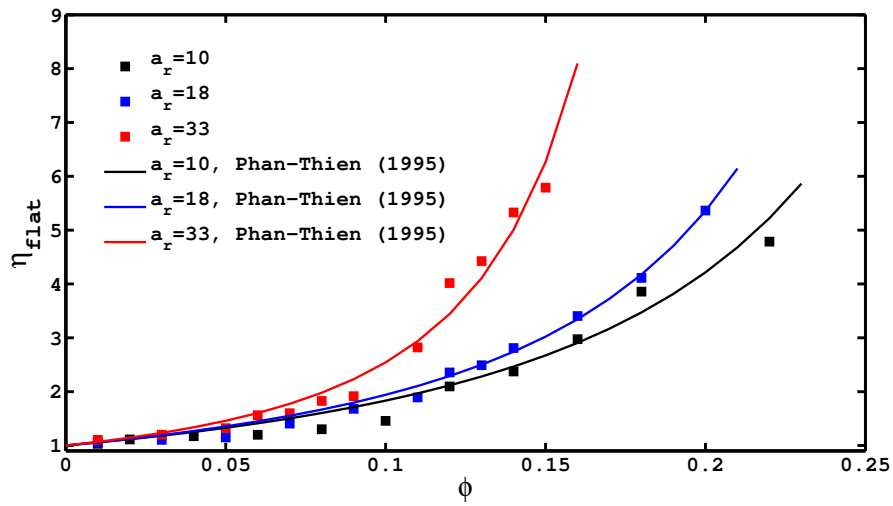
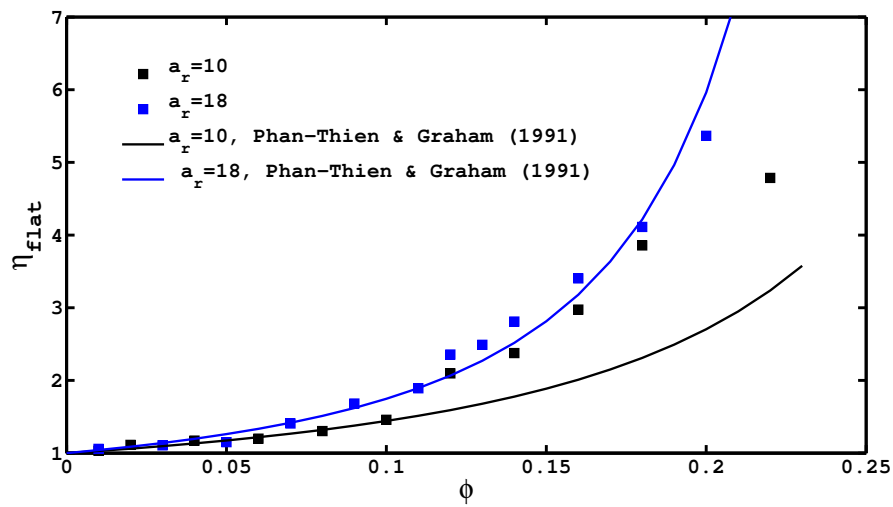


FIG. 3.19 – Paramètres ajustables du modèle de [Phan-Thien & Graham 1991]. (a), relation entre la fraction volumique de packing, ϕ^* , et le rapport d'aspect, $a_r = 10$, $a_r = 18$, $a_r = 33$, dans le présent travail (courbe en rouge). La droite représente l'approximation linéaire $\phi^* = 0.47 - 0.0074 \cdot a_r$, et comparaison avec les données expérimentales et la loi empirique proposée par [Kitano et al. 1981] (courbe en noir). (b) Comparaison entre les lois empiriques pour le paramètre k obtenu à partir des moyennes d'orientation $\langle p_1^2 p_2^2 \rangle$ de [Phan-Thien & Graham 1991].



(a)



(b)

FIG. 3.20 – Viscosité relative en fonction de la concentration, ϕ , pour les deux jeux de paramètres ajustables. (a) Paramètres obtenus par l'équation (3.27). (b) Paramètres obtenus par l'équation (3.26).

3.9 Comparaison avec les travaux précédents

Dans cette partie, nous allons confronter nos résultats de mesures de viscosité avec les données expérimentales trouvées dans la littérature, et certains résultats de simulations numériques présentés dans le chapitre précédent, pour voir la description des ces travaux, le lecteur est invité à se référer à la section (2.6.2).

3.9.1 Comparaison avec les données expérimentales

Nous avons collecté un nombre de données expérimentales pour des suspensions de fibres de rapports d'aspect comparables à ceux utilisés dans la présente étude. Nous comparerons nos résultats avec ceux de [Férec *et al.* 2009] et [Sepehr *et al.* 2004] qui effectuent des mesures de viscosité en géométrie plan-plan avec un entrefer $H = 1.5mm$, pour des fibres de rapport d'aspect $a_r = 20$ et de longueur $L \sim 300\mu m$; avec ceux de [Chaouche & Koch 2001] qui effectuent les mesures pour des fibres de rapport d'aspect $a_r = 36$ et de longueur $L = 500\mu m$, en géométrie de Couette cylindrique avec un entrefer de $H = 2mm$; ceux de [Mongruel & Cloitre 1999] qui effectuent des mesures de viscosité dans différentes géométries, géométrie plan-plan et Couette cylindrique, pour des suspensions de fibres de rapports d'aspect $a_r = [15, 36]$, et de longueurs $L = [337, 500]\mu m$, avec un entrefer de $H = 3mm$, et enfin, avec ceux de [Bibbo 1987] qui utilise une géométrie plan-plan avec un entrefer de $H = 2mm$, pour des fibres de rapports d'aspect $a_r = [17, 36]$ et de longueurs 2 et 8.25mm, respectivement.

La comparaison des données expérimentales est illustrée sur la figure (3.21). La figure (3.21 (a)) montre une comparaison des différents résultats pour les petits rapports d'aspect, $a_r = [10, 18]$ dans la présente étude, $a_r = 20$ pour [Férec *et al.* 2009] et [Sepehr *et al.* 2004], $a_r = 15$ pour [Mongruel & Cloitre 1999] et $a_r = 17$ pour [Bibbo 1987].

La figure (3.21 (b)) montre une comparaison pour les grands rapports d'aspect, $a_r = 33$ dans la présente étude, $a_r = 36$ de [Chaouche & Koch 2001], $a_r = 30$ pour [Mongruel & Cloitre 1999] et $a_r = 33$ [Bibbo 1987].

Nos mesures de viscosité sont en très bon accord avec les mesures présentées sur la figure (3.21) à l'exception de celles rapportées par [Mongruel & Cloitre 1999], qui sont supérieures aux nôtres.

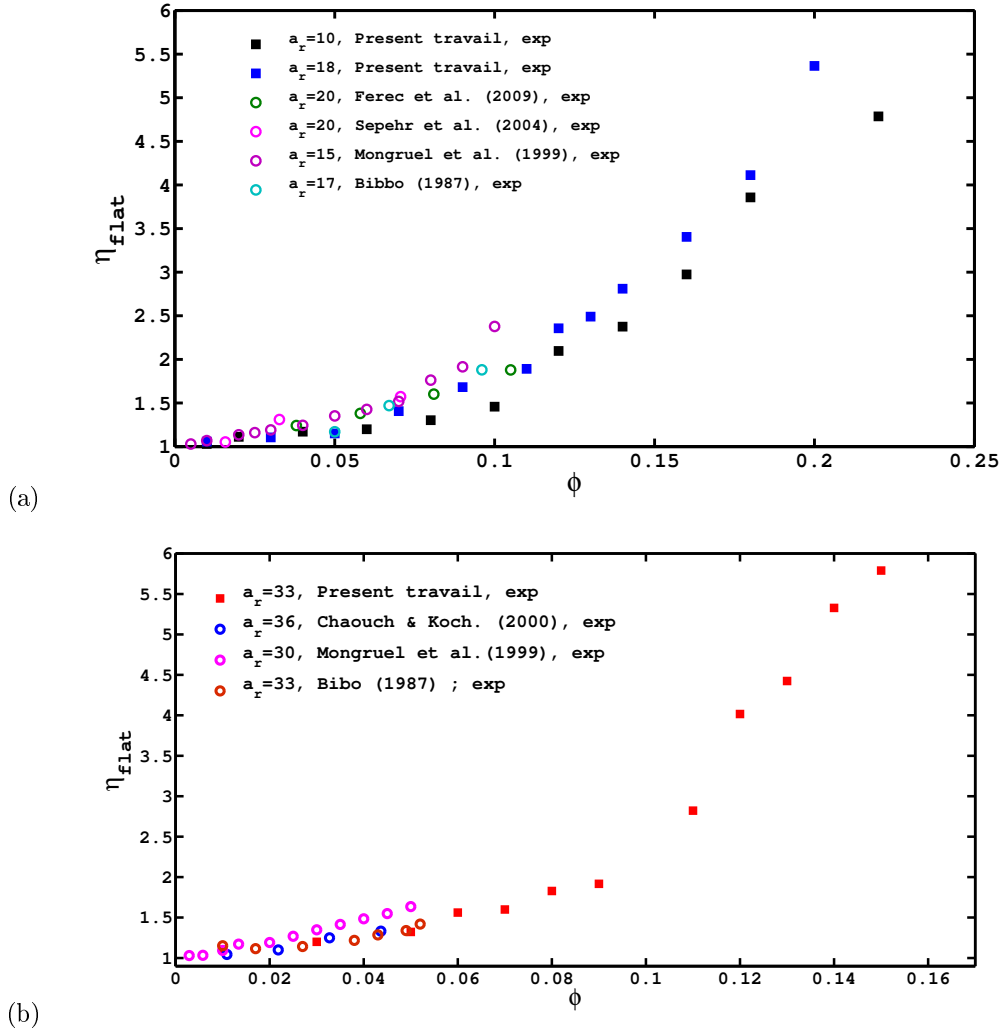


FIG. 3.21 – Viscosité plateau η_{flat} en fonction de la concentration ϕ . (a) Comparaison pour des suspensions de fibres de petits rapports d'aspect, $a_r = [10, 18]$, dans le présent travail avec les données expérimentales reportées par [Sepehr et al. 2004] et [Férec et al. 2009] pour $a_r = 20$, de [Mongruel & Cloitre 1999] pour $a_r = 15$ et de [Bibbo 1987] pour $a_r = 17$. (b) Comparaison pour les grands rapports d'aspect pour $a_r = 33$ dans la présente étude avec les données de [Chaouche & Koch 2001] pour $a_r = 36$, de [Mongruel & Cloitre 1999] pour $a_r = 30$ et de [Bibbo 1987] pour $a_r = 33$.

3.9.2 Comparaison en régime dilué et semi dilué

Étant donné que la plupart des mesures expérimentales de viscosité trouvées dans la littérature sont effectuées pour des suspensions de fibres en régime dilué et semi dilué, il est alors intéressant d'effectuer une comparaison à travers la loi d'échelle du modèle de [Shaqfeh & Fredrickson 1990], pour laquelle on s'attend à un comportement linéaire, avec $\eta_r = 1 + \alpha\beta$, comme nous l'avons discuté dans la section (3.8.1).

Sur la figure (3.22), nous reportons une analyse de la loi de comportement de la viscosité,

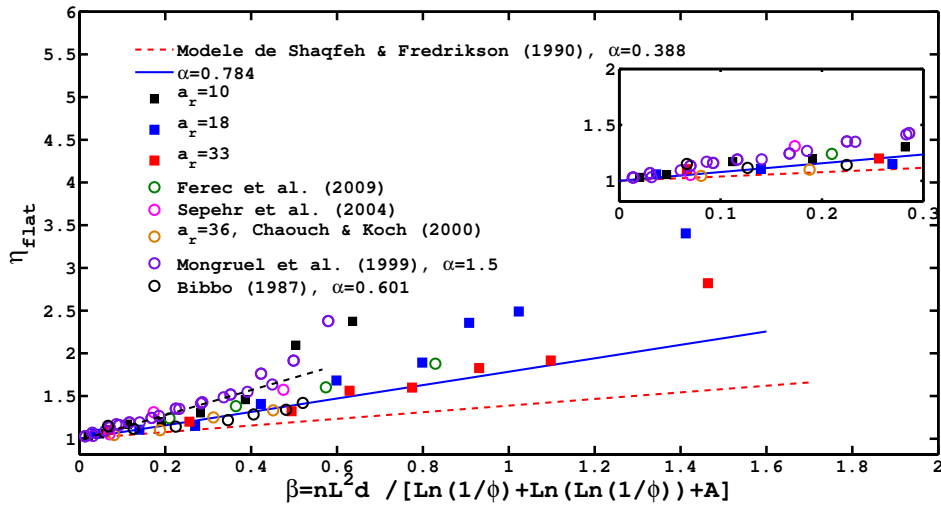


FIG. 3.22 – Comportement en loi d'échelle de la viscosité plateau η_{flat} en fonction du paramètre β . Comparaison avec les données expérimentales reportées par [Férec et al. 2009] et [Sepehr et al. 2004] pour $a_r = 20$, [Chaouche & Koch 2001] pour $a_r = 36$ et ceux de [Mongruel & Cloitre 1999] pour $a_r = [15, 30]$ et [Bibbo 1987] pour $a_r = [17, 33]$ qui sont comparables aux rapports d'aspect utilisés dans la présente étude, $a_r = [10, 18, 33]$.

décrite par le modèle de [Shaqfeh & Fredrickson 1990], (équation (3.24)) pour les valeurs de la viscosité plateau, η_{flat} , effectuées dans la présente étude, pour les suspensions de fibres de rapports d'aspect $a_r = [10, 18, 33]$, et une comparaison avec les données expérimentales, pour des rapports d'aspect $a_r = [15, 17, 20, 30, 33, 36]$ citées ci-dessus. Toutes nos données expérimentales collapent en une seule courbe linéaire jusqu'à $\beta = 0.3$, valeur correspondant au régime semi-dilué ; $nL^2d \sim 1$, ce qui montre la validité de la prédiction théorique. Nous trouvons une droite dont la pente, $\alpha = 0.784$, est la même que pour les données

de [Sepehr *et al.* 2004] et [Férec *et al.* 2009], et légèrement plus élevée que celle obtenue pour les données expérimentales de [Bibbo 1987], et [Chaouche & Koch 2001] $\alpha = 0.6$. En revanche, cette valeur est bien plus élevée que celle prédite par la théorie $\alpha = 0.388$.

Une comparaison est aussi rapportée avec les données expérimentales de [Mongruel & Cloitre 1999], leurs données collapsent aussi en une seule courbe linéaire, en revanche avec une pente $\alpha = 1.47$ qui est encore bien plus élevée que celle que nous trouvons.

Nous nous sommes interrogés alors sur l'origine de cette différence de mesure de viscosité, et avons tenté de trouver une explication possible, étant donné que les fibres utilisées dans l'étude de [Mongruel & Cloitre 1999] sont identiques à celles que nous avons utilisées (fibres de polyamide et de longueur comparable). Les mesures de viscosité peuvent être alors affectées par les paramètres d'expérimentation.

Données expérimentales	a_r	d (μm)	η_0 ($Pa.s$)	$\dot{\gamma}(R)_{exp}$ (s^{-1})	H/L -	F (N)	$N_A = \frac{F}{\eta_0 \dot{\gamma}(R)_{exp} d^2}$ -
Présente étude	18	28	0.344	200	12.0	10^{-8}	0.74
	10	30	1.0	200	12.0	10^{-8}	0.22
	33	15	0.864	200	12.0	10^{-8}	1.11
[Férec <i>et al.</i> 2009]	20	16	35.1	10.0	5.0	10^{-8}	0.11
[Sepehr <i>et al.</i> 2004]	20	14	24	1.0	5.0	10^{-8}	2.12
[Chaouche & Koch 2001]	36	14.5	2.1	100	4.0	$2 \cdot 10^{-7}$	4.50
[Mongruel & Cloitre 1999]	15	22	$8 \cdot 10^{-3}$	500	6.0	10^{-8}	20.60
[Mongruel & Cloitre 1999]	30	16	$8 \cdot 10^{-3}$	500	6.0	10^{-8}	39.0
[Bibbo 1987]	17	120	15.0	100	2.0	$2 \cdot 10^{-7}$	0.0093
[Bibbo 1987]	33	250	15.0	100	2.0	$2 \cdot 10^{-7}$	0.0021

TAB. 3.4 – Comparaison des paramètres expérimentaux pour la présente étude avec ceux de la littérature. Le rapport d'aspect des fibres, a_r , leur diamètre, d , la viscosité du fluide suspensé, η_0 , le taux de cisaillement expérimental, $\dot{\gamma}(R)_{exp}$, le paramètre de confinement H/L , les forces adhésives de Van der Waals, F , et le paramètre d'agrégation N_A .

La table (3.4) regroupe les différents paramètres d'expérimentation pour les différents travaux cités ci dessus. Les colonnes représentent : la référence des auteurs, le rapport d'aspect des fibres, a_r , utilisé, la viscosité du fluide suspensé η_0 , le diamètre des fibres d , le taux de cisaillement le plus élevé atteint pendant l'expérience $\dot{\gamma}(R)_{exp}$, le paramètre de confinement H/L , l'ordre de grandeur des forces adhésives, F , et en dernier lieu, le

paramètre d'agrégation des fibres, N_A . Rappelons que, le paramètre N_A est défini par le rapport des forces adhésives de Wan der Waals sur les forces hydrodynamiques (chapitre (2), section (2.5.3)). Plus N_A est grand, plus les forces adhésives, F , sont grandes et jouent un rôle important dans la détermination de la viscosité des suspensions de fibres.

D'une part, la table (3.4) montre que le nombre d'agrégation N_A , est plus grand pour les suspensions de [Mongruel & Cloitre 1999] que pour celles qui sont étudiées par les autres auteurs y compris les nôtres. Les forces de contact jouent donc un rôle important dans les suspensions de [Mongruel & Cloitre 1999] par rapport aux autres suspensions. Ce qui peut expliquer éventuellement l'augmentation de la valeur de la viscosité.

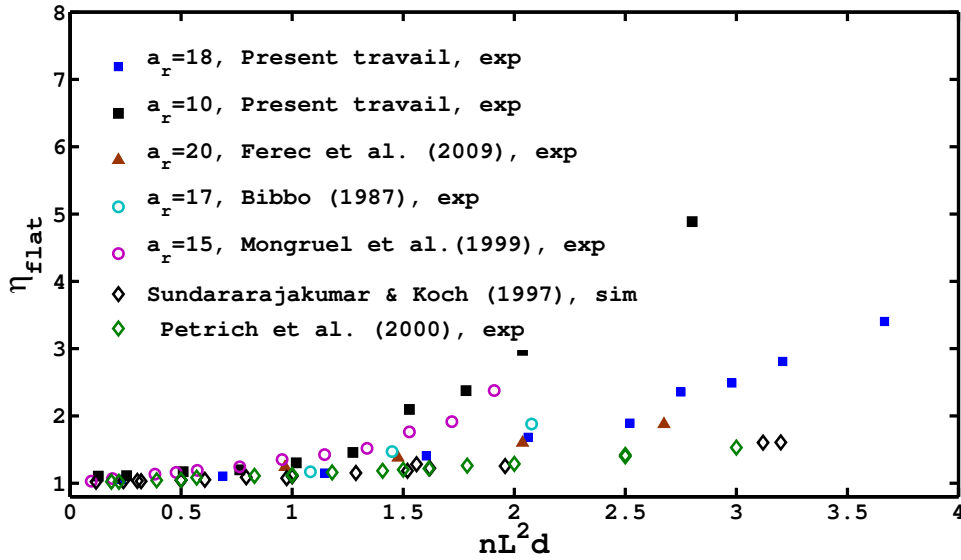
D'autre part, nous avons montré dans la section (3.7) que les mesures de viscosité peuvent être aussi altérées par l'effet du confinement (voir figure (3.16)). Nous pouvons nous demander alors pourquoi nos données expérimentales sont en bon accord avec celles de [Férec *et al.* 2009], [Sepehr *et al.* 2004], [Chaouche & Koch 2001] et [Bibbo 1987], alors que le paramètre du confinement est bien plus petit que celui que nous avons déterminé $H/L = 12$ pour lequel la viscosité est invariante.

Une piste explicative consiste à se souvenir de la corrélation que nous avons observée dans la section (3.7); à savoir que l'effet du confinement est d'autant plus prononcé que la suspension est rhéofluidifiante. En effet la rhéofluidification dans les suspensions de [Férec *et al.* 2009], [Sepehr *et al.* 2004], [Chaouche & Koch 2001] et [Bibbo 1987], est quasi absente, alors que les suspensions de [Mongruel & Cloitre 1999] présentent un comportement rhéofluidifiant important.

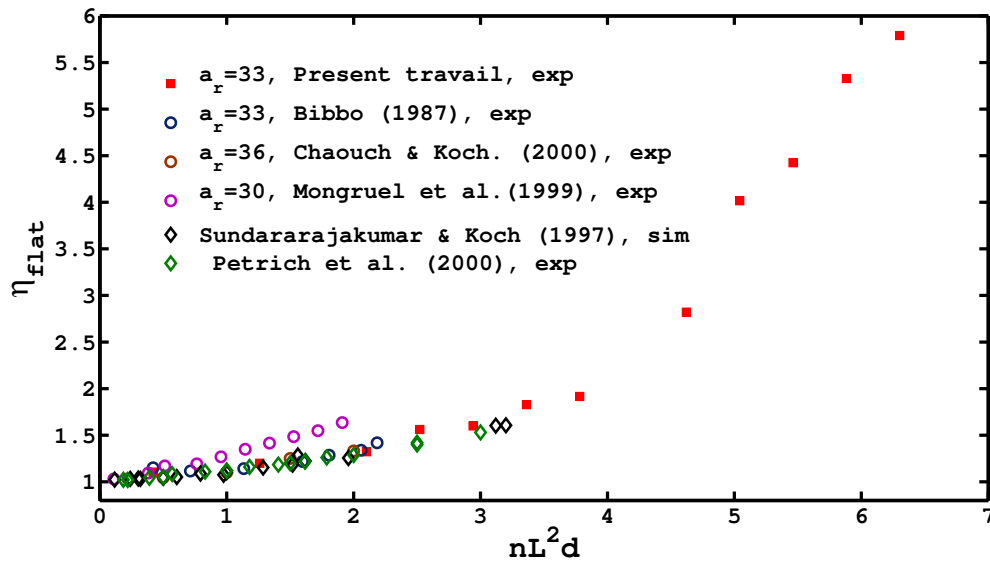
3.9.3 Comparaison en régime concentré

Nous allons à présent confronter nos résultats de mesures de viscosité, ainsi que celles des autres auteurs, avec les résultats de simulations numériques. La figure (3.23) montre une comparaison des divers résultats expérimentaux pour la viscosité plateau, η_{flat} , avec les résultats de [Petrich *et al.* 2000] obtenus à partir de la mesure de la distribution d'orientation des fibres, et les résultats des simulations numériques de [Sundararakumar & Koch 1997], (voir la section (2.7.2)), en fonction de nL^2d .

La Figure (3.23 (a)) illustre une comparaison des valeurs de η_{flat} pour des rapports



(a)



(b)

FIG. 3.23 – Viscosité plateau η_{flat} en fonction du paramètre nL^2d . (a) Comparaison avec les simulations de [Sundararajakumar & Koch 1997], et les données expérimentales de [Petrich et al. 2000] pour des suspensions de fibres de rapport d'aspect $a_r \leq 20$. (b) même comparaison pour des rapports d'aspect, $a_r \geq 30$. Une comparaison avec les données expérimentales par d'autres auteurs est illustrée en parallèle sur les deux figures.

d'aspect $a_r \leq 20$: $a_r = 10$, $a_r = 18$ pour notre étude, $a_r = 20$ pour [Férec *et al.* 2009], $a_r = 15$ pour [Mongruel & Cloitre 1999] et $a_r = 17$, pour [Bibbo 1987].

L'accord entre nos résultats expérimentaux et ceux reportés par les autres auteurs est assez bon jusqu'à des valeurs de $nL^2d \leq 2$.

Cependant, il existe peu de mesures de viscosité effectuées en régime vraiment concentré, la plupart des résultats sont obtenus pour $nL^2d \sim 3$. C'est pour cette raison que nous comparerons nos résultats expérimentaux avec des résultats de simulations numériques. Sur la figure (3.23 (b)), nous reportons la même comparaison mais pour des rapports d'aspect plus grands : $a_r = 33$ pour notre étude, $a_r = 36$ pour [Chaouche & Koch 2001], $a_r = 36$ pour [Bibbo 1987] et $a_r = 30$ pour [Mongruel & Cloitre 1999]. Toutes les données (expérimentales et simulations) collapsent en une seule courbe maîtresse jusqu'à $nL^2d \sim 3$, à l'exception des résultats rapportés par [Mongruel & Cloitre 1999] qui trouvent des valeurs plus élevées.

Nous avons aussi comparé nos résultats avec les simulations de

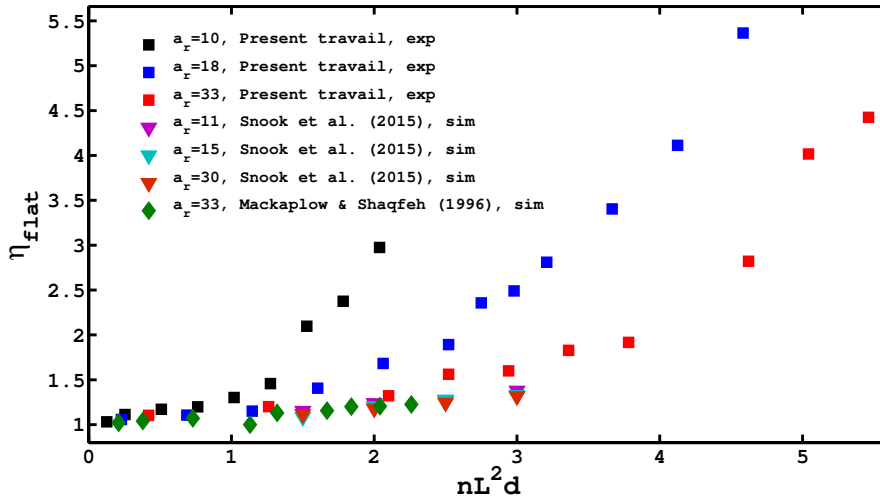


FIG. 3.24 – Comparaison de la viscosité plateau η_{flat} avec les simulations numériques de [Mackaplow & Shaqfeh 1996] et de [Snook *et al.* 2014]. L'accord est assez bon jusqu'à $nL^2d \sim 3$

[Mackaplow & Shaqfeh 1996], pour $a_r = 33$, et [Snook *et al.* 2014] pour $a_r = [11, 15, 30]$ sur la figure (3.24). L'accord est assez bon pour $a_r = 33$ jusqu'à $nL^2d \sim 3$. En revanche, pour des rapports d'aspects plus petits, l'accord avec les données expérimentales est limité

à jusqu'à $nL^2d \sim 1$.

D'autre part, les résultats de simulations numériques de [Snook *et al.* 2014] semblent sous-estimer les valeurs de viscosité par rapport à celles que nous avons obtenues, et ne font pas apparaître l'influence du rapport d'aspect, a_r . Ceci peut être expliqué par le fait que, pour les rapports d'aspect modérés et pour $nL^2d \sim 2$, l'hypothèse des interactions à deux corps (équation 2.56) du modèle [Mackaplow & Shaqfeh 1996], ainsi que le maintien du volume exclu par une force répulsive tel que proposé par [Snook *et al.* 2014] ne sont plus valables lorsque la concentration de fibres augmente.

Jusqu'à présent, nous avons testé plusieurs modèles et simulations numériques dont le

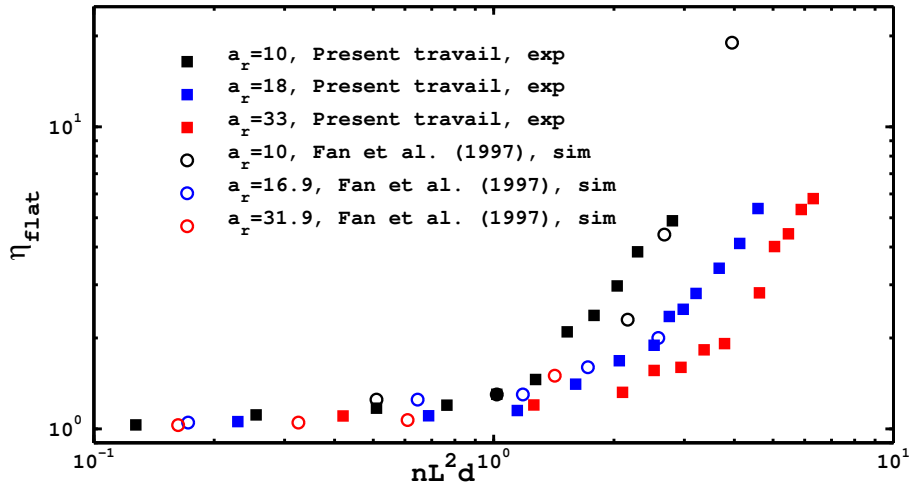


FIG. 3.25 – Viscosité plateau η_r en fonction du paramètre nL^2d . Comparaison entre les données expérimentales pour notre étude avec le modèle de [Fan *et al.* 1998]. L'accord est assez bon même pour des régimes de concentration élevés, pour des suspensions de fibres de petit rapports d'aspects, $a_r = 10$, $a_r = [17.9, 18]$, pour les grands rapport d'aspect l'accord est limité aux faibles concentrations.

domaine de validité est restreint aux régimes dilués et semi-dilués ($nL^2d \sim 1$).

Les travaux de [Mackaplow & Shaqfeh 1996], [Shaqfeh & Fredrickson 1990], ainsi que d'autres simulations valables en régime à concentration modérée, $1 \leq nL^2d \leq 2$, [Sundararajakumar & Koch 1997] et [Snook *et al.* 2014] donnent un bon accord en comparaison de nos mesures expérimentales de viscosité.

Cependant, les suspensions de fibres que nous avons étudiées se trouvent en majorité en régime concentré, il serait alors plus commode de comparer nos résultats avec des modèles

qui explorent aussi les régimes à grande concentration, pour lesquels $nL^2d \geq 2$. Pour cela, nous avons comparé la viscosité plateau, η_{flat} obtenue par les simulations directes de [Fan *et al.* 1998], où la viscosité est calculée à partir de l'équation (2.71), section (2.6.2)), pour des fibres de rapport d'aspect $a_r = 10$, $a_r = 16.9$ et $a_r = 31.9$, qui sont proches de ceux que nous avons étudiés.

La figure (3.25) montre que les simulations de [Fan *et al.* 1998] (symbole cercle) sont en bon accord avec nos données expérimentales (symboles carrés pleins), au moins pour les deux plus petits rapports d'aspect, quelque soit la concentration, et pour les faibles concentrations pour $a_r = 33$.

3.10 Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons présenté nos résultats sur les mesures de viscosité en écoulement torsionnel, à faible nombre de Reynolds Re , pour des suspensions de fibres non-browniennes, de rapport d'aspect $a_r = 10$, $a_r = 18$ et $a_r = 33$. Nous avons exploré les différents régimes de concentration (dilué, semi-dilué, et concentré) et déterminé la concentration de packing, qui permet de représenter la variation de la viscosité d'une suspension de fibres avec un rapport d'aspect donné par une loi d'échelle en ϕ .

Grâce à notre dispositif expérimental, qui consiste en une cuve cylindrique implémentée dans une géométrie plan-plan, nous avons aussi exploré l'effet du confinement sur les mesures de viscosité, et nous avons montré que, plus la concentration augmente, plus l'effet du confinement est important.

Une étude systématique de l'influence de l'entrefer nous a permis de déterminer la taille critique de la cellule de l'écoulement, H_{cr} , pour laquelle l'effet du confinement est absent : $H_{cr} = 12L$. Quelque soit le rapport d'aspect des fibres et la concentration, la viscosité plateau mesurée correspond alors à la viscosité des suspensions en absence d'effet de confinement.

Les résultats obtenus dans ces conditions de non confinement sont alors comparés aux données expérimentales. L'accord obtenu est satisfaisant, toutefois une comparaison plus fine des résultats semble indiquer qu'il est important de tenir compte des forces de contact (non-hydrodynamiques) dans les modèles, pour rendre compte de la mesure de viscosité des

suspensions concentrées. Ce point sera détaillé dans le chapitre 5.

Réponse transitoire de la viscosité des suspensions de fibres concentrées

4.1 Introduction

Dans le chapitre précédent, nous nous sommes intéressés à la dépendance de la viscosité en fonction de la contrainte, du rapport d'aspect et du taux de cisaillement. Nous avons en particulier montré que les suspensions de fibres concentrées sont rhéofluidifiantes.

Dans ce chapitre nous allons nous intéresser à la réponse transitoire de la viscosité qui se manifeste après inversion du sens de l'écoulement ; cette étude a été effectuée en utilisant le même dispositif expérimental et pour les mêmes suspensions étudiées que dans le chapitre 3.

Le chapitre est organisé comme suit : en premier lieu, nous introduirons le protocole expérimental pour les inversions du sens de l'écoulement, ensuite, nous aborderons les grandeurs pertinentes du transitoire et étudierons leurs comportements en fonction des différents paramètres, tels que la contrainte imposée, Σ_{12} , la concentration, ϕ , et le confinement, H/L .

Enfin, nous proposerons une interprétation de ces résultats, et nous comparerons nos résultats avec les travaux précédents.

4.2 Expérience d'inversion du sens de l'écoulement

Dans cette section, nous présenterons le protocole expérimental pour les expériences d'inversion du sens de l'écoulement, et présenterons également un exemple de comportement de la viscosité, pour des suspensions de fibres diluées et concentrées.

4.2.1 Protocole expérimental

Les mesures de viscosité sont effectuées en mode contrainte imposée. Selon le protocole expérimental suivant, nous avons appliqué des échelons de contrainte, Σ_{12} d'intensité croissante, soit dans

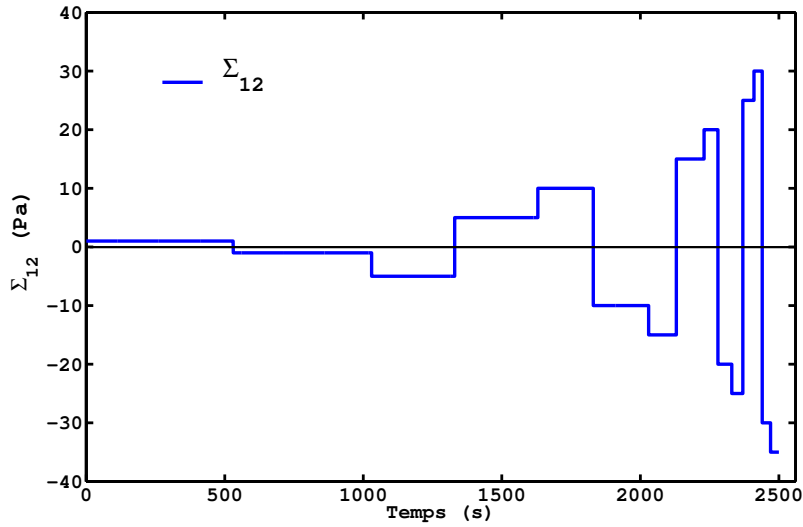


FIG. 4.1 – Série de paliers de contraintes appliquées pour une inversion de l'écoulement (dans un sens et dans l'autre). La période de chaque palier est assez longue pour atteindre l'état stationnaire, le transitoire est défini pour une même contrainte de signe opposé.

le sens des aiguilles d'une montre, soit dans le sens inverse, tel que illustré sur la figure 4.1.

Le temps de cisaillement, T_{shear} pour chacun des créneaux de contrainte, est assez long pour que les fibres aient accompli plus d'une révolution. Nous montrerons par la suite que la viscosité atteint une valeur stationnaire après un temps environ égal à $T_J/2$. Cette période, T_J , déjà introduite dans la section (2.3), équation (2.12), correspond à la période de rotation des fibres suivant les orbites de Jeffery.

Pour être certain que l'état stationnaire sera atteint, la durée des créneaux de cisaillement est choisie de telle sorte que la déformation accumulée soit égale à $\gamma(R) \sim 2 \times \gamma_J$, quelque soit la valeur de la contrainte de cisaillement Σ_{12}^i appliquée.

Ceci, nous conduit à fixer la durée des créneaux, T_{shear} , pour deux expériences consécutives d'inversion, Σ_{12}^i et Σ_{12}^{i+1} comme suit :

$$T_{shear}^{i+1} = T_{shear}^i \frac{\Sigma_{12}^i}{\Sigma_{12}^{i+1}} \quad (4.1)$$

Chaque expérience d'inversion consiste à appliquer une contrainte Σ_{12}^i dans un sens, puis à inverser le sens de cette contrainte.

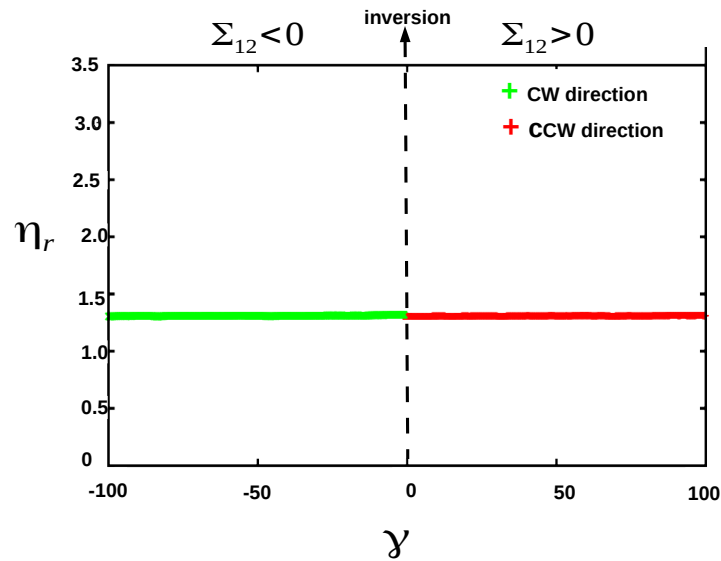


FIG. 4.2 – Exemple d'inversion du sens de cisaillement pour une suspension semi-diluée de concentration $\phi = 0.02$ et de rapport d'aspect $a_r = 18$. La viscosité est invariante par inversion du sens de l'écoulement.

4.2.2 Réponse transitoire d'une suspension newtonienne

Nous avons considéré une suspension semi-diluée (comportement newtonien) dont les fibres ont un rapport d'aspect $a_r = 18$ et de concentration $\phi = 0.02$. La suspension est soumise à une inversion du sens de l'écoulement, suivant le protocole décrit dans la section (4.2.1).

La figure 4.2 montre un exemple du comportement de la viscosité lors d'une inversion de cisaillement, les courbes (verte et rouge) représentent, respectivement, la viscosité avant et après inversion du sens de l'écoulement en fonction de la déformation, γ , cette déformation au moment de l'inversion est initialisée à zéro.

Quelque soit la contrainte appliquée, la viscosité reste invariante par inversion ; ceci est dû au fait qu'en régime semi-dilué, à faibles interactions entre fibres, l'équation de Jeffery (équation 2.10) est réversible. Les fibres continuent à se mouvoir suivant la période de Jeffery, avec des contacts relativement rares entre elles.

4.2.3 Réponse transitoire d'une suspension rhéofluidifiante

Lorsqu'une suspension concentrée est soumise à une inversion du sens de l'écoulement, la situation est différente étant donné que les interactions entre fibres sont prédominantes. Les orbites

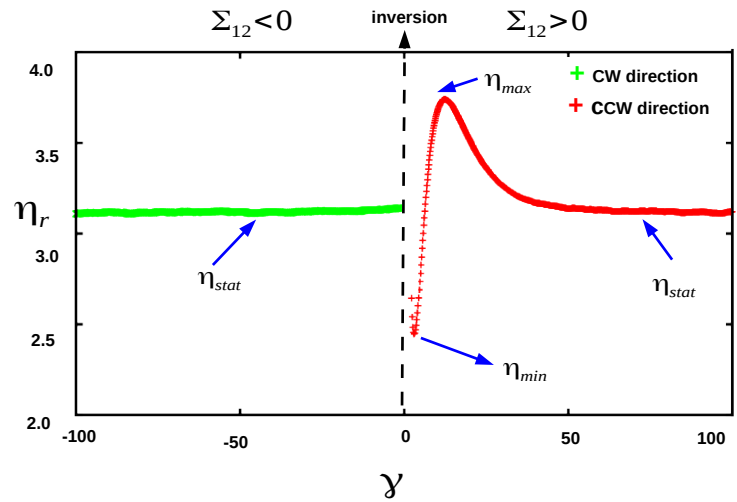


FIG. 4.3 – Exemple d'inversion du sens de cisaillement pour une suspension de fibres rhéofluidifiante de concentration, $\phi = 0.12$ et de rapport d'aspect, $a_r = 18$. Après inversion du sens de l'écoulement, la viscosité décroît brutalement ensuite croît jusqu'à une valeur maximale puis décroît à nouveau jusqu'à la valeur qu'elle avait avant l'inversion.

de révolution des fibres sont constamment perturbées par leur proches voisines.

La figure 4.3, montre un exemple de réponse transitoire de la viscosité pour une suspension de fibres de rapport d'aspect, $a_r = 18$ et de concentration, $\phi = 0.12$.

La courbe verte représente la valeur de la viscosité stationnaire avant inversion, et la courbe rouge après inversion. On voit clairement une variation de la viscosité après inversion : la viscosité décroît brutalement jusqu'à atteindre une valeur minimale, η_{min} , puis augmente à nouveau jusqu'à une valeur maximale η_{max} , et enfin décroît jusqu'à la valeur stationnaire qu'elle avait avant l'inversion. Cette réponse transitoire est la signature de l'établissement d'une microstructure induite par l'écoulement qui influe sur la valeur de viscosité ; c'est ce comportement que nous nous proposerons d'étudier par la suite.

4.3 Description du transitoire

Dans la suite de l'étude, nous avons réalisé des expériences d'inversion de cisaillement pour différentes contraintes imposées, en suivant le protocole expérimental décrit dans la section (4.2.1). A partir de l'observation des réponses transitoires, nous allons donc extraire les grandeurs caractéristiques afférentes.

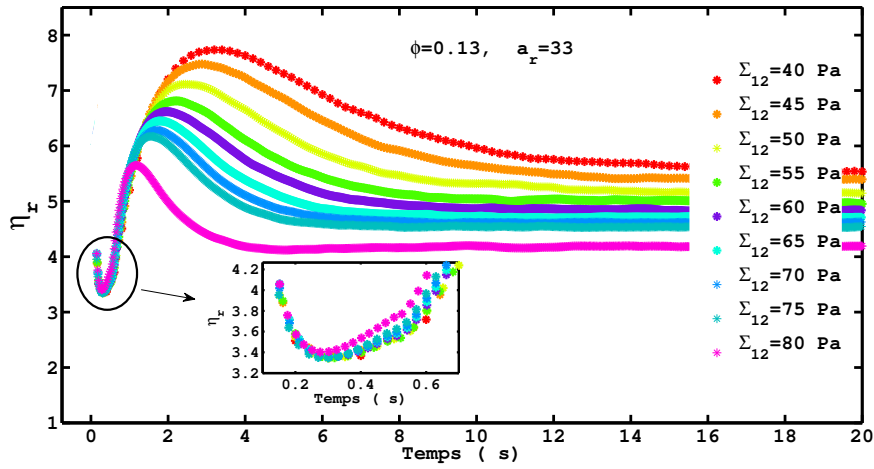


FIG. 4.4 – Réponse transitoire de la viscosité relative après inversion du sens de l'écoulement, pour une suspension de fibres ($a_r = 33$, $\phi = 0.13$). La viscosité est tracée en fonction du temps. Le minimum de viscosité, η_{min} et le temps nécessaire pour l'atteindre varient peu avec la contrainte imposée. Le retour à l'état stationnaire est d'autant plus long que la contrainte appliquée est petite.

Nous prendrons comme exemple une suspension de concentration $\phi = 0.13$ et de rapport d'aspect $a_r = 33$. La réponse de la viscosité relative au cours du temps après inversion du sens de l'écoulement est illustrée sur la figure 4.4 pour différentes valeurs de la contrainte.

Nous pouvons déduire les résultats suivants :

- (a) : Pour des temps assez grands, lorsque la viscosité est stationnaire, celle ci diminue avec la contrainte imposée ; ceci ne traduit rien d'autre que la rhéofluidification décrite au chapitre précédent.
- (b) : Quelque soit la contrainte imposée, le minimum de viscosité η_{min} , se manifeste à un temps à peu près identique. Ce résultat est différent de ce qui est observé dans le cas des suspensions de sphères pour lesquelles, il a été démontré que lors d'une expérience d'inversion du cisaillement, le minimum de viscosité, η_{min} , est atteint pour une déformation caractéristique, et non pour un temps caractéristique, quelque soit la valeur de la contrainte appliquée.

[Gadala-Maria & Acrivos 1980], [Blanc 2012], ont montré que cette déformation est liée à la relaxation des forces de contact entre les particules sphériques. Dans le cas des suspensions de fibres, l'existence d'un temps caractéristique (et non d'une déformation) pour l'apparition du minimum de viscosité laisse supposer qu'une élasticité intervient. Nous discuterons dans la suite de l'origine de cette élasticité.

- (c) : Le maximum de viscosité, η_{max} , est atteint d'autant plus rapidement que la contrainte appliquée est grande. De plus, η_{max} diminue lorsque la contrainte augmente.

Ce maximum a déjà été observé expérimentalement [Sepehr *et al.* 2004], [Férec *et al.* 2009]. Ce maximum, η_{max} , est attribué à la moyenne d'orientation des fibres aux environs de 45° par rapport à la direction de l'écoulement, lorsque celles-ci basculent lors de l'inversion afin de retrouver leur orientation initiale. Elles contribuent alors, de manière importante, à la viscosité [Laun 1984].

Nous constatons aussi que la largeur de l'overshoot est d'autant plus grande que la contrainte est petite. Ceci peut s'interpréter par une augmentation du temps nécessaire aux fibres pour basculer et atteindre leur nouvelle orientation stationnaire.

Nous verrons plus loin que lorsque la viscosité est tracée en fonction de la déformation accumulée depuis le moment où l'écoulement est inversé, les courbes collapsent à la rhéofluidification près. C'est ce quasi-collapse que montre la figure 4.5 (a) où la viscosité est tracée en fonction de la déformation, initialisée à zéro au moment de l'inversion.

Nous remarquons cependant que la déformation, pour laquelle la viscosité est maximum, a tendance à se décaler légèrement vers la droite quand la contrainte augmente. Ce décalage disparaît si, au lieu de tracer la viscosité en fonction de la déformation accumulée depuis l'inversion, on la trace en fonction de $|\gamma - \gamma_{min}|$, où γ_{min} est la déformation pour laquelle la viscosité est minimum. c.f figure 4.5 (b).

Nous avons vu précédemment que le minimum de viscosité apparaissait toujours approximativement au même moment, quelque soit la contrainte appliquée. Cela signifie donc que la déformation correspondante croît à peu près linéairement avec la contrainte ($\gamma_{min} \propto \Sigma_{12} t_{min}$).

En prenant alors γ_{min} comme origine des déformations pour étudier les transitoires de viscosité, on s'affranchit de ce décalage et on constate que, quelque soit la contrainte appliquée, le maximum de viscosité est localisé pour la même déformation, γ_{max} , indiquée par la flèche en pointillé. Cela confirme que les phénomènes d'orientation, et de basculement des fibres, dépendent bien de la déformation accumulée.

Par la suite, la déformation, γ_{min} , sera toujours choisie comme origine des déformations, sauf mention contraire. Enfin, si on normalise la viscosité par la viscosité stationnaire, obtenue pour les grandes déformations, on obtient un collapse presque parfait des courbes. Ceci est illustré sur la figure 4.5 (c) où, $\frac{\eta_r}{\eta_{stat}}$ est tracé en fonction $|\gamma - \gamma_{min}|$. Quelque soit la valeur de la contrainte appliquée, l'overshoot de viscosité a la même largeur et la même hauteur.

Pour cette suspension en particulier, $\frac{\eta_{max}}{\eta_{stat}} \sim 1.29$.

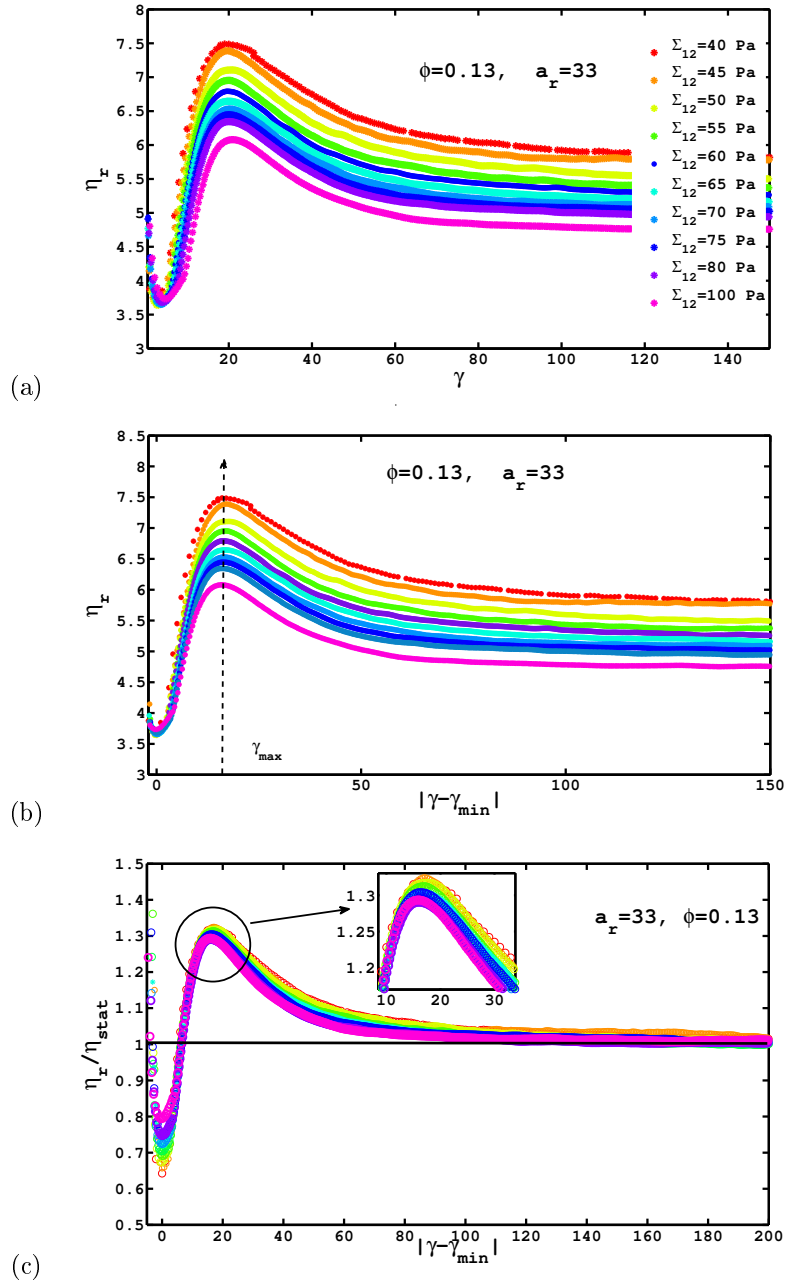


FIG. 4.5 – Réponse transitoire de la viscosité relative après inversion du sens de l'écoulement, pour une suspension de fibres ($a_r = 33, \phi = 0.13$). (a) La viscosité relative tracée en fonction de la déformation $|\gamma|$. (b) La viscosité relative tracée en fonction de la déformation $|\gamma - \gamma_{\min}|$. (c) La viscosité relative normalisée par la viscosité stationnaire pour chaque contrainte appliquée. Le maximum de viscosité η_{\max} est localisé pour une déformation accumulée identique quelque soit la contrainte appliquée.

4.4 Durée du transitoire

La déformation contrôle le basculement des fibres. De ce fait, le transitoire prend fin lorsque le basculement total est atteint. En d'autres termes, cette déformation est nécessaire aux fibres afin de retrouver leur orientation initiale.

Nous pouvons alors comparer cette déformation à la déformation stationnaire, accumulée après une période de Jeffery, T_J , qui est calculée à partir de la période de *Jeffery*, $\gamma_J = T_J \dot{\gamma}$, ce qui donne :

$$\gamma_J = T_J \dot{\gamma} = 2 \cdot \pi \times \left(\frac{1}{a_r} + a_r \right) \quad (4.2)$$

Pour les trois rapports d'aspect $a_r = 10$, $a_r = 18$ et $a_r = 33$, la déformation $\gamma_J(a_r)$ est égale à :

$$\gamma_J = \begin{cases} \gamma_J(a_r = 10) = 63 \\ \gamma_J(a_r = 18) = 113 \\ \gamma_J(a_r = 33) = 208 \end{cases} \quad (4.3)$$

La figure 4.6 montre un exemple de comportement de la viscosité relative, η_r , obtenue selon le protocole expérimental décrit plus haut, pour des suspensions de fibres de trois rapports d'aspect et deux concentrations différentes, correspondant aux régimes semi-dilué et concentré : figure 4.6 (a), ($a_r = 18, \phi = 0.12, \phi = 0.16$), figure 4.6 (b), ($a_r = 33, \phi = 0.06, \phi = 0.12$) et figure 4.6 (c), ($a_r = 10, \phi = 0.12, \phi = 0.18$).

Pour chaque échelon de contrainte, Σ_{12}^i , la viscosité relative η_r est tracée en fonction de la valeur absolue de la déformation accumulée, $|\gamma|$.

On remarque que la déformation nécessaire pour que la viscosité retrouve sa valeur stationnaire après inversion du cisaillement est de l'ordre de $\gamma_J/2$. Ceci est conforme à l'image que nous avons supposée pour expliquer le transitoire de viscosité. En effet, en écoulement de cisaillement simple stationnaire, les fibres sont en moyenne alignées sur une direction proche de celle de la vitesse de l'écoulement. Quand le sens est inversé, les fibres doivent effectuer une demie révolution pour retrouver leur orientation stationnaire.

Que l'on retrouve $\gamma_J/2$ comme ordre de grandeur de la déformation nécessaire pour que la viscosité retrouve sa valeur initiale est un résultat intéressant et assez surprenant dans le cas des concentrations élevées. En outre, il implique que les diverses interactions entre fibres (hydrodynamiques, contact, adhésion) ne modifient pas de façon sensible la période de révolution des fibres.

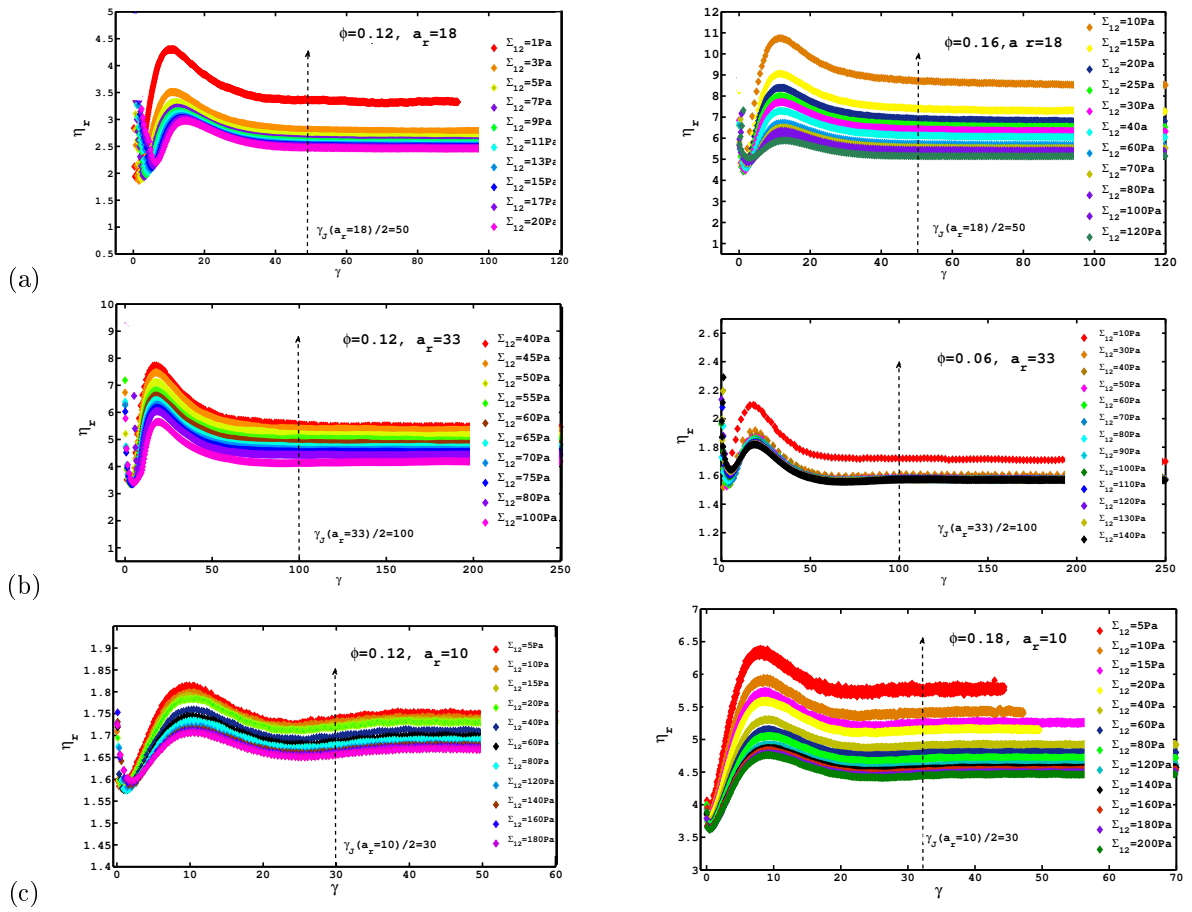


FIG. 4.6 – Comportement de la viscosité relative de suspensions de fibres concentrées après inversion du sens de l'écoulement. (a), $r = 18$ et $\phi = 0.12, \phi = 0.16$. (b), $a_r = 33, \phi = 0.06, \phi = 0.12$. (c), $a_r = 10, \phi = 0.12, \phi = 0.18$. Mesures effectuées pour $H = 12L$

4.5 Viscosité au minimum du transitoire η_{min}

La figure 4.7 illustre le comportement de la viscosité du minimum η^{min} en fonction de la contrainte, Σ_{12} , pour différentes concentrations et les 3 rapports d'aspect, $a_r = 10$, $a_r = 18$ et $a_r = 33$ (figure 4.7 (a), (b) et (c)). η^{min} augmente avec la concentration.

Nous discuterons à présent de manière succincte de l'origine de l'apparition du minimum de viscosité. Le minimum de viscosité apparaît à un temps qui dépend faiblement de la contrainte.

Cette observation suggère qu'il existe une élasticité, G , dans le système susceptible de faire apparaître un temps caractéristique, $t_c \sim \frac{\eta}{G}$. Cette élasticité pourrait provenir de la flexion d'une fibre lorsque celle-ci est soumise à une contrainte de cisaillement, qui induit une courbure de la fibre c.f (figure 4.8). Lorsque le système est à l'équilibre, le moment fléchissant de la fibre, T^{fl} , et le moment hydrodynamique des forces visqueuses, T^H sont égaux. Des ordres de grandeurs de T^{fl} et T^H peuvent être obtenus à l'aide des expressions suivantes :

$$\left\{ \begin{array}{l} T^{fl} \approx E_Y I_i \gamma_f \quad , \text{avec } I_i = \frac{\pi d^4}{32} \\ T^H \approx \xi_t v L / 2 \quad , \text{avec } v \approx \frac{du_f}{dt} \end{array} \right. \quad (4.4)$$

où, I_i , est le moment d'inertie par unité de longueur d'une fibre et $\gamma_f = \frac{\partial^2 u_f}{\partial z^2}$, la déformation de la fibre induite par flexion, ξ_t est le coefficient de friction transverse (équation 2.30), v , la vitesse de la fibre et L , la longueur de la fibre. A l'équilibre, $T^{fl} = T^H$. On peut alors estimer un ordre de grandeur du temps caractéristique t_{min} :

$$t_c = t_{min} \approx \frac{\eta_0}{16 \ln a_r \cdot E_Y} \cdot a_r^4 \sim 10^{-6} - 10^{-8} s \quad (4.5)$$

Nous constatons, d'une part, que l'ordre de grandeur du temps de relaxation associé à la flexion d'une seule fibre est beaucoup plus petit que le temps pour lequel le minimum de viscosité est obtenu ($t_{min} \sim 10^{-2} - 1s$), (c.f figure 4.4). D'autre part, une variation de t_{min} en a_r^4 n'a pas été observée. On peut alors construire un autre temps caractéristique en prenant pour composante élastique, l'élasticité associée au réseau de fibres, G .

Une valeur caractéristique de G peut être obtenue :

$$G \approx \frac{\eta_s}{t_{min}} \quad (4.6)$$

Notons que la viscosité qu'il faut introduire dans l'évaluation de G est la viscosité stationnaire de la suspension, $\eta_s = \eta_0 \cdot \eta_{stat}$, correspondant en particulier à la distribution d'orientation stationnaire

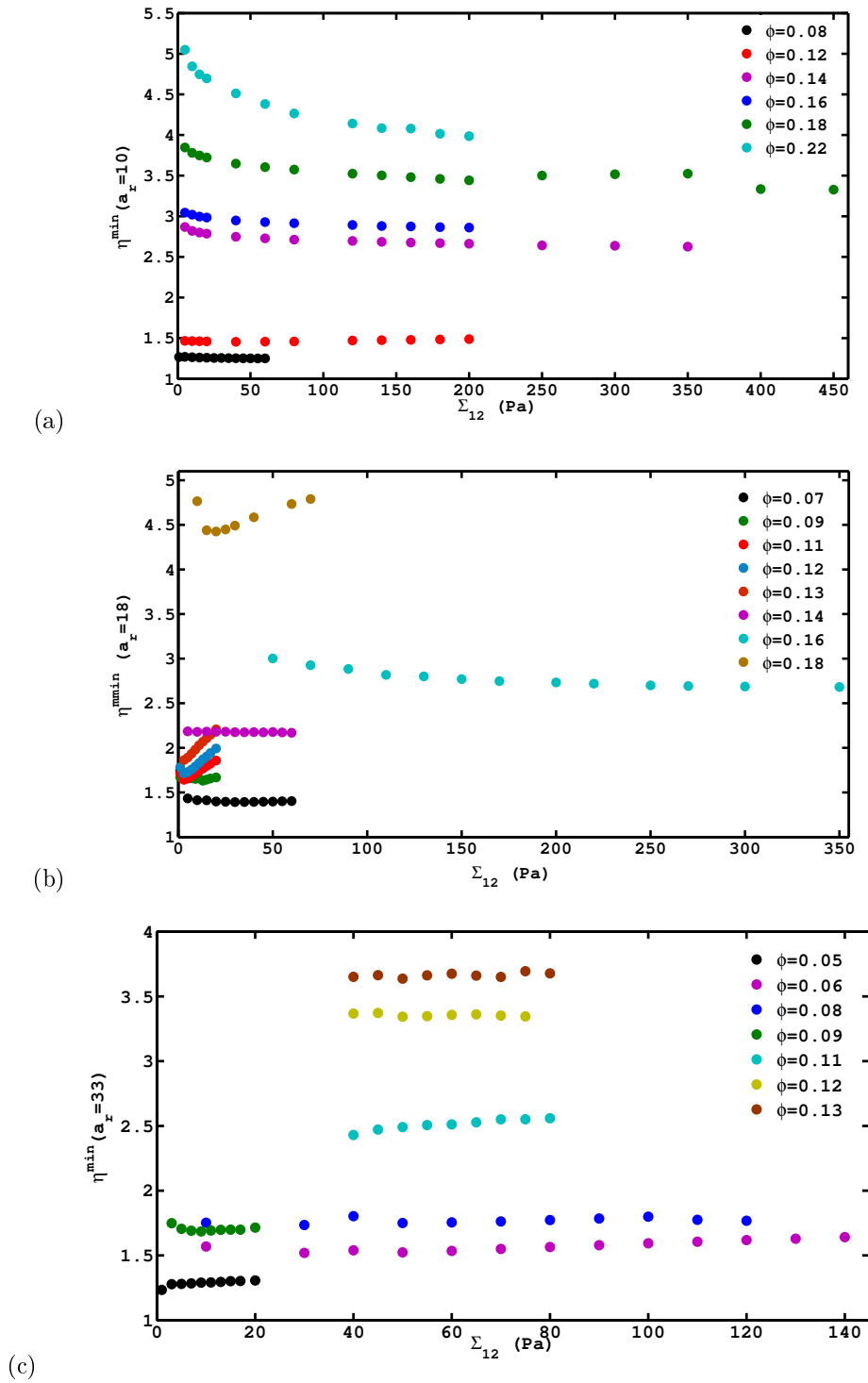


FIG. 4.7 – Influence de la contrainte imposée sur le minimum de viscosité η_{min} pour des suspensions de fibres à différentes concentrations et pour les 3 rapports d'aspect. (a) suspensions de fibres de rapport d'aspect $a_r = 10$. (b) suspensions de fibres de rapport d'aspect $a_r = 18$. (c) Suspensions de fibres de rapport d'aspect $a_r = 33$. Le minimum ne varie pas avec la contrainte. Les mesures sont effectuées pour un confinement $H = 12L$.

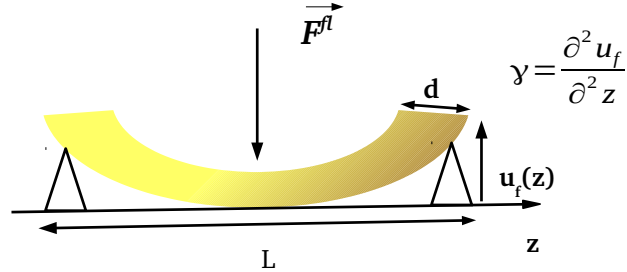


FIG. 4.8 – . Représentation schématique de la flexion d'une fibre.

des fibres.

En faisant cela, nous faisons l'hypothèse implicite que, juste après l'inversion du sens de l'écoulement, la microstructure de la suspension n'a pas évolué. Cette hypothèse est justifiée par le fait que $\gamma_{min} \ll \gamma_{stat} \sim \gamma_J/2$. Sur la figure 4.9, l'élasticité associée au réseau de fibres, $G \approx \frac{\eta_s}{t_{min}}$ est tracée en fonction de la contrainte appliquée pour différentes concentrations et les trois rapports d'aspect. Quelque soit la contrainte, $\frac{\eta_s}{t_{min}}$ est constant, sauf pour le plus petit rapport d'aspect, $a_r = 10$, et les plus grandes concentrations, pour lesquelles $\frac{\eta_s}{t_{min}}$ croît linéairement avec la contrainte et atteint un plateau à partir d'une certaine contrainte. De plus, $\frac{\eta_s}{t_{min}}$ croît avec la concentration, l'accroissement est d'autant plus important que le rapport d'aspect est petit. Ceci est illustré sur la figure 4.10 où nous reportons les valeurs plateau de $\frac{\eta_s}{t_{min}}$ pour les différentes suspensions présentées sur la figure 4.9 en fonction du paramètre de concentration nL^2d .

4.6 Viscosité au maximum du transitoire η_{max}

Nous allons à présent étudier la variation de η_{max} pour des suspensions de fibres pour les différentes concentrations et les 3 rapports d'aspect. Comme précédemment, les mesures sont effectuées pour un entrefer $H = 12L$, qui correspond à l'entrefer critique au-dessus duquel la viscosité ne dépend plus du confinement.

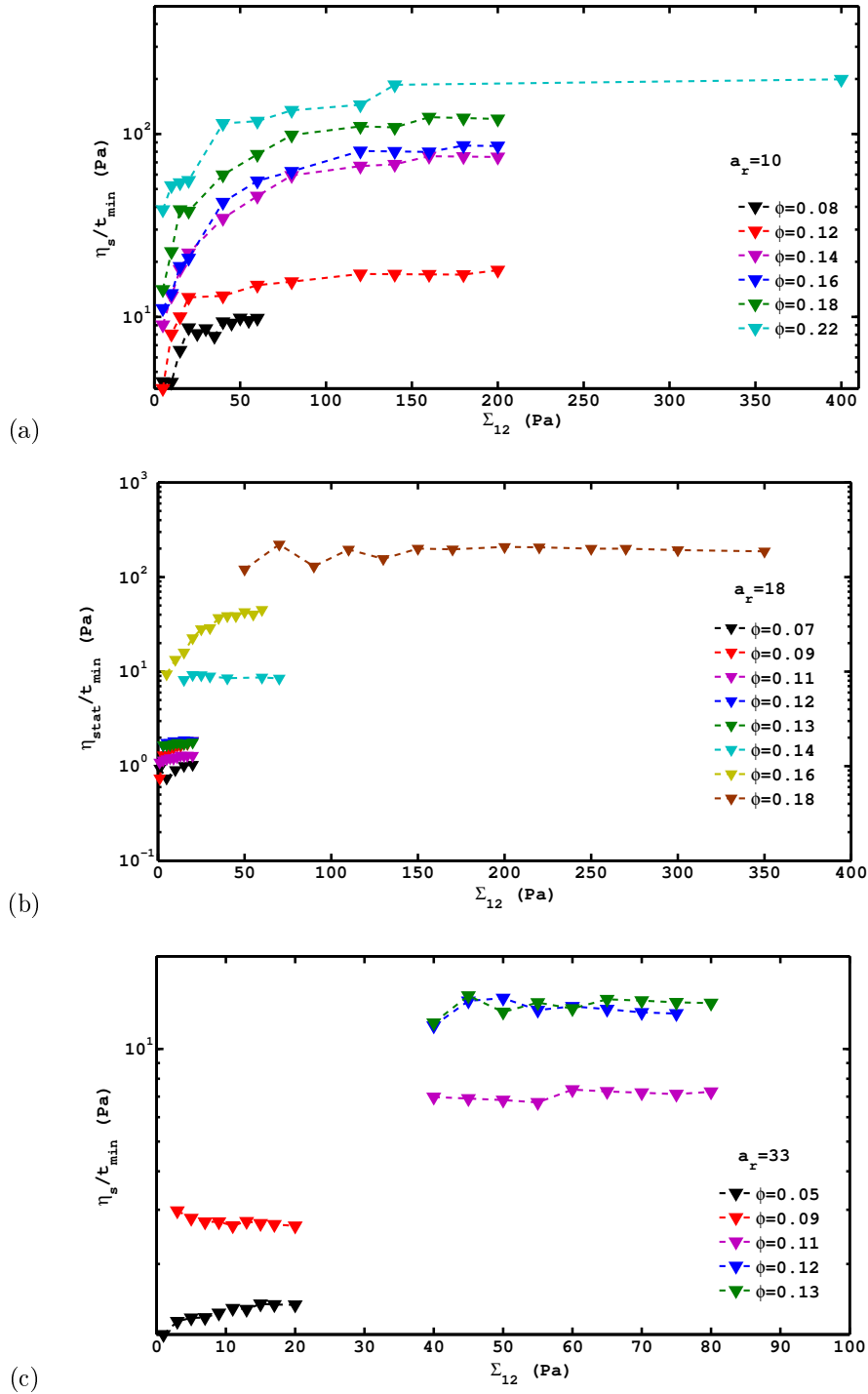


FIG. 4.9 – . Comportement de l'élasticité d'un réseau de fibres, $G \approx \frac{\eta_{stat}}{t_{min}}$, en fonction de la contrainte et pour différentes concentrations. (a) Suspensions de fibres de rapport d'aspect $a_r = 10$. (b) Suspensions de fibres de rapport d'aspect $a_r = 18$. (c) Suspensions de fibres de rapport d'aspect $a_r = 33$. Lorsque la contrainte augmente, l'élasticité, G , croît linéairement avec la contrainte et atteint un plateau à partir d'une certaine contrainte. Les mesures sont effectuées pour un confinement $H = 12L$.

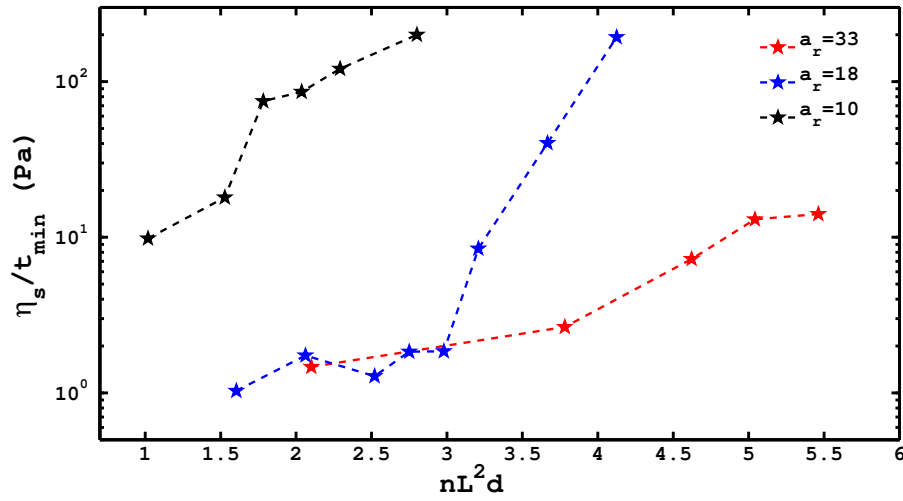


FIG. 4.10 – Comportement de l'élasticité d'un réseau de fibres, $G \approx \frac{\eta_{sta}}{t_{min}}$, en fonction du paramètre de concentration $nL^2 d$. Les mesures sont effectuées pour un confinement $H = 12L$.

4.6.1 Influence de la contrainte

Les figures 4.11 et 4.12, illustrent le comportement du maximum de viscosité η^{max} en fonction de la contrainte appliquée, Σ_{12} et du taux de cisaillement, $\dot{\gamma}$ respectivement pour les suspensions de fibres de rapport d'aspect, $a_r = 10$, $a_r = 18$ et $a_r = 33$ (figures 4.11 et 4.12 (a), (b), (c), (respectivement)).

Le maximum de viscosité possède un comportement similaire à celui de la viscosité stationnaire η_{stat} , c.f (figure 3.9) : η_{max} augmente avec la concentration et le rapport d'aspect et décroît avec la contrainte. La rhéofluidification au maximum est d'autant plus importante que la concentration et le rapport d'aspect sont grands.

Il est alors intéressant d'observer le comportement de l'excès de viscosité, $r_{max} = \frac{\eta_{max}}{\eta_{stat}}$, en fonction de la contrainte appliquée, Σ_{12} , ce que nous reportons sur la figure 4.13. Quelque soit le rapport d'aspect et la concentration, r_{max} décroît légèrement avec la contrainte appliquée, ce qui signifie que la viscosité au maximum présente un comportement rhéofluidifiant légèrement plus prononcé que celui de la viscosité stationnaire, η_{stat} .

4.6.2 Influence de la concentration

L'étude que nous avons menée précédemment, nous a permis d'extraire les grandeurs caractéristiques du transitoire, qui sont l'excès de viscosité, r_{max} , ainsi que la déformation γ_{max} au maximum

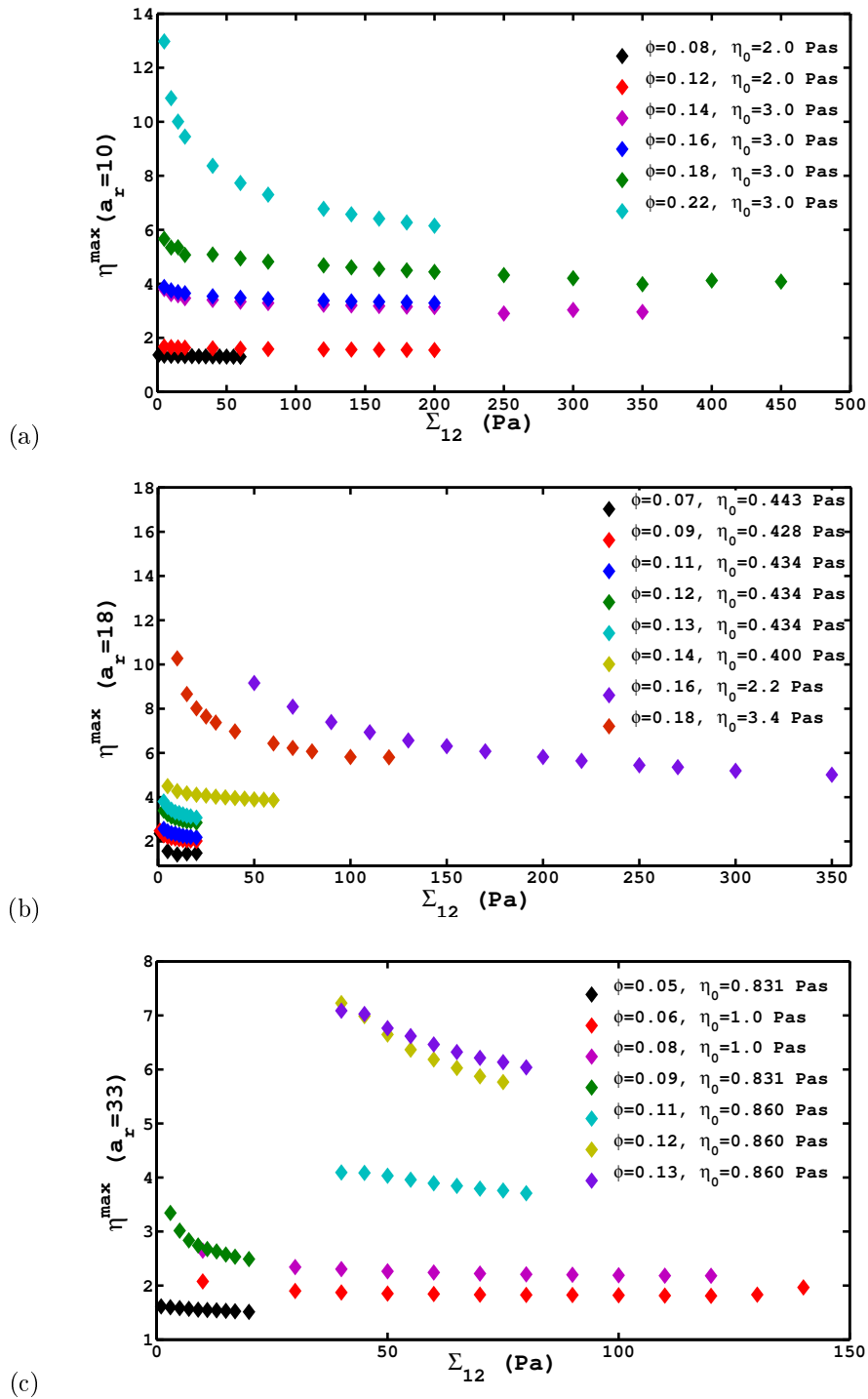


FIG. 4.11 – Influence de la contrainte imposée sur le maximum de viscosité. (a) suspensions de fibres de rapport d'aspect $a_r = 10$. (b) Suspensions de fibres de rapport d'aspect $a_r = 18$. (c) Suspensions de fibres de rapport d'aspect $a_r = 33$. Le maximum est rhéofluidifiant. Les mesures sont effectuées pour un confinement $H = 12L$.

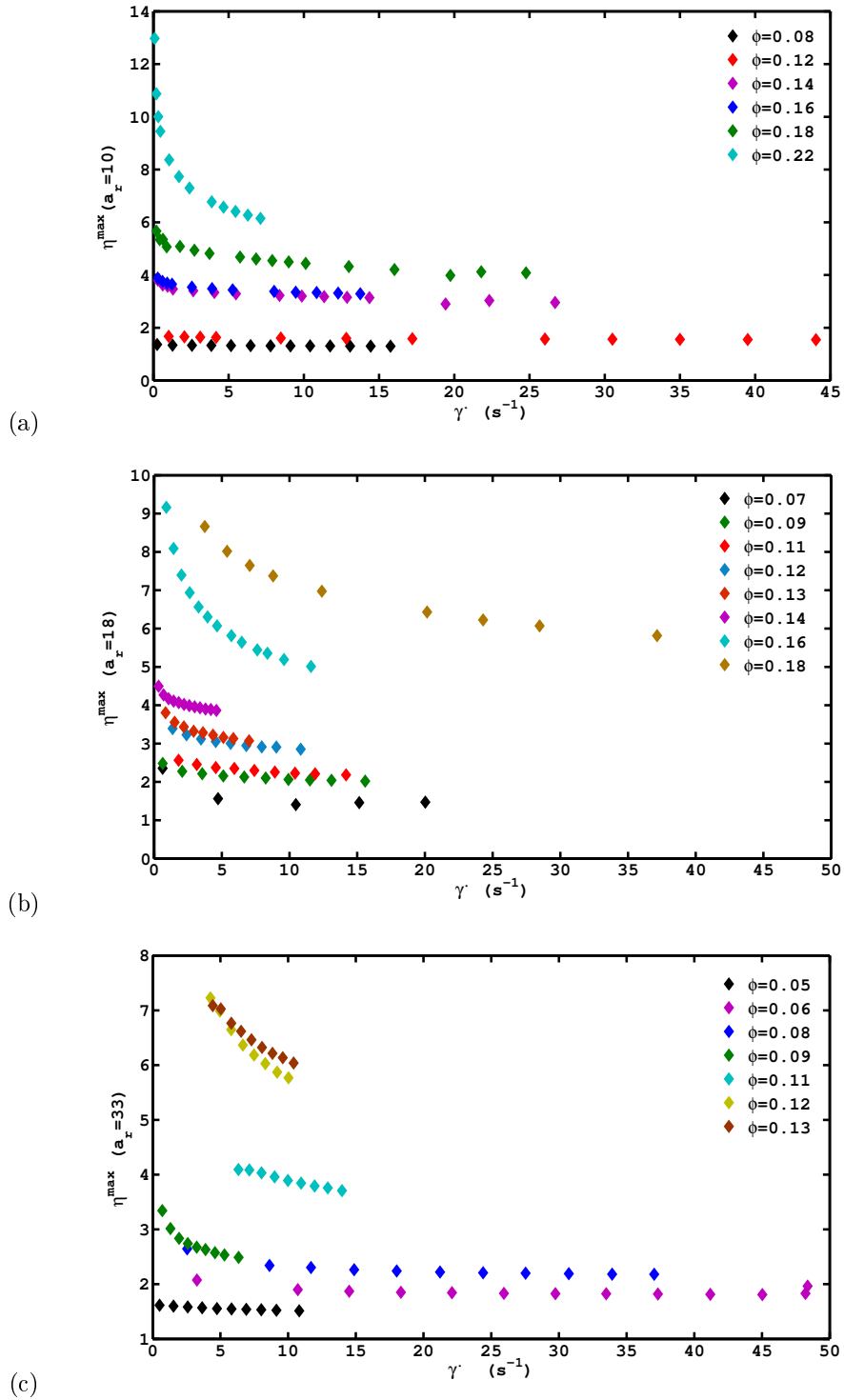


FIG. 4.12 – Influence de la contrainte imposée sur η_{max} tracée en fonction du taux de cisaillement et pour différentes concentrations. (a) suspensions de fibres de rapport d'aspect $a_r = 10$. (b) Suspensions de fibres de rapport d'aspect $a_r = 18$. (c) Suspensions de fibres de rapport d'aspect $a_r = 33$. Les mesures sont effectuées pour un confinement $H = 12L$.

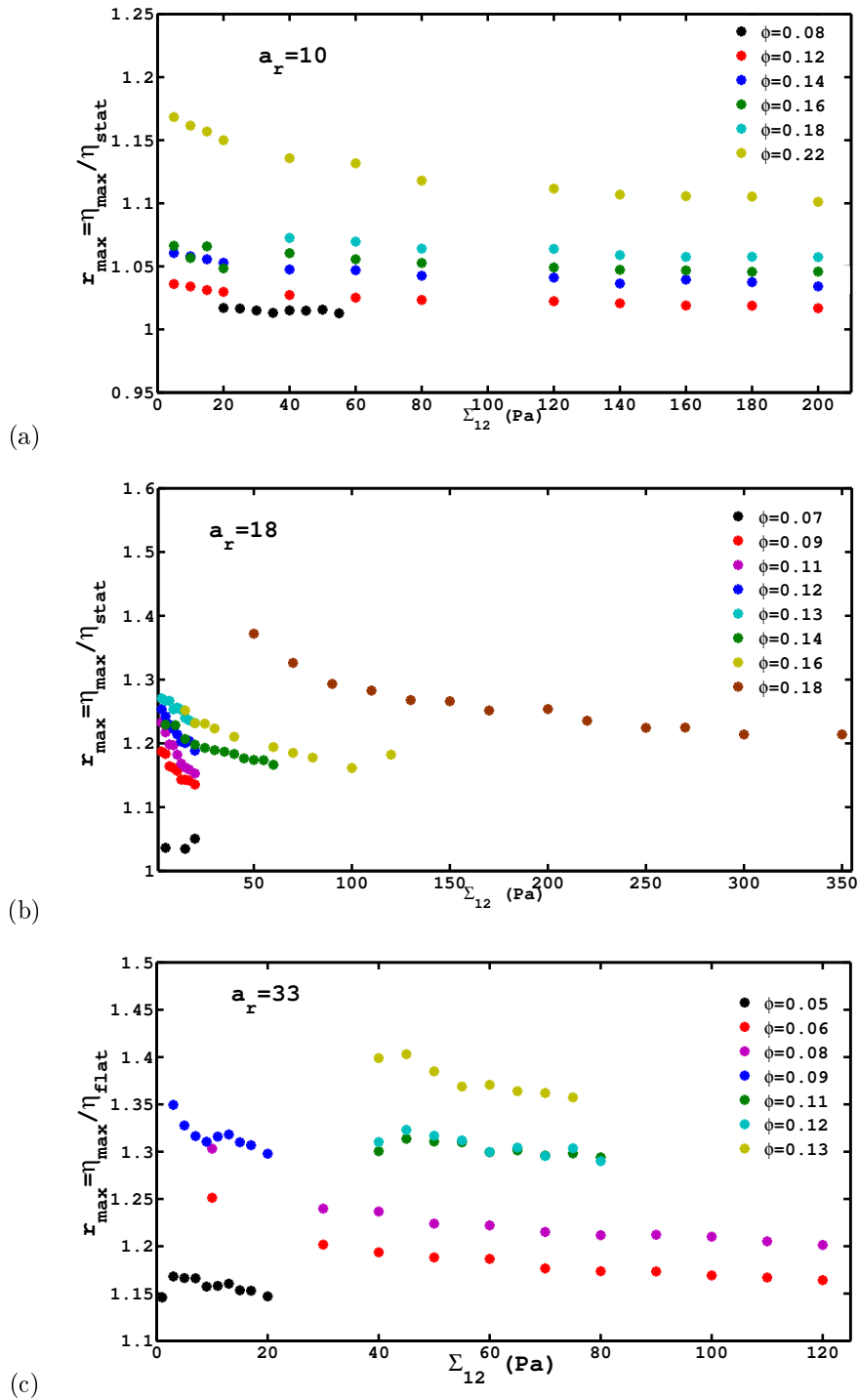


FIG. 4.13 – Influence de la contrainte imposée sur le rapport $r_{max} = \frac{\eta_{max}}{\eta_{stat}}$. (a) suspensions de fibres de rapport d'aspect $a_r = 10$. (b) Suspensions de fibres de rapport d'aspect $a_r = 18$. (c) Suspensions de fibres de rapport d'aspect $a_r = 33$.

de viscosité.

Pour déterminer l'influence de la concentration sur η_{max} , nous avons décidé d'étudier le comportement de sa valeur plateau (i.e. sa valeur pour les grandes contraintes).

Rappelons en effet que η_{max} comme η_{stat} présente un comportement rhéofluidifiant. Or, il a été impossible de réaliser des expériences d'inversion du sens de l'écoulement pour des taux de cisaillement élevés, à cause des effets d'inertie du rhéomètre et, dans certains cas, le plateau newtonien n'a pas été tout à fait atteint pour η_{max} , c.f. (figure 4.11).

Nous avons vu précédemment (section 4.6) que le rapport $r_{max} = \frac{\eta_{max}}{\eta_{stat}}$ dépendait faiblement de la contrainte appliquée. Ainsi, pour évaluer la viscosité $\eta_{max}(\Sigma_{12} \rightarrow \infty)^i$, nous avons fait l'approximation :

$$\eta_{max}(\Sigma_{12} \rightarrow \infty) \simeq r_{max} \cdot \eta_{flat} \quad (4.7)$$

où η_{flat} est la viscosité relative de la suspension au plateau newtonien. La variation de $\eta_{max}(\Sigma_{12} \rightarrow \infty)$, désormais notée η_{max} , en fonction de ϕ est représentée sur la figure (4.14) pour les trois rapports d'aspect étudiés.

Nous allons maintenant tester le modèle de [Phan-Thien 1995] que nous avons déjà introduit au

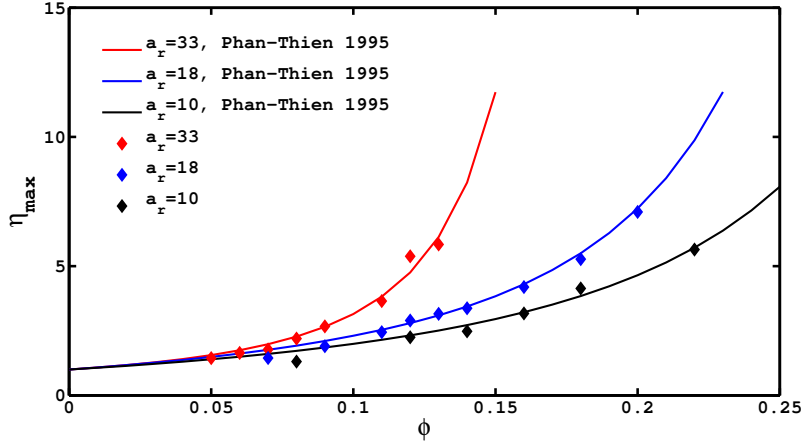


FIG. 4.14 – Comportement du maximum de viscosité η_{max} en fonction de la concentration, et comparaison avec le modèle de [Phan-Thien 1995] pour lequel les paramètres k_{max} et ϕ_{max}^* sont des paramètres libres.

chapitre (3) pour décrire la variation du maximum de viscosité, η_{max} avec la fraction volumique.

i. Notons que les mesures expérimentales sont toujours réalisées pour un faible nombre de Reynolds Re

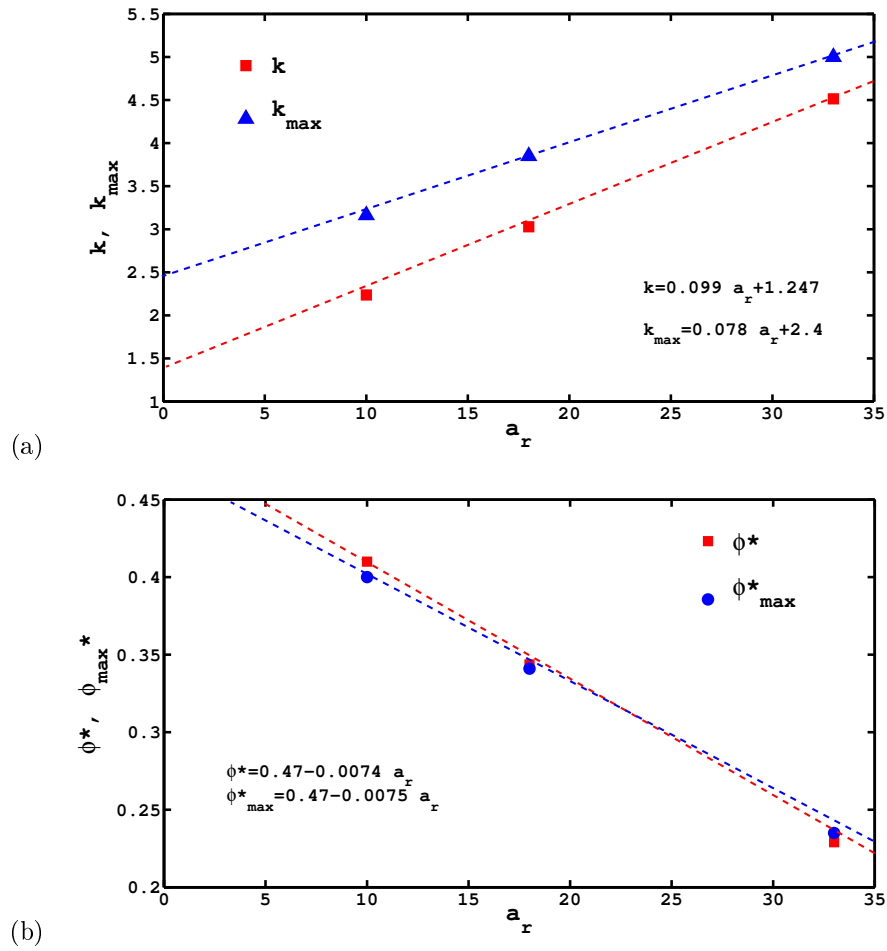


FIG. 4.15 – Paramètres ajustables du modèle de [Phan-Thien 1995], pour décrire le comportement du maximum de viscosité η_{max} . (a) paramètre k_{max} . (b) la concentration de packing ϕ^*_{max} . Une comparaison avec les paramètres k et ϕ^* obtenus pour le comportement de la viscosité plateau, η_{flat} , est aussi représentée

Rappelons alors l'expression de la viscosité qui est prédite par ce modèle :

$$\eta_{max} = 1 + k_{max} \cdot \phi \cdot \left(2 - \frac{\phi}{\phi_{max}^*}\right) \cdot \left(1 - \frac{\phi}{\phi_{max}^*}\right)^{-2} \quad (4.8)$$

où k_{max} est le paramètre qui prend en compte la moyenne d'orientation des fibres au maximum du transitoire et où ϕ_{max}^* représente la concentration de packing. L'ajustement de nos données expérimentales par le modèle de [Phan-Thien 1995] est représenté par les courbes en traits pleins sur la figure 4.15. On voit que le modèle de [Phan-Thien 1995] capture correctement le comportement expérimental de η_{max} .

Les figures 4.15 (a) et (b), reportent les valeurs des paramètres ajustables du modèle, k_{max} , et ϕ_{max}^* , en fonction du rapport d'aspect. k_{max} augmente (linéairement) avec le rapport d'aspect tandis que ϕ_{max}^* décroît (lui aussi linéairement). Les valeurs de ϕ_{max}^* sont très proches de celles que nous avons obtenues pour ϕ^* (viscosité stationnaire au plateau newtonien).

Notons que l'augmentation linéaire de k_{max} correspond à une variation linéaire de la viscosité de la suspension avec le rapport d'aspect, ce qui est en accord avec le modèle de [Leal & Hinch 1971] et avec les expériences de [Stover *et al.* 1992], tous deux développés dans les régimes dilué ou semi-dilué.

4.6.3 Approche macroscopique pour la détermination de $\langle p_1^2 p_2^2 \rangle_{max}$

Nous allons tenter de déterminer la composante $\langle p_1^2 p_2^2 \rangle_{max}$ du tenseur d'orientation d'ordre 4 au maximum de viscosité. Nous considérons alors le modèle basé sur l'approche de [Djalili-Moghaddam & Toll 2005] et [Férec *et al.* 2009] qui incluent les interactions à courte portée entre fibres. Dans le cadre de ce modèle, la viscosité plateau, η_{flat} s'écrit :

$$\eta_{flat} = 1 + 2 \cdot \phi + \left(\frac{2}{3} \frac{a_r^2}{\ln 2a_r} f(\epsilon) \phi + \frac{8}{3\pi^2} \kappa \phi^2 a_r^2 \right) \langle p_1^2 p_2^2 \rangle_{flat} \quad (4.9)$$

où, le facteur $f(\epsilon) = \frac{1 + 0.64\epsilon}{1 - 1.5\epsilon} + 1.659\epsilon^2$ est un terme de correction qui prend en compte le fait que le rapport d'aspect de la fibre, a_r est fini (équation 2.54) et $\epsilon = [\ln(2a_r)]^{-1}$. κ est le paramètre d'interaction (paramètre ajustable du modèle) et $\langle p_1^2 p_2^2 \rangle_{flat}$ est une composante du tenseur d'orientation d'ordre 4, pour des fibres dans leur état d'orientation stationnaire.

Pour les valeurs de $\langle p_1^2 p_2^2 \rangle_{flat}$, les auteurs ont soit utilisé les approximations de fermetures, soit trouvé la fonction de distribution d'orientation par expansion en harmoniques sphériques. Cependant, ces deux techniques ne tiennent pas compte du fait que le rapport d'aspect des fibres est fini et ne permettent pas de trouver une loi linéaire entre la viscosité de la suspension et le rapport d'aspect. De ce fait, nous avons décidé d'utiliser la fonction de distribution d'orientation établie

par [Leal & Hinch 1971] pour une diffusion rotationnelle très faible (dans notre cas cette diffusion est induite par les contacts mécaniques entre fibres). En résolvant l'équation de Fooker-Plank et en intégrant la fonction de distribution sur toutes les orientations, [Leal & Hinch 1971] trouvent le résultat suivant pour $\langle p_1^2 p_2^2 \rangle_{flat}$:

$$\langle p_1^2 p_2^2 \rangle_{flat} \sim \frac{a}{r_e} = \frac{c\sqrt{\ln a_r}}{a_r} \quad (4.10)$$

où, $c = 0.254$ et r_e est le rapport d'aspect équivalent défini pour les fibres cylindriques : $r_e \approx 1.24a_r(\ln a_r)^{-0.5}$. En combinant les équations (4.9 et 4.10), l'expression de la viscosité plateau prend la forme suivante :

$$\eta_{flat} = 1 + 2\phi + \left(\frac{2}{3 \ln 2a_r} \cdot f(\epsilon)\phi + \kappa \frac{8}{3\pi^2} \cdot \phi^2 \right) \cdot c \cdot a_r \sqrt{\ln a_r} \quad (4.11)$$

L'équation (4.11) comprend alors un seul paramètre ajustable, κ . A partir de nos données expérimentales sur les mesures de la viscosité plateau (voir figure 3.17), nous déterminons le paramètre κ pour les trois rapports d'aspect $a_r = [10, 18, 33]$ et nous trouvons qu'il prend les valeurs suivantes : $\kappa = [45, 30, 20]$ (respectivement). L'ajustement entre nos données expérimentales sur η_{flat} et le modèle (équation 4.11) est représenté sur la figure 4.16 (a). En utilisant l'équation (4.11) pour modéliser l'évolution de η_{max} avec la fraction volumique et en conservant pour κ les valeurs déterminées à partir du fit de $\eta_{flat}(\phi)$, nous sommes en mesure d'évaluer la composante du tenseur d'orientation d'ordre 4 quand la viscosité passe par son maximum : $\langle p_1^2 p_2^2 \rangle_{max}$:

$$\langle p_1^2 p_2^2 \rangle_{max} = \frac{\eta_{max} - 1 - 2\phi}{\left(\frac{2}{3} \frac{a_r^2}{\ln 2a_r} f(\epsilon)\phi + \frac{8}{3\pi^2} \kappa \phi^2 a_r^2 \right)} \quad (4.12)$$

La figure 4.16 (b) montre une comparaison des résultats expérimentaux obtenus pour η_{max} et les prédictions du modèle de [Férec *et al.* 2009]. Les valeurs de la composante du tenseur d'ordre 4, $\langle p_1^2 p_2^2 \rangle_{flat}$ et $\langle p_1^2 p_2^2 \rangle_{max}$ et leur dépendance avec le rapport d'aspect équivalent, r_e , sont représentées sur la figure 4.16 (c). Alors que $\langle p_1^2 p_2^2 \rangle_{flat} = \frac{cst_1}{a_r}$, $\langle p_1^2 p_2^2 \rangle_{max} = \frac{cst_1}{a_r} + cst_2$. Il faut cependant remarquer que ce résultat ne doit être perçu que comme un résultat semi qualitatif pour plusieurs raisons : La première est que nous n'avons pu étudier que 3 rapports d'aspect, ce qui est peu pour déterminer une loi de variation (même si elle est linéaire!), la deuxième, est qu'il faut bien constater que le fit de nos résultats expérimentaux de $\eta_{max}(\phi)$ et $\eta_{flat}(\phi)$ par le modèle représenté par l'équation (4.9) n'est pas parfait, en particulier en ce qui concerne le plus grand rapport d'aspect, $a_r = 33$, pour la troisième, nous nous sommes servis de l'expression de la viscosité obtenue pour un état stationnaire de la suspension (équation (4.9)), tandis que nous analysons la

viscosité η_{max} , correspondant à l'état transitoire. Cette approche est appelée "quasi-stationnaire", et ne serait valable que si le temps caractéristique du régime transitoire était bien supérieur au temps caractéristique de l'écoulement, $1/\dot{\gamma}s$.

Nos résultats expérimentaux montrent que, pour un rapport d'aspect donné, $\frac{\eta_{max} - 1}{\eta_{flat} - 1} = A_{max}(a_r)$ est une constante quelque soit la fraction volumique (voir figure 4.17 (a)). La figure 4.17 (b) montre que A_{max} croît (linéairement) avec le rapport d'aspect, a_r .

Ainsi, pour que l'observation selon laquelle $\eta_{max} - 1$ est proportionnelle à $\eta_{flat} - 1$ soit compatible avec l'équation (4.9) et l'équation (4.12), il est nécessaire que les termes 2ϕ dans l'équation (4.9) soient négligeables devant les autres. En analysant la variation de η_{flat} et η_{max} en fonction de ϕ (figures 4.16 (a) et (b)), pour les trois rapports d'aspect, on s'aperçoit que c'est bien le cas, à l'exception de la plus petite concentration pour $a_r = 10$ et $a_r = 18$. Remarquons cependant que les mesures de transitoire de viscosité n'ont pu être effectuées que pour des concentrations supérieures à 0.05 pour $a_r = 33$, à 0.07 pour $a_r = 18$ et 0.08 pour $a_r = 10$, ce qui permet de comprendre que l'incompatibilité entre les équations (4.9 et 4.12) d'une part et les observations expérimentales ($(\eta_{max} - 1) \propto (\eta_{flat} - 1)$) d'autre part est limitée.

4.7 Déformation au maximum du transitoire γ_{max}

Intéressons nous à présent à la déformation au maximum de viscosité, γ_{max} , qui rappelons le, correspond à la déformation caractéristique nécessaire pour que les fibres atteignent l'orientation qui correspond au maximum de viscosité, voir (section 4.3). Nous avons montré que, pour une suspension donnée (ϕ, a_r) , cette déformation est constante, quelque soit la contrainte appliquée. Le comportement de γ_{max} , en fonction du paramètre de concentration, nL^2d , et pour les trois rapports d'aspect, $a_r = [10, 18, 33]$ est illustré sur la figure 4.18 (a).

Le résultat marquant est que, γ_{max} décroît avec le paramètre de concentration, nL^2d , et croît avec le rapport d'aspect. La figure semble également indiquer que, pour les concentrations élevées, la déformation γ_{max} sature.

Cette tendance apparaît plus clairement encore lorsque $\frac{\gamma_{max}}{\gamma_J}$ est tracée en fonction du paramètre nL^2d (figure 4.18 (b)). On remarque également un collapse des 3 courbes, même si les points obtenus pour $a_r = 33$ et les 2 concentrations les plus faibles s'écartent légèrement de la courbe maîtresse :

$$\left\{ \begin{array}{l} \frac{\gamma_{max}}{\gamma_J}(nL^2d) = 0.24 - 0.048 \cdot nL^2d \quad , \text{ pour } nL^2d \lesssim 3.5 \\ \frac{\gamma_{max}}{\gamma_J}(\phi, a_r) = 0.075 \quad , \text{ pour } nL^2d \gtrsim 3.5 \end{array} \right. \quad (4.13)$$

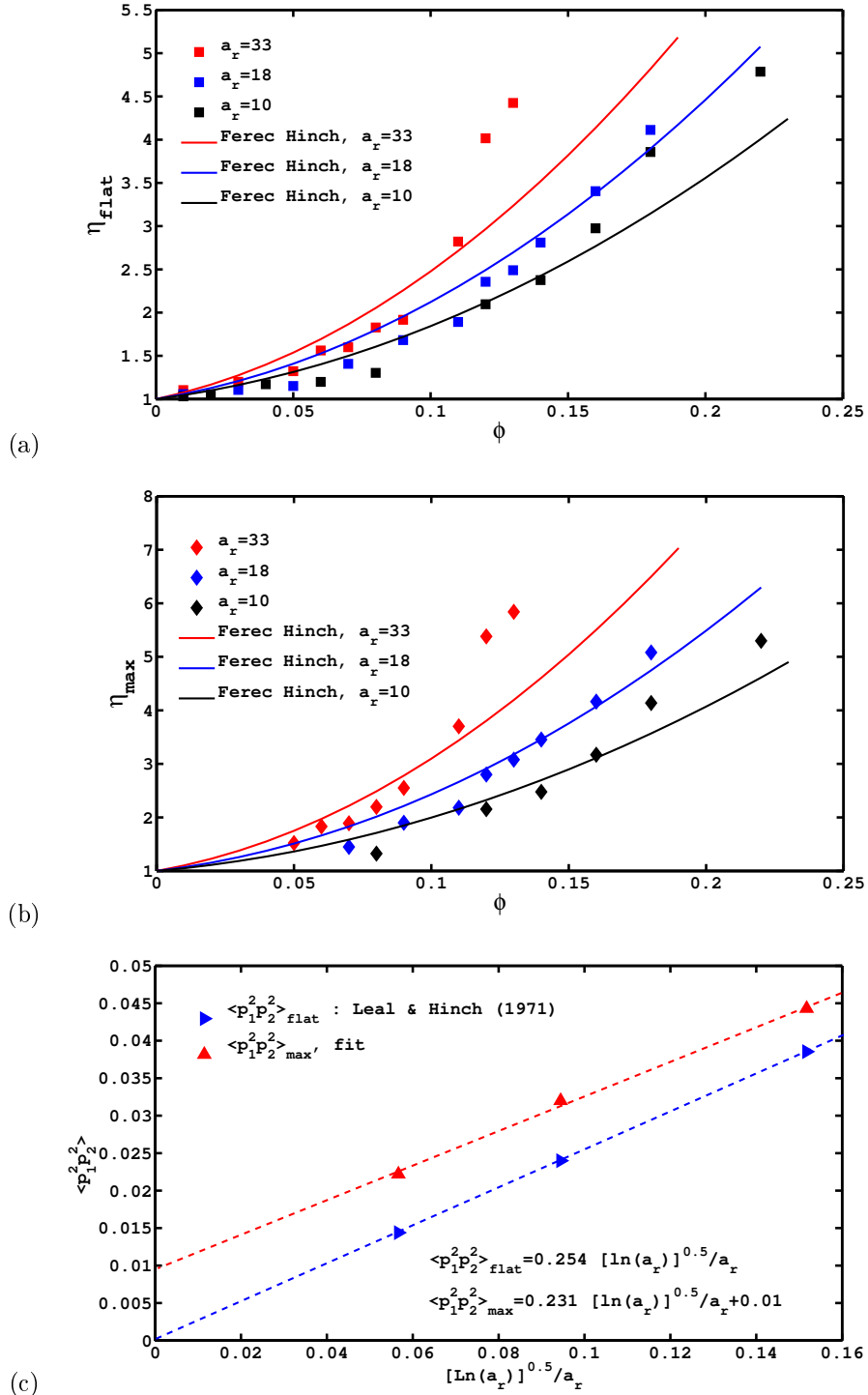


FIG. 4.16 – Comportement de la viscosité en fonction de la concentration pour des suspensions de fibres de trois rapports d'aspect, $a_r = 10$, $a_r = 18$ et $a_r = 33$. (a) η_{flat} . (b) η_{max} . Les courbes représentent le fit du modèle de [Djalili-Moghaddam & Toll 2005] et [Férec et al. 2009] combiné avec l'expression de $\langle p_1^2 p_2^2 \rangle_{flat}$ de [Leal & Hinch 1971] et [Hinch & Leal 1972]. (c) Comparaison des valeurs de la composante du tenseur d'orientation d'ordre 4 $\langle p_1^2 p_2^2 \rangle_{flat}$ de [Leal & Hinch 1971] et $\langle p_1^2 p_2^2 \rangle_{max}$ déterminé à partir du fit du modèle.

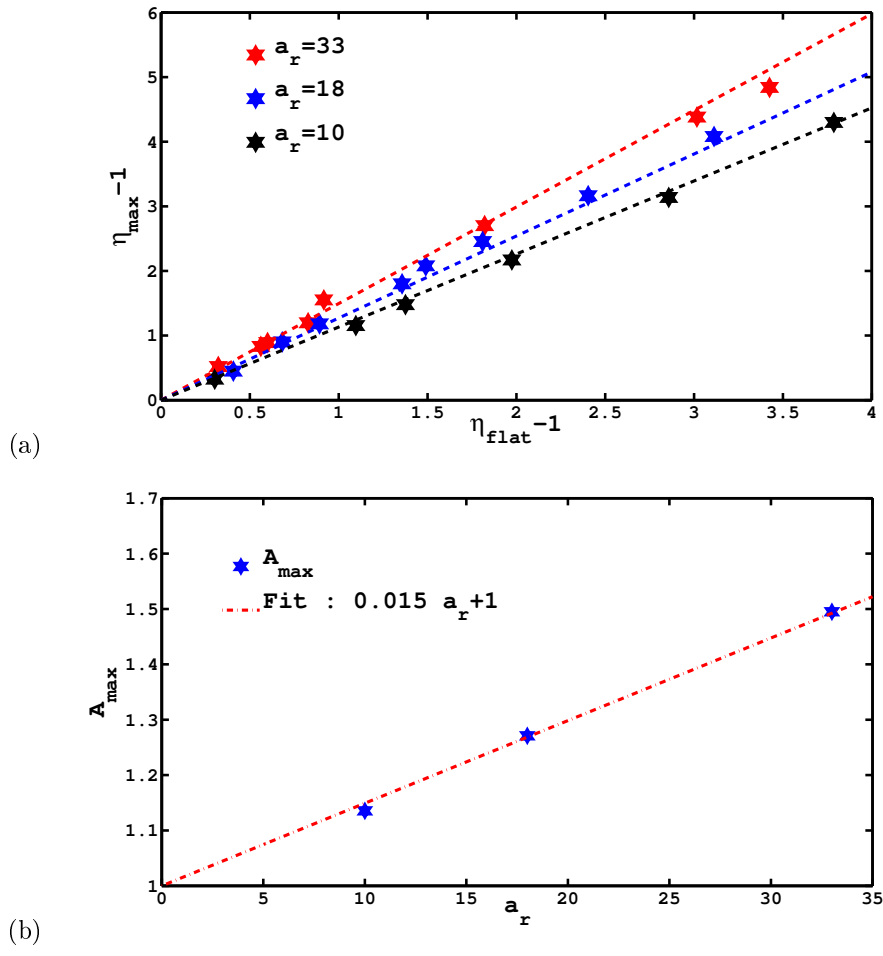


FIG. 4.17 – Loi empirique pour le maximum de viscosité η_{max} . (a) Comportement du maximum de viscosité, η_{max} en fonction de la viscosité plateau η_{flat} pour les suspensions de fibres de trois rapports d'aspect. (b) Variation de la pente A_{max} avec le rapport d'aspect. La loi empirique montre que pour un rapport d'aspect donné $A_{max} = \frac{\eta_{max} - 1}{\eta_{flat} - 1}$ est constant.

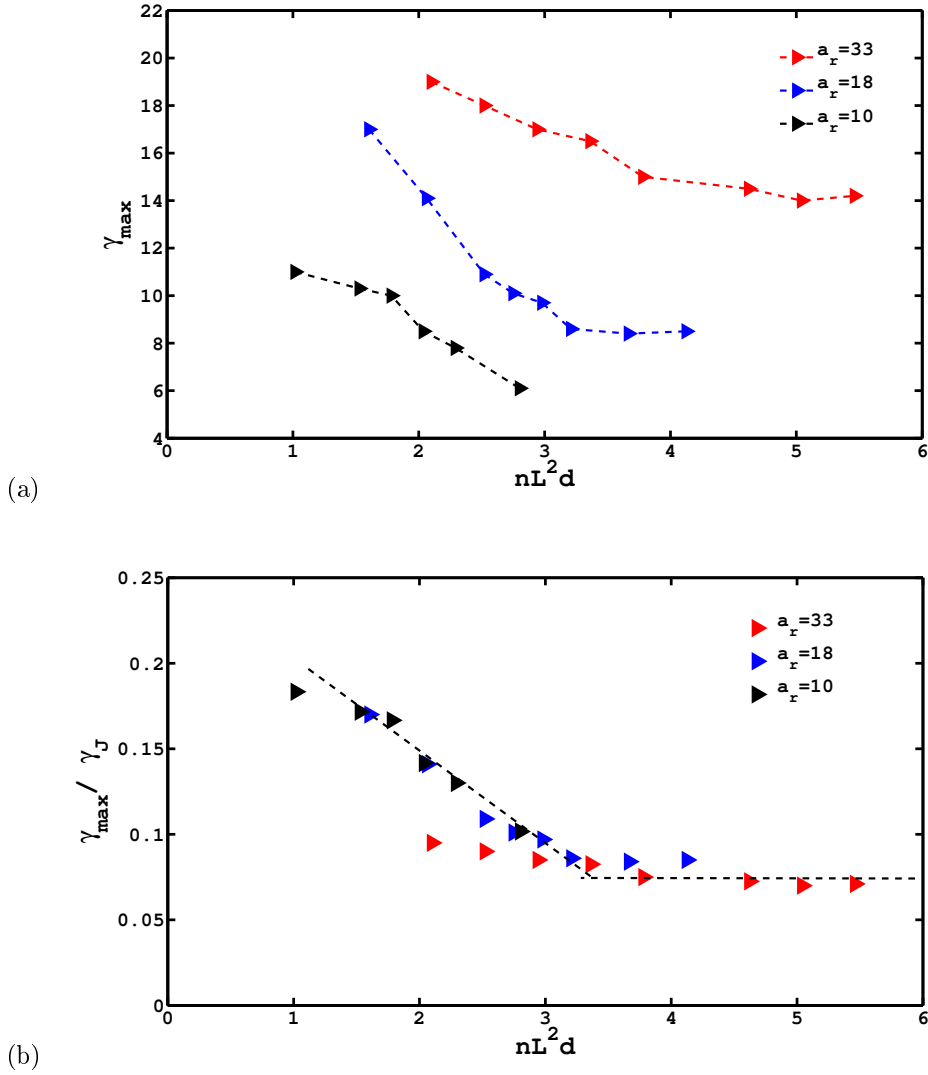


FIG. 4.18 – Déformation caractéristique, γ_{max} , où le pic de viscosité, η_{max} est localisé. (a) γ_{max} en fonction de $nL^2 d$. Pour les deux grands rapports d'aspect, la déformation caractéristique, γ_{max} , atteint un plateau lorsque $nL^2 d$ augmente. (b) γ_{max} normalisée par γ_J , $\frac{\gamma_{max}}{\gamma_J}$. Les données collapent en une seule courbe, qui décroît avec $nL^2 d$, jusqu'à atteindre une valeur de saturation pour $nL^2 d \sim 3.5$.

Une fois encore, ce collapse indique que la réponse transitoire de la viscosité, lors d'une inversion du sens de l'écoulement, est principalement pilotée par le basculement des fibres vers leur nouvelle orientation stationnaire.

4.8 Influence du confinement sur η_{min} et η_{max}

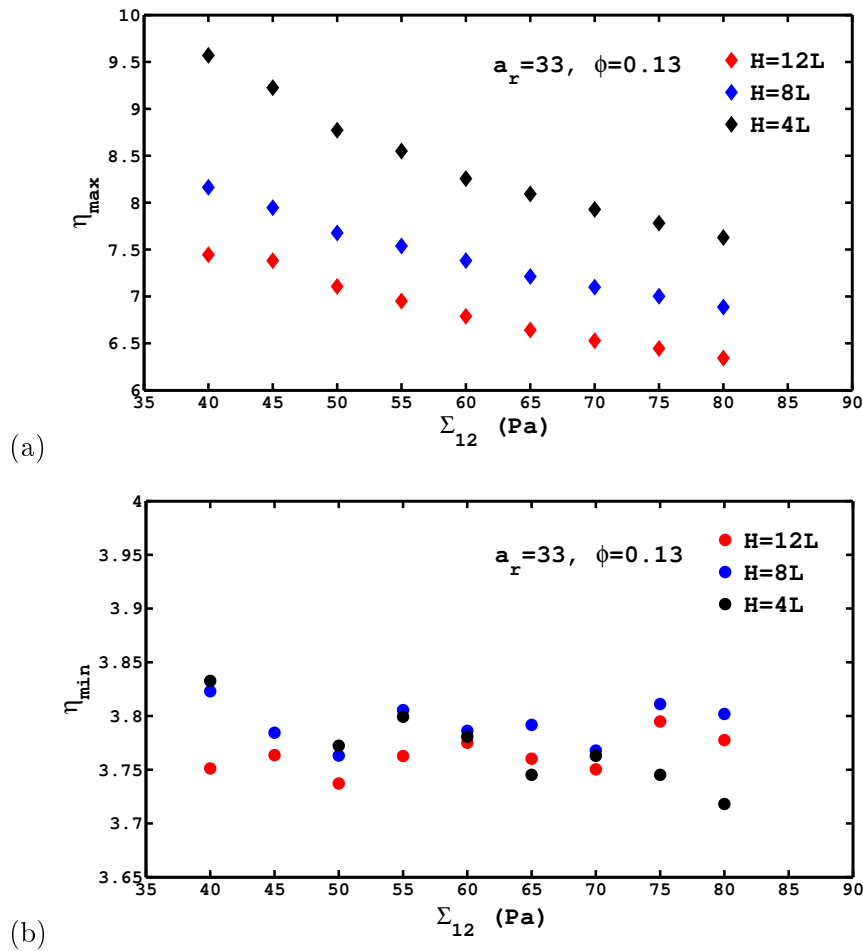


FIG. 4.19 – Exemple de l'effet du confinement sur les mesures de viscosité du transitoire pour une suspension concentrée de rapport d'aspect $a_r = 33$ et de concentration $\phi = 0.13$. (a) η_{max} en fonction de la contrainte appliquée, Σ_{12} . (b) η_{min} en fonction de la contrainte appliquée, Σ_{12} .

Nous nous intéressons à présent à l'effet du confinement sur les mesures de viscosité η_{min} et η_{max} lors du transitoire .

Nous avons considéré les mêmes suspensions que celles pour lesquelles nous avons étudié l'effet du confinement sur la viscosité stationnaire, η_{stat} , (chapitre 3, section 3.7).

Nous avons effectué les expériences d'inversion de cisaillement en explorant trois entrefers différents, $H = 2mm$, $H = 4mm$ et $H = 6mm$. Sur la figure 4.19 (a) et (b), nous avons pris comme exemple la suspension de fibres ($a_r = 33, \phi = 0.13$), pour laquelle nous présentons le comportement du maximum de viscosité, η_{max} , et du minimum de viscosité, η_{min} , en fonction de la contrainte appliquée, Σ_{12} , pour les trois niveaux de confinement.

La figure 4.19 (a) montre que le maximum de viscosité, η_{max} , augmente avec le confinement. De plus, la figure montre que le comportement de η_{max} est rhéofluidifiant et que la rhéofluidification, est plus faible lorsque le confinement diminue (l'entrefers est grand). Remarquons que ce comportement est tout à fait similaire à celui de la viscosité stationnaire, η_{stat} (section 3.7).

Par ailleurs, les mesures effectuées pour le minimum de viscosité, η_{min} , illustré sur la figure 4.19 (b), montrent que η_{min} , varie très faiblement avec le confinement.

La figure 4.20 montre la variation de $r_{max} = \frac{\eta_{max}}{\eta_{flat}}$ (mesuré pour des grandes contraintes) avec le confinement, H/L , et indique en particulier que r_{max} est indépendant de H , quel que soit la concentration et le rapport d'aspect des fibres. Cela signifie en particulier que le confinement et les interactions fibres/paroi affectent, de la même manière, la distribution d'orientation des fibres, que celle-ci corresponde à un alignement des fibres dans une direction proche de la vitesse de l'écoulement (orientation correspondant à η_{stat}) ou à une direction suivant l'axe de compression (orientation correspondant à η_{max}).

La variation du minimum de viscosité η_{min} , avec le confinement est représentée sur la figure 4.21. Aucun effet du confinement n'est notable et η_{min} ne dépend que de la concentration ϕ et du rapport d'aspect a_r . En outre, dans le cadre de l'hypothèse de l'intervention de l'élasticité du réseau de fibres pour expliquer le minimum de viscosité, l'indépendance de η_{min} vis à vis de H signifie que le module d'élasticité a la même dépendance que la viscosité stationnaire vis à vis du confinement. Il serait intéressant de vérifier cette observation en réalisant des mesures de fluage et de recouvrance.

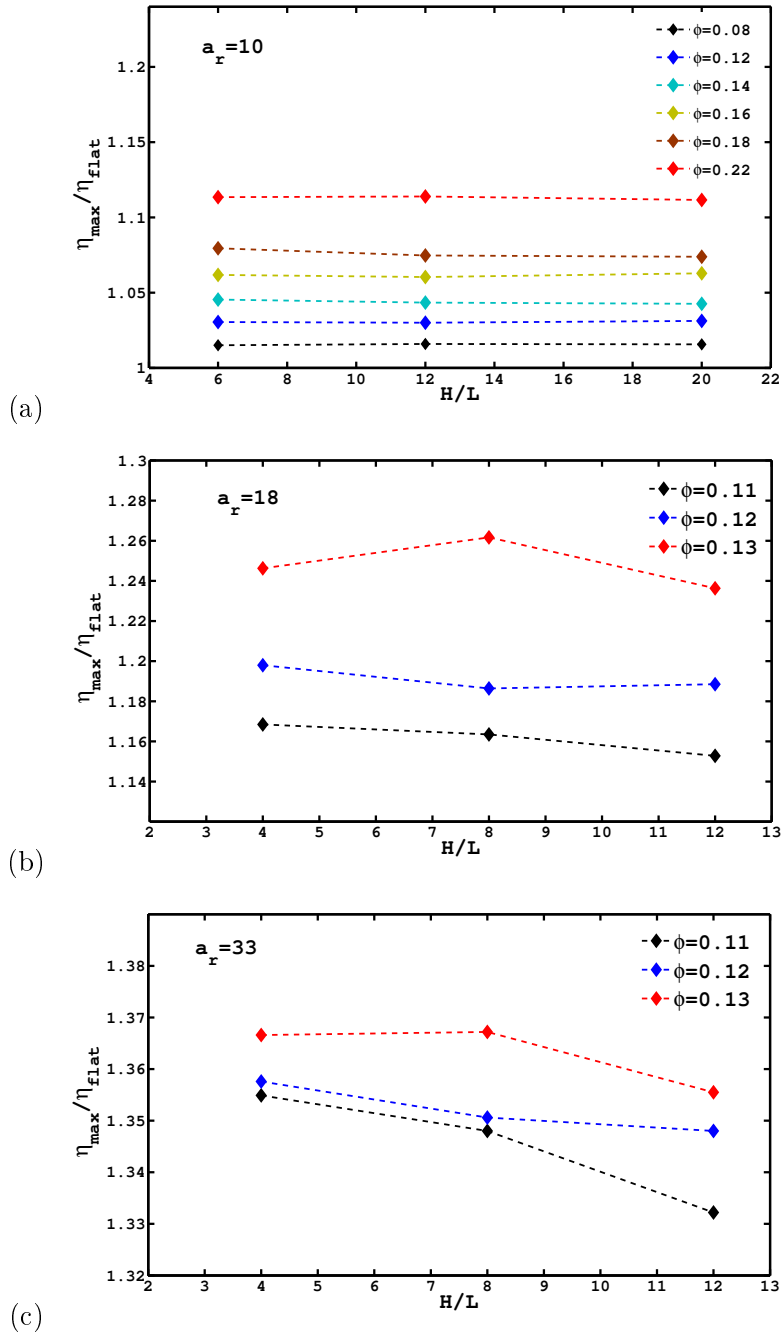


FIG. 4.20 – Rapport de η_{max} sur η_{flat} , en fonction de H/L . (a) Suspensions de rapport d'aspect $a_r = 10$. (b) Suspensions de rapport d'aspect $a_r = 18$. (c) Suspensions de rapport d'aspect $a_r = 33$. L'excès de viscosité r_{max} ne dépend pas du confinement.

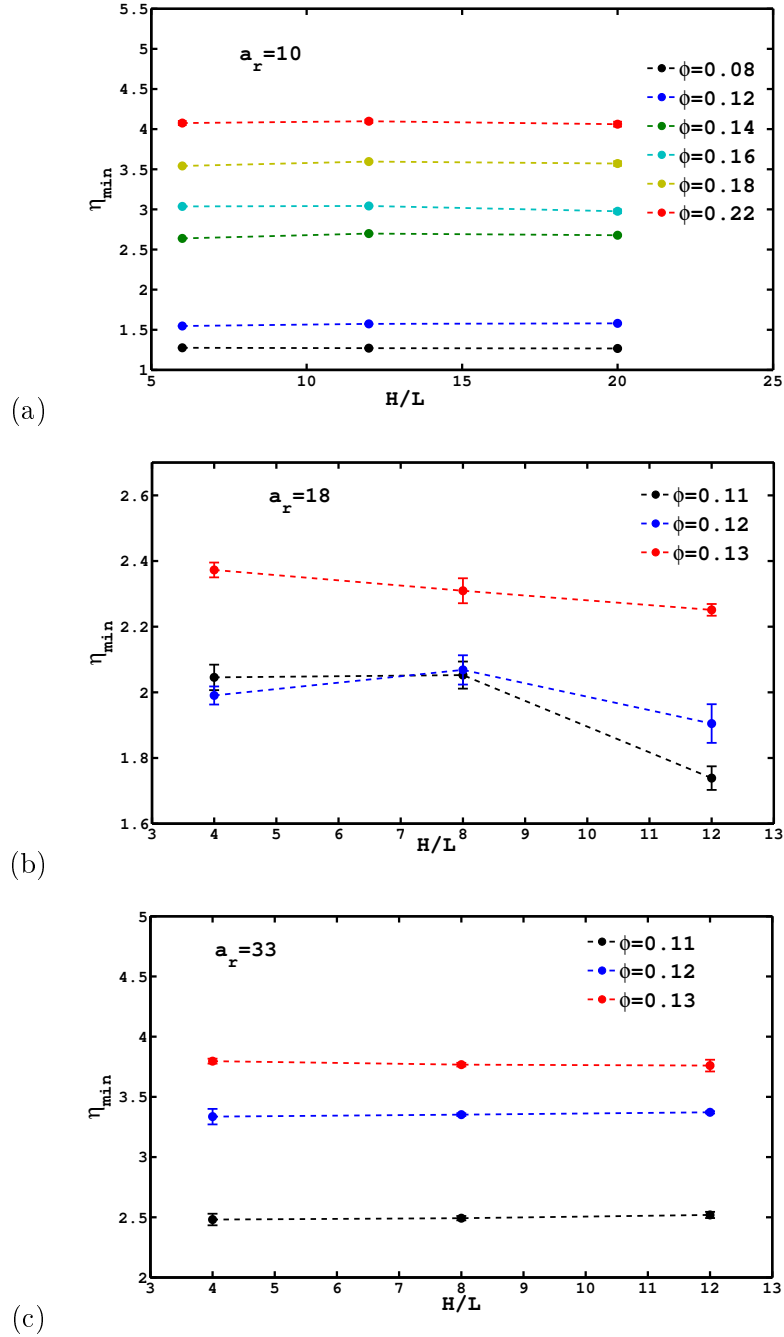


FIG. 4.21 – η_{min} , en fonction de H/L . (a) Suspensions de rapport d'aspect $a_r = 10$. (b) Suspensions de rapport d'aspect $a_r = 18$. (c) Suspensions de rapport d'aspect $a_r = 33$. la viscosité au minimum, η_{min} ne dépend pas du confinement.

4.9 Comparaisons avec les travaux précédents

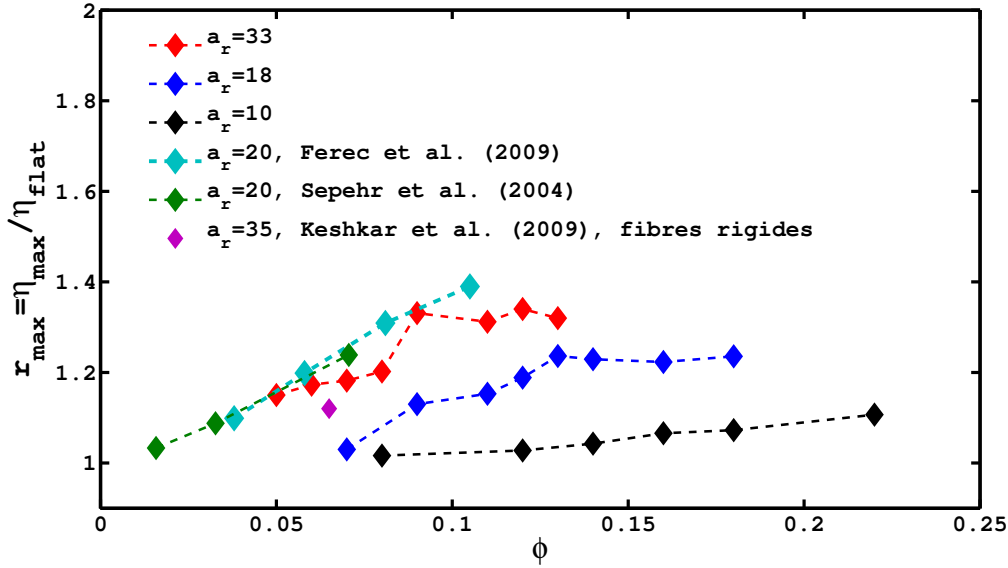


FIG. 4.22 – Rapport de $r_{max} = \frac{\eta_{max}}{\eta_{flat}}$, en fonction de la concentration pour les fibres de rapport d'aspect $a_r = [10, 20, 33]$ pour la présente étude, comparaison avec les données expérimentale de [Sepehr et al. 2004] et [Férec et al. 2009], pour $a_r = 20$ et [Keshkar et al. 2009], pour $a_r = 35$.

Nous allons à présent confronter nos résultats expérimentaux avec les travaux précédents sur les mesures expérimentales de transitoire. Une comparaison des mesures au maximum de viscosité η_{max} est possible à travers la grandeur $r_{max} = \frac{\eta_{max}}{\eta_{flat}}$. En effet, nous avons montré précédemment que le rapport r_{max} était indépendant du confinement. Cette observation nous permet alors de comparer directement nos résultats avec ceux des autres auteurs même si leur résultats ont été obtenus en présence du confinement.

La figure (4.22) reporte une comparaison de r_{max} en fonction de la concentration de la présente étude pour $a_r = [10, 18, 33]$ avec les données expérimentales de [Sepehr et al. 2004], [Férec et al. 2009] pour $a_r = 20$, et [Keshkar et al. 2009] pour $a_r = 35$ (fibres rigides). Ces auteurs ont effectué des mesures de transitoire en écoulement de cisaillement simple dans une géométrie plan-plan, pour un entrefer $H = 5L$. La figure montre que r_{max} croît avec la concentration et pour les deux grands rapport d'aspect $a_r = 18$ et $a_r = 33$, r_{max} atteint une valeur de saturation pour des concentrations élevées.

Nos résultats obtenus pour $a_r = 33$ sont en bon accord avec la mesure réalisée par [Keshkar et al. 2009] obtenus pour des fibres rigides de rapport d'aspect égal à 35.

En revanche, les valeurs de r_{max} obtenues par [Sepehr *et al.* 2004] et [Férec *et al.* 2009] pour un rapport d'aspect $a_r = 20$ sont très supérieures aux valeurs de r_{max} que nous avons mesurées pour $a_r = 18$.

Cette différence est difficile à expliquer. Il semble, en effet, que [Férec *et al.* 2009] et [Sepehr *et al.* 2004] aient réalisé leurs expériences dans des conditions proches des nôtres (fibres rigides, mesures de r_{max} sur le plateau newtonien)..

Nous verrons au chapitre 6 que les différences de contraintes normales mesurées par ce groupe sont elles aussi bien supérieures à celles que nous avons obtenues. Il conviendra, par la suite, de tenter de comprendre cette différence. La figure 4.23 montre une comparaison de la déformation caractéris-

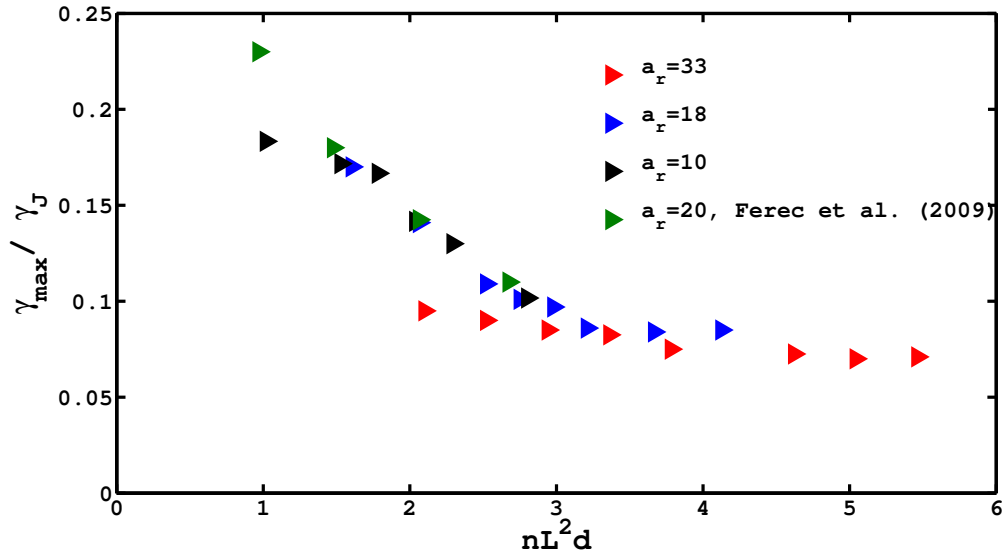


FIG. 4.23 – Déformation caractéristique au pic du transitoire, γ_{max} normalisée par γ_J , $\frac{\gamma_{max}}{\gamma_J}$ pour la présente étude et comparaison avec les données expérimentales de [Férec *et al.* 2009] pour $a_r = 20$. Les données collapent en une seule courbe, qui décroît avec nL^2d , jusqu'à atteindre une valeur de saturation $nL^2d \sim 3.5$.

tique au pic du transitoire, γ_{max} normalisée par γ_J , $\frac{\gamma_{max}}{\gamma_J}$ pour la présente étude et comparaison avec les données expérimentales de [Férec *et al.* 2009] pour $a_r = 20$. Les résultats de [Férec *et al.* 2009] rejoignent la tendance de la courbe maîtresse déjà décrite précocement (figure 4.18). Ce qui confirme à nouveau que les phénomènes de basculement et d'orientation des fibres sont gouvernés par les déformations accumulées.

4.10 Conclusions

Dans ce chapitre, nous avons présenté nos résultats sur la réponse transitoire de viscosité lors de l'inversion du sens de l'écoulement, dans le cas d'un cisaillement simple pour des suspensions de fibres en régimes semi-dilué et concentré (en régime dilué, nous n'avons observé aucune réponse transitoire). Nous avons effectué ces mesures sur des suspensions de fibres de trois rapports d'aspect $a_r = [10, 18, 33]$ pour des régimes de concentration qui n'ont jamais été explorés auparavant.

La réponse transitoire se traduit par une décroissance brutale de la viscosité jusqu'à une valeur minimale, η_{min} , ensuite elle croît jusqu'à atteindre une valeur maximale, η_{max} , enfin, elle décroît à nouveau pour retrouver sa valeur stationnaire, η_{stat} . La période de transitoire est de l'ordre de $\gamma_J/2$, quelque soit la concentration de la suspension et le rapport d'aspect des fibres.

Nous avons montré que le minimum de viscosité fait apparaître un temps caractéristique t_{min} dont l'origine est attribuée à l'élasticité du réseau formé par les fibres de la suspension. Le maximum de viscosité η_{max} quant à lui apparaît pour une déformation caractéristique γ_{max} et est attribué à l'état d'orientation maximale des fibres lorsque celles ci basculent pour retrouver leur orientation stationnaire.

Lorsque γ_{max} est normalisée par la déformation de Jeffery, γ_{max}/γ_J , nous avons montré que son comportement en fonction de nL^2d suit une loi linéaire qui décroît jusqu'à atteindre une valeur de saturation lorsque $nL^2d \sim 3.5$. Cette tendance confirme que les phénomènes de basculement et d'orientation de fibres sont gouvernés par les déformations accumulées lors de l'écoulement. Par ailleurs, nous avons montré que la rhéofluidification observée pour la viscosité au pic du transitoire est à peu près similaire à celle observée pour la viscosité stationnaire. Ce résultat est étudié à travers l'excès de viscosité, $r_{max} = \frac{\eta_{max}}{\eta_{flat}}$, qui dépend légèrement de la contrainte appliquée. Nous avons aussi exploré l'influence du confinement sur les grandeurs du transitoire, nous avons montré qu'aucun effet du confinement n'est notable pour η_{min} et r_{max} , ce qui suggère, d'une part, que l'hypothèse d'une intervention d'élasticité pour le minimum de viscosité a la même dépendance que la viscosité stationnaire vis à vis du confinement et, d'autre part, que l'effet des interactions (parois/fibres), affecte l'orientation maximale des fibres de la même façon qu'il altère l'orientation des fibres à l'état stationnaire.

Enfin, à partir des résultats sur le maximum de viscosité η_{max} que nous avons comparé au modèle de [Phan-Thien & Graham 1991] et [Férec *et al.* 2009], combiné avec la loi de [Leal & Hinch 1971] pour $\langle p_1^2 p_2^2 \rangle_{max}$ nous avons tenté de déterminer les composantes du tenseur d'ordre 4 au maximum de viscosité, $\langle p_1^2 p_2^2 \rangle_{max}$. En dernier lieu, nous avons comparé nos résultats de r_{max} avec les résultats des travaux expérimentaux précédents de [Sepehr *et al.* 2004], [Férec *et al.* 2009] qui trouvent des valeurs de r_{max} très supérieures aux valeurs de r_{max} que nous avons mesurées pour

$a_r = 18$. Par contre nos résultats sont en bon accord avec la mesure de [Keshtkar *et al.* 2009] pour $a_r = 33$.

Rhéofluidification dans les suspensions de fibres concentrées

5.1 Introduction

Dans ce chapitre nous allons étudier en détail la rhéofluidification des suspensions concentrées des fibres survenant à des taux de cisaillement assez bas. La rhéofluidification peut avoir des causes différentes telles que (a) le mouvement brownien, (b) la flexibilité des fibres, (c) les interactions colloïdales, mais dans tous les cas elle est régie par des forces non-hydrodynamiques qui sont soit indépendantes du taux de cisaillement, soit non-linéaires avec le taux de cisaillement. L'importance de ces forces par rapport aux forces hydrodynamiques définit le comportement rhéofluidifiant de la suspension et est décrite par un nombre sans dimension spécifique à chaque type d'interaction : le nombre de Péclet, Pe (équation (3.19), chapitre 3) pour le mouvement Brownien ; la raideur effective des fibres $S^{eff} = \frac{E_Y \pi}{64a_r^4} \cdot \frac{1}{\eta_0 \dot{\gamma}}$ pour la flexibilité des fibres ; le paramètre d'agrégation (équation 2.40, chapitre 2) pour les interactions colloïdales. Dans notre cas expérimental le nombre de Péclet et la raideur effective sont très grandes, tandis que le paramètre d'agrégation est de l'ordre d'unité, ce qui fait exclure les deux premiers mécanismes de la considération et nous impose la prise en compte des interactions colloïdales. Certains auteurs emploient les contacts mécaniques entre fibres comme une cause possible de la rhéofluidification. Cependant si les fibres restent rigides à l'échelle de l'aire de contact et si la friction entre fibres est régie par la loi de Coulomb (ou encore par la lubrification hydrodynamique), les forces de contact y afférant s'avèrent être linéaires avec le taux de cisaillement et ne peuvent en aucun cas conduire à la rhéofluidification. Les contacts mous (induisant, par exemple, l'écrasement des aspérités des fibres) ou le régime de lubrification dite "boundary lubrication" (correspondant à des transitions de phase "fluide-solide" dans la couche du liquide entre fibres et menant à des lois de friction plus compliquées) résultent en forces de contact non-linéaires en taux de cisaillement et doivent induire une rhéofluidification des suspensions. Cependant ces effets sont encore mal compris mêmes pour des suspensions de sphères et, à cause de l'extrême difficulté de leur caractérisation expérimentale, nous ne les explorons pas dans notre étude. Il faut aussi mention-

ner que dans le domaine colloïdal, on cite les interactions topologiques comme une cause possible des transitions de phases et du comportement non-Newtonien des colloïdes fibreux [Phillipse & Wierenga (1998), Raghavan and Douglas (2012), Martoïa (2016)]. Les interactions topologiques sont, selon notre compréhension, la combinaison des interactions de volume exclu (stériques) et de la flexibilité (élancement) des fibres. Dans le cas des suspensions non-Browniens de fibres rigides (avec des contacts hydrodynamiques ou colombiens) la notion d'élancement perd son sens (fibres droites sans enchevêtrement) et les interactions stériques sont régies uniquement par la fraction volumique de la suspension.

De toute rigueur, mise à part une estimation de la raideur effective des fibres S^{eff} , nous n'avons pas de preuve expérimentale solide de la non-flexibilité de nos fibres dans le cisaillement en régime concentré, ni d'information fiable sur la nature des contacts mécaniques entre fibres (élasto-plasticité des rugosités, loi de friction). Nous pensons quand même que dans la plage de contraintes imposées (jusqu'à 20 Pa), la rhéofluidification provient principalement des interactions colloïdales entre fibres. Nous allons donc explorer ce scénario en détail dans ce chapitre en conduisant de nouvelles expériences à bas taux de cisaillement et en présentant deux modèles différents reliant les forces colloïdales à comportement rhéologique des suspensions concentrées. Nous commencerons par le développement du modèle dit "affine " basé sur l'approche de probabilité de contact entre fibres [Doi & Edwards (1989), Férec et al. (2009)], où les forces colloïdales, les forces de lubrification et les forces de friction solide (supposées suivre la loi de Coulomb) sont pondérées par la probabilité de contact. L'inconvénient majeur de ce modèle est qu'il prédit un mouvement affin des fibres (leur centre de masse se déplace à la vitesse du liquide suspendant) provenant de l'hypothèse des contacts non-adhésifs (les fibres glissent l'une par rapport à l'autre même en subissant friction solide entre elle). L'affinité du mouvement revient à imposer l'absence de toute agrégation au sein de la suspension et nous mène à un comportement soit purement Newtonien en absence de friction solide entre particules soit à un comportement à contrainte seuil en présence de la friction solide. De manière surprenant, ce modèle décrit relativement bien les expériences de Natale et al. (2014) et de Rahatekar et al. (2009) sur les nanotubes de carbone. Du point de vue stratégique, ce modèle, que l'on reconnaît pas tout à fait réaliste, nous permet de faire un premier pas dans la compréhension de l'effet des forces colloïdales sur la rhéologie des suspensions des fibres, en s'affranchissant de l'agrégation compliquant fortement l'analyse de cet effet.

Dans un deuxième temps nous développerons un modèle plus réaliste tenant compte de l'agrégation causée par des forces colloïdales attractives et inspiré par l'approche de multi-population de Chinesta (2013) (on n'aura que deux populations de fibres agrégées et non agrégées) et par l'approche des agrégats destructibles par le cisaillement de Snabre & Mills (1996). On se servira des résultats du modèle affine pour la viscosité de la population des fibres non-agrégées. Ce deuxième modèle

n'exige pas la friction solide entre fibres pour expliquer la rhéofluidification, cette dernière peut être retrouvée en considérant seulement l'attraction colloïdale entre particules. La friction solide, si elle existe, est un facteur supplémentaire pouvant renforcer les contraintes dans la suspension et amplifier la rhéofluidification. Du point de vue macroscopique, ce modèle reproduit relativement bien les courbes d'écoulement arrondies des suspensions de fibres de deux types : nos suspensions fibres microscopiques de polyamide et les suspensions de nanotubes de carbone de Natale et al. (2014). Nous allons fitter ce deuxième modèle aux résultats expérimentaux et discuterons sur les causes du désaccord entre la théorie et des expériences. En conclusion nous appuierons sur le rôle du paramètre d'agrégation $N_A = \frac{F}{\Sigma_{12}d^2}$ sur le comportement rhéofluidifiant des suspensions. Les deux modèles théoriques mentionnés ci-dessus ainsi que les résultats de nouvelles expériences sur la viscosité à bas taux de cisaillement seront communiqués sous forme de deux articles soumis à *Journal of Fluid Mechanics* et à *Journal of Rheology*.

5.2 Modèles de rhéofluidification

**Apparent yield stress in rigid fibre suspensions:
The role of attractive colloidal interactions**

S. Bounoua¹, E. Lemaire¹, J. Férec², G. Ausias², A. Zubarev³, and P. Kuzhir¹†

¹University of Nice-Sophia Antipolis, CNRS UMR7336, Laboratory of Condensed Matter Physics, Parc Valrose, Nice 06100 France

²Institut de Recherche Dupuy de Lôme (IRDL), Univ. Bretagne-Sud, EA 4250, LIMATB, F-56100 Lorient, France

³Department of Mathematical Physics, Ural Federal University, 51, Prospekt Lenina, Ekaterinburg 620083, Russia

† Corresponding author: kuzhir@unice.fr

This work is focused on the modelling of the shear and normal stresses in fibre suspensions that are subjected to a simple shear flow in the presence of short-range lubrication forces, van der Waals and electrostatic forces, as well as solid friction forces between fibres. All these forces are weighed by the contact probability. The theory is developed for attractive fibres with van der Waals interaction dominating over electrostatic repulsion. The model predicts a simple Bingham law for both the shear stress and the first normal stress difference with the apparent shear and normal yield stresses proportional, respectively, to the second and the third power of particle volume fraction. The model is applied to the experimental data of Rakatekar *et al.* Adv. Mater **21**, 874-878 (2009) and Natale *et al.* AIChE J. **60**, 1476-1487 (2014) on the suspensions of carbon nanotubes dispersed in a Newtonian epoxy resin. It reproduces well the quadratic dependency of the apparent yield stress on particle volume fraction ($\sigma_Y \propto \phi^2$) for average particle aspect ratios $r=160$ and 1200 , while it under-predicts the power-law exponent for $r=80$ (always predicting ϕ^2 - behaviour instead of $\phi^{3.2}$).

1. Introduction

Rigid rod-like particles are known to strengthen significantly the visco-elastic properties of the composite materials (Christensen (1991)). Fibre-reinforced composites have numerous industrial applications ranging from concretes to reinforced plastics broadly used in automobile and aerospace industries. Among different types of rod-like particles, carbon nanotubes (CNT) have various advantages related to their relatively small size, high rigidity and extremely high aspect ratio allowing a strong enhancement of the elastic moduli of the composites (Allaoui *et al.* (2002)). However, particle aggregation under colloidal interactions lowers their effective aspect ratio and can induce thixotropic effects (Rahatekar *et al.* (2006), Khalkhal *et al.* (2011)). The chemical treatment improves the CNT dispersion state, however, it does not completely prevent the adhesive contacts between nanotubes because, being dispersed in a Newtonian solvent, the CNT suspensions still show a shear thinning behaviour (Song & Youn (2005), Fan & Advani (2007)). Therefore, a clearer understanding of the role of colloidal interactions between nanotubes is extremely important for the proper design of the CNT composites.

If the hydrodynamic interactions in fibre suspensions have received much attention during the last decades (see reviews by Larson (1999), Petrie (1999), Férec & Ausias (2015)), the colloidal and contact interactions have received less attention. Shear thinning behaviour related to non hydrodynamic interactions have been observed experimentally for suspensions composed of different types of fibres, like ceramic (Bergström (1998)), polyamide (Mongruel & Cloitre (1999), Chaouche & Koch (2001)), wollastonite (Mueller et al. (2010)), nontronite clay (Michot et al. (2009)), colloidal hematite (Solomon & Boger (1998)), multiwall CNT (Khalkhal et al. (2011)). Some colloidal suspensions experienced strong flocculation (Wierenga et al. (1998), Wolf et al. (2007)) resulting in a yield stress. In particular, Saarinen *et. al.* (2014) has carefully studied the flows and the microstructure of the micro-fibrillated cellulose suspensions near the yield point using the optical coherence tomography coupled with the cylindrical Couette rheometry. The authors have revealed a strongly flocculated state of the suspension depending on the ionic strength and on the shear rate and leading to heterogeneous flows with pronounced wall slip. Yield behaviour has also been observed for the non-Brownian pulp suspensions (Bennington et al. (1990), Cui & Grace (2007)) and is conventionally explained in terms of the combination between fibre flexibility and inter-fibre friction. Chaouche & Koch (2001) have measured the adhesive force acting between two nylon fibres of a diameter ranging between 14 and 28 μm and have found the values ranging between 10^{-8} and 10^{-6} N. To the best of our knowledge, this is the single work quantifying the colloidal forces in non Brownian fibre suspensions and underlying importance of these forces on the shear thinning behaviour.

Theoretical modelling of non-Newtonian effects in fibre suspensions concerns mostly flexible fibres, whose shear thinning behaviour is governed by the ratio of the fibre elastic modulus to the applied shear stress and the yield stress appears as a result of the solid friction between the packed fibres (Bennington et al. (1990), Toll & Månson (1994), Servais et al. (1999)). In a series of papers, Klingenberg and co-workers have reproduced the rheology of flexible fibre suspensions by particle-level numerical simulations (see for instance Schmid & Klingenberg (2000); Switzer & Klingenberg (2004)). In addition to the solid friction, they have included an attractive force between fibres. A phenomenological expression have been proposed for this force: it was supposed to be exponentially decaying with the separation between fibres, linear in shear rate and independent of the mutual orientation of fibres. The authors concluded on a weak effect of this force on the suspension rheology and maintained the interplay between the solid friction and the fibre entanglement as the main mechanism governing the non-Newtonian behaviour.

However, the above-mentioned scenario cannot explain shear thinning effects in suspensions of rigid fibres dispersed in a Newtonian solvent (Bergström (1998), Mongruel & Cloitre (1999), Chaouche & Koch (2001)). The theoretical modelling of these effects has started quite recently. Natale et al. (2014) have extended the models of Férec et al. (2009) and Djalili-Moghaddam & Toll (2005) to non-Newtonian lubrication contacts between fibres. They mimicked the resultant hydrodynamic and non-hydrodynamic interactions between fibres by a power-law lubrication law with shear-thinning index and consistency taken as adjustable parameters. The interaction force has been weighed by the contact probability and

was taken into account in the stress tensor of the suspension. When the shear thinning index is set to 0, the interaction force between fibres becomes independent of shear rate and leads to the yield stress in the fibre suspension (Férec et al. (2015)). Another approach, elaborated by Ma et al. (2008), consists of considering a series of fibre populations having different degrees of aggregation characterized by phenomenological aggregation and destruction times. The probability density of finding a fibre in a given population with a prescribed orientation was found by a solution of the properly formulated Fokker-Planck equation, while the stress tensor was calculated by averaging over all populations and orientations. Both models gave a satisfactory correspondence with experiments reproducing a strong shear thinning behaviour of CNT suspensions. However, the models remain mainly phenomenological without considering adhesive interaction potential. The first model captures the shear thinning by a manually introduced power-law exponent of the non-linear lubrication law. The second model makes use of a phenomenological rotary diffusivity of particles belonging to each population. As a consequence, the model predicts progressive particle alignment and a viscosity decrease with growing Péclet number. A more detailed study of the dynamics of aggregates composed of fibres has been recently carried out by Abisset-Chavanne et al. (2013) and Abisset-Chavanne et al. (2015). However, the colloidal forces have not still been taken into consideration and the effect of the aggregates on the suspension rheology is not reported.

Since the role of the adhesive contacts on the rheology of rigid fibre suspensions remains poorly understood, we decided to construct a theoretical model considering micromechanics of the fibre-fibre contacts with colloidal van der Waals and electrostatic interactions. The basic idea consists in calculation of the resulting colloidal force between two contacting fibres, weighing this force by the probability of inter-particle contact and introducing the appropriate terms into the equation of motion and into the stress tensor. In theory, the shear thinning behaviour is not necessarily connected to particle aggregation. Non-hydrodynamic inter-particle forces (scaling non-linearly with shear rate) will inevitably lead to non-linear shear stress versus shear rate dependency even if the particles still remain perfectly dispersed. Clearly, the van der Waals interactions promote the aggregation, which is expected to strongly affect the stress level and the orientation state of the fibres. However, it is important to inspect these both effects separately in order to gain a clearer insight into the physics behind them. Therefore, in this work we focus only on effect of the colloidal interactions on the fibre orientation and on the suspension stress without considering aggregation. We consider only the case of overall attractive interaction, i.e. van der Waals attraction is supposed to dominate over electrostatic repulsion.

In the next §2, we present our theoretical model. In §3, we compare our model with the experimental results of Natale et al. (2014) on the shear viscosity and the first normal stress difference of CNT suspensions. Finally, conclusions and perspectives are outlined in §4.

2. Theory

Under shear flow, the fibres enter into a close contact with their neighbours, and strong short-range forces may appear. At the beginning, in §2.1, we will present the main

assumptions of the model, then, in §2.2, we will find the expressions for the interaction forces between fibres; we will also integrate these forces over the contact probability and obtain the mean interaction force. In §2.3, we will find the fibre orientation distribution, and finally in §2.4, we will proceed to the calculation of the shear and normal stresses.

2.1. Main assumptions

Let us consider a steady state simple shear flow of a suspension of perfectly rigid fibres dispersed in a Newtonian solvent of viscosity η_0 . The flow is characterized by a shear rate $\dot{\gamma}$. The Cartesian coordinate frame is chosen in such a way that the axes 1, 2 and 3 correspond to the flow, velocity gradient and vorticity directions, respectively, as depicted in figure 1.

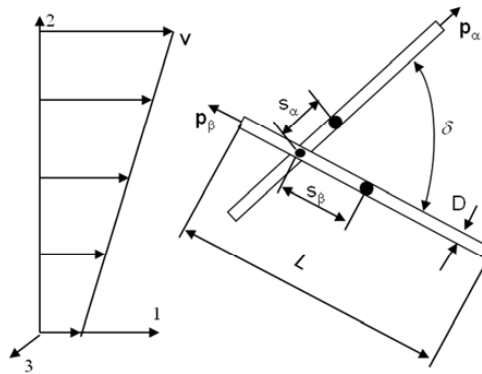


Figure 1. Sketch of the contact between two fibres

To get a qualitative picture of the effect of colloidal forces on the rheology of fibre suspensions, we will discard some secondary details of the experimental system and introduce the following assumptions:

1. According to characterizations performed by Khalkhal et al. (2011), the CNT particles showed some distribution of their length and diameter. However, for the sake of simplicity, we shall consider the fibres to be monodisperse, thus all having the same length L , the same diameter D and the same aspect ratio $r=L/D$. For definiteness, the average values $D\approx 16$ nm of the fibre diameter and $r\approx 160$ of the aspect ratio will be used.

2. The relative importance of the Brownian motion with respect to hydrodynamic interactions is described by the Péclet number [Larson (1999)]: $Pe \approx \pi \eta_0 L^3 \dot{\gamma} / [3k_B T (\ln r - 0.8)]$, where $\eta_0 = 12.3$ Pa·s is the suspending fluid viscosity, $k_B \approx 1.38 \cdot 10^{-23}$ J/K is the Boltzmann constant, $T \approx 300$ K is the absolute temperature. In the range of the shear rates, $10^{-2} \leq \dot{\gamma} \leq 10^2$ s $^{-1}$, used in experiments of Natale et al. (2014), the Péclet number varies in the range $13 \leq Pe \leq 1.3 \cdot 10^5$. Such high values of the Péclet number allow us to consider CNT as non-Brownian fibers.

3. According to estimations of Khalkhal et al. (2011) (who characterized the CNTs used in experiments of Natale et al. (2014)), the CNTs are expected to be very rigid to the bending within the range of the applied shear stresses. However, the electron microscopy reveals some bending of fibres likely because of some local defects. The effect of such defects on CNT orientation state under flow has been recently studied by Natale et al. (2015). Keeping in mind the possible importance of the CNT structural defects on the suspension rheology, we prefer to focus on the effect of colloidal interactions. Thus, at the first approximation, we consider the fibres to be perfectly rigid and straight.

4. We consider both van der Waals attraction and electrostatic repulsion between fibres through Derjaguin-Landau-Verwey-Overbeek (DLVO) theory adapted to rod-like particles. The electrostatic repulsion is considered at either the limit of a weak electrostatic potential Ψ on the fibre surface ($e\Psi \ll k_b T$, with e – elementary charge) or the thin electric double layer limit ($\kappa^{-1} \ll D$, with κ^{-1} - Debye length). At these conditions, verified for non-stabilized CNT/epoxy composites, the electric double layer does not significantly increase the effective hydrodynamic diameter of fibres and, consequently does not lead to strong excluded volume effects occurring in strongly repulsive colloids. The resulting colloidal interaction is attractive and is expected to lead to small separations, $h \ll D$, between fibres in contact points, as will be proved in §3.

5. According to the work of Petrich & Koch (1998), at small separations h , the energy dissipation within the inter-fibre gaps is governed by both a hydrodynamic lubrication and a tangential solid-like friction. The latter is described by the classical Amontons-Coulomb friction law:

$$F_{fr} = \mu F_{\perp} \quad (1)$$

where F_{\perp} is the normal component of the resulting attractive force between particles and μ is the friction coefficient.

6. We suppose only sliding contacts between particles, i.e. the fibres do not stick to each other but always slide over each other in all contact points. The sliding contacts are expected to prevent the particles from aggregation, and we neglect any possible aggregation. This assumption implies an affine translational motion of fibres, as we shall prove in §2.2. The present hypothesis will be further discussed in §2.2 and §4.

7. The interactions between fibres and walls are neglected. This assumption should hold relatively well for the high ratio of the rheometer gap to the CNT length. To perform their experiments, Natale et al. (2014) used a cone-and-plate flow geometry, for which the gap at the centre of the cone is found to be 25 times larger than the longest CNT.

2.2. Inter-particle forces

A sketch of a mutual position of two contacting fibres (marked as α and β) is shown in figure 1. The orientation of both fibres is described by unit vectors \mathbf{p}^{α} and \mathbf{p}^{β} , while the

distance between the contact point and the centre of mass of each fibre is denoted by s_α and s_β . According to the assumptions (4) and (5), the following short range forces act between the contacting fibres: a lubrication force \mathbf{F}_{lub} , an attractive van der Waals force, \mathbf{F}_{vdW} , a repulsive electrostatic force \mathbf{F}_{el} and a tangential friction force \mathbf{F}_{fr} . It can be shown that the normal component of the van der Waals and electrostatic forces generates only the odd moments of the orientation distribution function ($\langle \mathbf{p} \rangle$, $\langle \mathbf{p}\mathbf{p}\mathbf{p} \rangle$, ...) in the stress tensor and in the equation of fibre rotation. Since these moments are zero because of symmetry reasons, the normal component of \mathbf{F}_{vdW} and \mathbf{F}_{el} does not give any contribution to the stress and the orientation state, of course, only under assumption (6) of perfect sliding without aggregation. Analysis shows that the tangential component of \mathbf{F}_{vdW} and \mathbf{F}_{el} appears to be negligible relatively to the friction force \mathbf{F}_{fr} even at low friction coefficients. Therefore, only the lubrication and the solid friction force will give leading order contributions to the suspension stress.

The lubrication force may depend not only on the separation between fibre surfaces but also on microscopic details of the lubricated contacts, such as surface roughness and possible deformation of the contact area. Férec et al. (2009) have proposed a simple scaling $\mathbf{F}_{lub} \propto \eta_0 D \mathbf{u}$ discarding these details, with \mathbf{u} being the relative velocity of the approach of two fibres. This scaling neglects the effect of the mutual orientation of fibres. Intuitively, when the fibres get more aligned with respect to each other, the contact area increases inversely proportionally to the sine of the angle δ between fibres (figure 1). The lubrication force is roughly proportional to the contact area and is expected to be inversely proportional to $\sin \delta = |\mathbf{p}^\alpha \times \mathbf{p}^\beta|$, similarly to the case of the classical lubrication between two perfectly smooth cylinders without elastic deformations [Yamane et al. (1994)]. Thus, the expression for the lubrication force reads:

$$\mathbf{F}_{lub} = \frac{k\eta_0 D \mathbf{u}}{|\mathbf{p}^\alpha \times \mathbf{p}^\beta|} \quad (2)$$

where k is a dimensionless constant depending on the microscopic details of the lubricated contact. This constant is taken as a free parameter of the model. According to the assumption (5), the solid friction force [Eq. (1)] can be written in the following vector form:

$$\mathbf{F}_{fr} = \mu F_\perp \frac{\mathbf{u}_{\alpha\beta}}{|\mathbf{u}_{\alpha\beta}|} \quad (3)$$

where $\mathbf{u}_{\alpha\beta}$ is the projection of the velocity of the relative motion of the contact points of the neighbouring fibres “ α ” and “ β ” onto the $\alpha\beta$ -plane formed by both fibres.

According to the DLVO theory, the resulting energy U of colloidal interactions between particles is the sum of the energies U_{vdW} and U_{el} of van der Waals and electrostatic interactions, respectively. Grossberg & Khohlov (1981), van der Schoot & Odjik (1992) have proposed a theoretical expression for U_{vdW} for rod-like particles with $r \gg 1$ and at small separations $h \ll D$. On the other hand, Brenner & Parsegian (1974) have derived the

expression for U_{el} for a weak electrostatic repulsion [$e\Psi \ll k_B T$ or $\kappa^{-1} \ll D$, cf. assumption (4)] at $r \gg 1$ and any $h > 0$. The resulting energy and the normal component of the colloidal forces are given by the following expressions:

$$U = U_{vdw} + U_{el} = -\frac{A}{12} \frac{D}{h |\mathbf{p}^\alpha \times \mathbf{p}^\beta|} + \frac{\nu^2}{4\epsilon_0 \epsilon \kappa} \frac{\exp[-\kappa(D+h)]}{|\mathbf{p}^\alpha \times \mathbf{p}^\beta|} \quad (4.1)$$

$$F_\perp = -\left(\frac{\partial U}{\partial h}\right)_\delta = \frac{F}{|\mathbf{p}^\alpha \times \mathbf{p}^\beta|} \quad (4.2)$$

$$F = F_{vdw} + F_{el} = \frac{A}{12} \frac{D}{h^2} - \frac{\nu^2}{4\epsilon_0 \epsilon} \exp[-\kappa(D+h)] > 0 \quad (4.3)$$

where A is the Hamaker constant; $\epsilon_0 = 8.85 \cdot 10^{-12}$ F/m – the dielectric permittivity of vacuum, ϵ – the relative dielectric permittivity of the suspending fluid, κ – the inverse Debye length, ν – linear electric charge density on the fibre surface, F is a typical value of the resulting colloidal force when both fibres are orthogonal to each other. Only positive values of F results in non-zero solid friction force between fibres. The condition $F > 0$ is automatically verified under the used assumption on weakness of electrostatic interactions. Notice that equations (2) and (4) are only valid if the mutual orientation of both fibres is such that $\sin \delta > 1/r$ (Grossberg & Khohlov (1981), van der Schoot & Odjik (1992), Brenner & Parsegian (1974)). This condition will be checked in §2.5.

2.3. Averaging of the interaction forces over the contact probability

In order to get the total force acting on a given fibre by neighbouring fibres, first, we need to express the velocities \mathbf{u} and $\mathbf{u}_{\alpha\beta}$ through the orientation vectors of the fibres. The position of the centre of mass of both fibres is described by the radius vectors \mathbf{r}_α and \mathbf{r}_β . The expressions for the vector $\Delta \mathbf{r}$ connecting the nearest points of the axes of both fibres and for the relative velocity \mathbf{u} of the fibres' approach (or rather relative velocity of these two points) are obtained from geometrical and kinematic considerations, respectively:

$$\Delta \mathbf{r} = (\mathbf{r}_\beta + s_\beta \mathbf{p}^\beta) - (\mathbf{r}_\alpha + s_\alpha \mathbf{p}^\alpha), \quad (5.1)$$

$$\mathbf{u} = \Delta \dot{\mathbf{r}} = (\dot{\mathbf{r}}_\beta + s_\beta \dot{\mathbf{p}}^\beta) - (\dot{\mathbf{r}}_\alpha + s_\alpha \dot{\mathbf{p}}^\alpha), \quad (5.2)$$

where $\dot{\mathbf{r}}_\alpha = \boldsymbol{\xi} \cdot \mathbf{r}_\alpha$ and $\dot{\mathbf{r}}_\beta = \boldsymbol{\xi} \cdot \mathbf{r}_\beta$ are the velocities of the centre of mass of both fibres, $\boldsymbol{\xi} = \boldsymbol{\omega} + \boldsymbol{\gamma} = \nabla \mathbf{v}$, $\boldsymbol{\omega} = (1/2)(\nabla \mathbf{v} - \nabla \mathbf{v}^T)$ and $\boldsymbol{\gamma} = (1/2)(\nabla \mathbf{v} + \nabla \mathbf{v}^T)$ are the velocity gradient, vorticity and rate-of-strain tensors, and the vector \mathbf{v} describes the linear velocity field in the fibre suspension. From now, we shall use the component notation for the vectors and tensors and adopt the convention of the summation over the repeated indices. The rotation speed of the fibres can be estimated in the dilute-limit approach using the Jeffery formula (Jeffery (1922), Larson (1999)):

8

$$\dot{p}_i = \omega_{ik} p_k + \lambda(\gamma_{ik} p_k - p_i p_k p_l \gamma_{kl}) \quad (6)$$

where the superscripts “ α ” and “ β ” over \mathbf{p} are omitted for brevity; $\lambda = (r_e^2 - 1)/(r_e^2 + 1)$ is the form-factor of the fibres and $r_e = 1.24r / \ln^{1/2} r$ is the equivalent aspect ratio of the cylindrical particles (Brenner (1974)). Combination of equations (5) and (6) gives us the following expression for the relative velocity of the approach of two fibres:

$$u_l = \xi_{lm} \Delta r_m - (1 - \lambda)(s_\beta \gamma_{lm} p_m^\beta - s_\alpha \gamma_{lm} p_m^\alpha) - \lambda(s_\beta p_l^\beta p_m^\beta p_s^\beta \gamma_{ms} - s_\alpha p_l^\alpha p_m^\alpha p_s^\alpha \gamma_{ms}) \quad (6)$$

Here $\Delta \mathbf{r}$ can be expressed through the distance between the nearest points of the fibre axes Δr as $\Delta \mathbf{r} = \pm \Delta r (\mathbf{p}^\alpha \times \mathbf{p}^\beta) / |\mathbf{p}^\alpha \times \mathbf{p}^\beta|$. As a consequence, the first term of (7) will always result in odd moments of the orientation distribution function ($\langle \mathbf{p} \rangle$, $\langle \mathbf{p} \mathbf{p} \mathbf{p} \rangle$, ...), which are all zero. For this reason, this term will be hereinafter omitted. In the limit of high aspect ratio fibres, $r \gg 1$ and $\lambda \approx 1 - 2/r_e^2$, the second and the third terms of (7) are of the order of magnitude $\dot{\gamma} L / r^2$ and $\dot{\gamma} L$ respectively. The second term can be therefore neglected and equation (7) will take the following form:

$$u_l \approx s_\alpha p_l^\alpha p_m^\alpha p_s^\alpha \gamma_{ms} - s_\beta p_l^\beta p_m^\beta p_s^\beta \gamma_{ms} \quad (8)$$

Note that, within the assumption $r \gg 1$ ($\lambda \approx 1$), the first and the second terms of (8) represent the components of the relative velocity along the fibres “ α ” and “ β ”, respectively. Therefore, the vector \mathbf{u} lies in the plane formed by both fibres and the component $\mathbf{u}_{\alpha\beta} \approx \mathbf{u}$. Thus, we will not make any distinction between the magnitudes \mathbf{u} and $\mathbf{u}_{\alpha\beta}$ appearing in (2) and (3).

The relationship (8) is similar to the one derived by Djalili-Moghaddam & Toll (1995) but differs from that derived by Férec et al. (2009) who have used the co-rotational frame. We argue that material objectivity should be naturally satisfied in the classical Cartesian coordinate frame because we derive the orientation and stress tensors from the microscopic approach (by ensemble average of the local orientation and stress fields) without using any phenomenological constitutive relationships. Thus, it is convenient to use the classical Cartesian coordinate frame.

Let us now define the probability dP of fibre contact, as the number of fibres β intersecting the segment of the test fibre α at the angle corresponding to the orientation vector \mathbf{p}^β , with the contact happening within the segment length ds_α and ds_β (Doi & Edwards (1986), Férec et al. (2009)):

$$dP = 2nD |\mathbf{p}^\alpha \times \mathbf{p}^\beta| ds_\alpha ds_\beta \psi_\beta d\mathbf{p}^\beta \quad (9)$$

where n is the number fraction of the fibres and ψ_β is the angular distribution function of the neighbouring fibres β .

Thus, all the quantities related to the fibre contacts will be averaged first over the contact probability (this averaging will be denoted by $\langle \dots \rangle_P$), and then over the orientation of the test fibre. For example, the average lubrication and solid friction forces acting on the test fibre α are defined as: $\langle \mathbf{F}_{\text{lub}} \rangle_P = \int \mathbf{F}_{\text{lub}} dP$ and $\langle \mathbf{F}_{\text{fr}} \rangle_P = \int \mathbf{F}_{\text{fr}} dP$. Since $\mathbf{F}_{\text{lub}} \propto \mathbf{u}$ and $\mathbf{F}_{\text{fr}} \propto \mathbf{u}/|\mathbf{u}|$ are odd functions of s_α and s_β (cf. equation (8) for \mathbf{u}), their integration over the lengths of both fibres gives zero. We prove therefore that the average force exerted by the neighbouring fibres to the test fibre is zero. In this case, the fibres displace affinely with the flow, i.e. their centre of mass displaces with the velocity of the suspending liquid, as already stated in assumption (4) of §2.1. We should notice however that this assumption holds only in the case of perfect sliding contacts when all the fibres slide along each other with a relative velocity given by (8). In reality, for some contact points, the tangential friction force may appear to be less than the product μF_\perp . The fibres will stick to each other in these points and their translational motion will not more be affine. At strong enough attractive colloidal force, F_\perp , each fibre can have several sticking contacts promoting appearance of a fibre network. As already mentioned, we ignore this scenario in the present work.

2.4. Equation of angular motion of the test fibre

This equation describes the temporal evolution of the unit vector \mathbf{p}^α and takes the following form in the presence of non-hydrodynamic torques (Pokrovskiy (1978)):

$$\dot{p}_i^\alpha = \omega_{ik} p_k^\alpha + \lambda (\gamma_{ik} p_k^\alpha - p_i^\alpha p_k^\alpha p_l^\alpha \gamma_{kl}) + \frac{1}{\eta_0 \beta f^\perp V_f} \langle T_{ik} p_k^\alpha \rangle_P \quad (10)$$

where V_f is the fibre volume, the form factors β and f^\perp are defined below equation (15); T_{ik} is the interaction torque tensor related to the total force $\mathbf{F} = \mathbf{F}_{\text{lub}} + \mathbf{F}_{\text{fr}}$ acting on a given contact point of the test fibre α ; this tensor is given by the following expression:

$$T_{ik} = s_\alpha (p_k^\alpha F_i - p_i^\alpha F_k) \quad (11)$$

Combining (2), (3), (4.2), (8) and (11) together, we obtain the following expression for the magnitude $T_{ik} p_k^\alpha$ appearing in the last term of (10):

$$T_{ik} p_k^\alpha = s_\alpha (F_i - p_i^\alpha p_k^\alpha F_k) = - \left(\frac{k \eta_0 D s_\alpha s_\beta}{|\mathbf{p}^\alpha \times \mathbf{p}^\beta|} + \frac{\mu F s_\alpha s_\beta}{|\mathbf{u}| |\mathbf{p}^\alpha \times \mathbf{p}^\beta|} \right) (p_i^\beta p_k^\beta p_l^\beta \gamma_{kl} - p_i^\alpha p_k^\alpha p_k^\beta p_l^\beta p_m^\beta \gamma_{lm}) \quad (12)$$

where F is the colloidal force given in (4.3).

Since the magnitude $T_{ik} p_k^\alpha$ is an odd function of s_α and s_β , its integration over the length of both fibres will give zero. Besides this, the averaging over the orientations of the neighbouring fibres β will result in the odd moment $\langle \mathbf{PPP} \rangle$ of the orientation distribution function, which is zero because of symmetry reasons. The equation of the angular motion of the test fibre reduces therefore to the classical Jeffery equation (6). Note that if, instead of (6)

we use equation (10) in (5.2) while determining the relative velocity \mathbf{u} , we will still arrive at $\langle T_{ik} p_k^\alpha \rangle_p = 0$ and the fibre angular motion will remain unaltered by the contact forces. At the first glance, this result seems to contradict to the statement that fibre orientation should be strongly affected by particle-particle interactions. However, equation (6) describes only the deterministic motion of fibres, apparently not influenced by short-range interactions. The stochastic motion is expected to be affected by these interactions because the rotary diffusivity should be an increasing function of the short-range forces resulting in a more random orientation distribution with increasing interactions.

2.5. Orientation distribution

The fibre orientation distribution function is given by the Fokker-Planck equation which takes the similar form as for the fibre suspension without short-range interactions (Larson (1999)). We assume that the rotary diffusion of fibres is mostly governed by hydrodynamic and short-range contact interactions and suppose the diffusivity to be proportional to the fibre volume fraction ϕ and the shear rate $\dot{\gamma}$:

$$D_r = C\phi\dot{\gamma} \quad (13)$$

where C is a dimensionless constant which can depend on the fibre aspect ratio and is taken as an adjustable parameter of the model. The rotary diffusivity given by (13) is similar to the one proposed by Folgar & Tucker (1984), $D_r = C_I \dot{\gamma}$. In our model the Folgar & Tucker's interaction constant is chosen to be proportional to particle concentration, $C_I = C\phi$, and therefore accounts for pair interactions.

We assume a weak diffusion limit, $D_r r_e^3 / \dot{\gamma} = C\phi r_e^3 \ll 1$ at $r \gg 1$, described in details by Leal & Hinch (1971) and Hinch & Leal (1972). These authors have solved the Fokker-Planck equation for the simple shear flow and derived analytical expressions for the even moments $\langle \mathbf{pp} \rangle$ and $\langle \mathbf{pppp} \rangle$ of the orientation distribution function. We write down the formulas (including only the leading terms) for the three goniometric factors that will be used in §2.4 for the stress calculation:

$$\langle p_1^2 p_2^2 \rangle \approx \frac{a}{r_e} = \frac{c \ln^{1/2} r}{r} \quad (14.1)$$

$$\langle p_1^3 p_2 \rangle - \langle p_1 p_2^3 \rangle \approx \frac{1}{4} \frac{D_r r_e^2}{\dot{\gamma}} = \frac{1}{4} C b \phi \frac{r^2}{\ln r} \quad (14.2)$$

$$\langle p_1 p_2^3 \rangle - \langle p_1 p_2 p_3^2 \rangle \approx -\frac{5}{2} \frac{D_r}{\dot{\gamma}} = -\frac{5}{2} C \phi \quad (14.3)$$

where we have used the relationship $r_e = 1.24r / \ln^{1/2} r$ for the equivalent aspect ratio; the numerical constants a , b and c come from the integration of the orientation distribution function of Leal & Hinch (1971) and take the following values: $a=0.315$, $b=1.54$ and

$c=a/b^{1/2}=0.254$. Notice that the factor $C\phi$ describes eventual effects of the short-ranged hydrodynamic and contact interactions between fibres on the rotary diffusivity and therefore on the fibre orientation state. As is seen from (14), only the two last goniometric factors (14.2) and (14.3) are affected by these interactions in the low diffusion limit $C\phi r_e^3 \ll 1$.

Having defined the orientation distribution, we can now check the condition $\sin \delta > 1/r$ of validity of equations (2) and (4). According to Férec et al. (2009), the mean value of $\sin \delta$ can be estimated as $\langle \sin \delta \rangle \approx (3\pi/8)(1 - \langle \mathbf{pp} \rangle \langle \mathbf{pp} \rangle)$. Following the work of Leal & Hinch (1971), we estimate firstly the product $\langle \mathbf{pp} \rangle \langle \mathbf{pp} \rangle = 4.844/r + O(1/r^2)$ and secondly the sine of the angle δ : $\langle \sin \delta \rangle \approx 5.71/r$. As we see, the condition $\sin \delta > 1/r$ is verified, at least for the average orientation state.

2.6. Shear and normal stresses

It can be easily shown that in the absence of external torques acting on fibres, the particle stress is entirely defined by the longitudinal stress generated on fibres. This proof is briefly presented in Appendix A. The general expression for the stress tensor reads (Brenner (1974), Pokrovskiy (1978)):

$$\begin{aligned} \sigma_{ik} = & -p\delta_{ik} + \eta_0\gamma_{ik} + nV_f\eta_0 \left\{ 4\gamma_{ik} + \frac{\beta f^{\parallel}}{2} \left[\langle p_i p_k p_l p_m \rangle - \frac{1}{3} \delta_{ik} \langle p_l p_m \rangle \right] \gamma_{lm} \right\} + \\ & + nV_f\beta f^{\perp} \eta_0 D_r \left[3 \langle p_i p_k \rangle - \delta_{ik} \right] + n \langle p_i p_k p_l \varphi_l \rangle \end{aligned} \quad (15.1)$$

$$n \langle p_i p_k p_l \varphi_l \rangle = n \langle p_i p_k p_l \int s_{\alpha} F_l d\mathbf{P} \rangle = 2n^2 D \int_{\mathbf{p}^{\alpha}} \psi_{\alpha} d\mathbf{p}^{\alpha} \int_{\mathbf{p}^{\beta}} \psi_{\beta} d\mathbf{p}^{\beta} \int_{-L/2}^{L/2} s_{\alpha} ds_{\alpha} \int_{-L/2}^{L/2} |\mathbf{p}^{\alpha} \times \mathbf{p}^{\beta}| p_i^{\alpha} p_k^{\alpha} p_l^{\alpha} F_l ds_{\beta} \quad (15.2)$$

where p is the hydrostatic pressure, n is the number fraction of fibres, F_l is the “ l ”-component of the total short-range force $\mathbf{F} = \mathbf{F}_{\text{lub}} + \mathbf{F}_{fr}$ acting between fibres; ψ_{α} is the orientation distribution function for the test fibre α ; δ_{ik} is the delta Kronecker; $\beta = 4r^2\varepsilon/3$, $f^{\perp} = (1 + 0.64\varepsilon)/(1 - 0.5\varepsilon)$, $f^{\parallel} = (1 + 0.64\varepsilon)/(1 - 1.5\varepsilon)$ and $\varepsilon = 1/\ln(2r)$ are the form factors estimated with the help of the slender body theory of Batchelor (1970) in the dilute limit. The first two terms of (15.1) represent the stress contribution from the suspending liquid, the third term is the hydrodynamic stress generated by the fibres, the fourth term comes from stochastic fluctuations of the fibre orientation (so-called diffusion stress) and the last term comes from short-ranged forces acting between fibres. Equation (15.1) is the same as proposed by Brenner (1974) and Pokrovskiy (1978) except for the supplementary term $n \langle p_i p_k p_l \varphi_l \rangle$, in which we introduced the short-range force $\mathbf{F} = \mathbf{F}_{\text{lub}} + \mathbf{F}_{fr}$ between fibres. Note that, in its general form, this stress term differs from the term $n \langle p_i \varphi_k \rangle \propto nL \langle p_i F_k \rangle$ used by Toll & Månson (1994), Djalili-Moghaddam & Toll (2005) and Férec et al. (2009). These authors considered the inter-particle stress to be proportional to the dyadic product of the position vector $s_{\alpha} \mathbf{p}^{\alpha}$ and the

inter-particle force \mathbf{F} , while we take only the longitudinal component of the inter-particle stress $s_\alpha \mathbf{p}^\alpha \mathbf{F}$ because the transverse components are compensated by the hydrodynamic moment acting on fibres (cf. equations (A3)-(A4) in Appendix A).

Strictly speaking, the integration in (15.2) cannot be performed analytically for the term including the friction force. This is because the absolute value $|\mathbf{u}|$ of the relative velocity depends on \mathbf{p}^α , \mathbf{p}^β , s_α and s_β and intervenes into the denominator of the expression (3) for the friction force. However this difficulty can be overcome if we perform the pre-averaging of the magnitude $|\mathbf{u}|$ both over the contact probability and over the orientation of the test fibre: $|\mathbf{u}| \rightarrow \langle |\mathbf{u}| \rangle$, where the averaging is performed in a similar way as in (15.2). This kind of pre-averaging has been used by Doi & Edwards (1986) for determining of the mean rotary diffusivity of polymer molecules in the frame of the tube model. The magnitude $|\mathbf{u}|$ is obtained as the square root of the dot product $\mathbf{u}^2 = u_i u_i$, with u_i given by (8):

$$|\mathbf{u}| = \sqrt{\mathbf{u}^2} = \sqrt{u_i u_i} = \left(s_\alpha^2 P_k^\alpha P_l^\alpha P_m^\alpha P_n^\alpha \gamma_{kl} \gamma_{mn} - 2s_\alpha s_\beta P_i^\alpha P_k^\alpha P_l^\alpha P_m^\beta P_n^\beta \gamma_{kl} \gamma_{mn} + s_\beta^2 P_k^\beta P_l^\beta P_m^\beta P_n^\beta \gamma_{kl} \gamma_{mn} \right)^{1/2} \quad (16)$$

Exact integration of (16) over \mathbf{p}^α , \mathbf{p}^β , s_α and s_β does not allow obtaining analytical results for the suspension stress. However, an approximate expression can be obtained under the following consideration. We estimate that the average value of the relative velocity and of the mean square velocity are of the order of $\langle |\mathbf{u}| \rangle = O(L\dot{\gamma} r^{-1} \ln r)$ and $\langle \mathbf{u}^2 \rangle = O(L^2 \dot{\gamma}^2 r^{-1})$, respectively. Thus, neglecting the logarithmic term, $\langle |\mathbf{u}| \rangle$ can be related to $\langle \mathbf{u}^2 \rangle$ through the following expression: $\langle |\mathbf{u}| \rangle \approx \langle \mathbf{u}^2 \rangle / (L\dot{\gamma})$. Performing the averaging, we obtain the following simple expression for $\langle |\mathbf{u}| \rangle$ (the subscript “ α ” over \mathbf{p} is dropped for brevity):

$$\langle |\mathbf{u}| \rangle \approx \frac{\langle \mathbf{u}^2 \rangle}{L\dot{\gamma}} = \frac{1}{L\dot{\gamma}} \frac{1}{L^2} \int_{\mathbf{p}^\alpha} \psi_\alpha d\mathbf{p}^\alpha \int_{\mathbf{p}^\beta} \psi_\beta d\mathbf{p}^\beta \int_{-L/2}^{L/2} \int_{-L/2}^{L/2} \mathbf{u}^2 ds_\alpha ds_\beta = L\dot{\gamma} \langle \hat{u} \rangle \quad (17.1)$$

$$\langle \hat{u} \rangle = \frac{1}{6} \langle P_k P_l P_m P_n \rangle \hat{\gamma}_{kl} \hat{\gamma}_{mn} \quad (17.2)$$

where $\hat{\gamma}_{kl} = \gamma_{kl} / \dot{\gamma}$ is the rate-of-strain tensor normalized by the shear rate $\dot{\gamma}$.

Now we are able to perform the averaging of the last term of the stress tensor. Making use of (2), (3), (4.2), (7) and (17.1) in equations (15.1) and (15.2), the final expression for the stress tensor is written in the following form:

$$\begin{aligned} \sigma_{ik} = & -p\delta_{ik} + 2\eta_0\gamma_{ik} + nV_f\eta_0 \left\{ 4\gamma_{ik} + \frac{\beta f^{\parallel}}{2} \left[\langle p_i p_k p_l p_m \rangle - \frac{1}{3} \delta_{ik} \langle p_l p_m \rangle \right] \gamma_{lm} \right\} + \\ & + nV_f\beta f^{\perp} \eta_0 D_r \left[3 \langle p_i p_k \rangle - \delta_{ik} \right] + \frac{1}{6} kn^2 D^2 L^4 \eta_0 \langle p_i p_k p_l p_m \rangle \gamma_{lm} + \frac{n^2 DL^3 \mu F}{6 \langle \hat{u} \rangle \dot{\gamma}} \langle p_i p_k p_l p_m \rangle \gamma_{lm} \end{aligned} \quad (18)$$

where F and \hat{u} are given by (4.3) and (17.2), respectively and the rotary diffusivity D_r should not be confounded with the fibre diameter D . The last two terms in (18) stand for the contributions of the short-ranged hydrodynamic and friction force, correspondingly. In the considered weak diffusion limit, $D_r r_e^3 / \dot{\gamma} \ll 1$, the diffusion stress is of the order of $nV_f\eta_0\dot{\gamma}(D_r r^2 / \dot{\gamma})^2$, while the hydrodynamic stress is of the order of $nV_f\eta_0\dot{\gamma}r$. The ratio of both is of the order of $(D_r r^3 / \dot{\gamma})^2 / r^3$ and appears to be extremely weak for high aspect ratio fibres at $r \gg 1$. Thus, the diffusion stress can be neglected in (18). Note that the orientation tensor $\langle \mathbf{p}^\alpha \times \mathbf{p}^\beta | \mathbf{p}^\alpha \mathbf{p}^\alpha \mathbf{p}^\beta \mathbf{p}^\alpha \rangle$ does not appear in the stress tensor of our model in contrast to the works of Djalili-Moghaddam & Toll (1995) and Férec et al. (2009). This is simply because in our model both the lubrication, van der Waals force and electrostatic forces were supposed to be inversely proportional to $\sin \delta = |\mathbf{p}^\alpha \times \mathbf{p}^\beta|$ such that the magnitude $|\mathbf{p}^\alpha \times \mathbf{p}^\beta|$ worked out during integration over the contact probability $dP \propto |\mathbf{p}_\alpha \times \mathbf{p}_\beta|$ (cf. equation (9)).

Now, applying equation (18) for the simple shear flow with $\gamma_{12} = \gamma_{21} = (1/2)\dot{\gamma}$, $\gamma_{ik} = 0$ for $ik \neq 12, 21$, and using equation (14) for the goniometric factors and (17b) for $\langle \hat{u} \rangle$ (giving $\langle \hat{u} \rangle = (1/6)\langle p_1^2 p_2^2 \rangle$), we arrive at the following expressions for the shear stress and the first normal stress difference in the fibre suspension:

$$\begin{aligned} \sigma_{12} = & \eta_0\dot{\gamma}(1 + 2nV_f) + \frac{1}{2} nV_f\eta_0\dot{\gamma}\beta f^{\parallel} \langle p_1^2 p_2^2 \rangle + \frac{1}{6} kn^2 D^2 L^4 \eta_0\dot{\gamma} \langle p_1^2 p_2^2 \rangle + \frac{n^2 DL^3 \mu F}{6 \langle \hat{u} \rangle} \langle p_1^2 p_2^2 \rangle = \\ = & \eta_0\dot{\gamma}(1 + 2\phi) + \frac{2}{3} c\phi\eta_0\dot{\gamma} \frac{r \ln^{1/2}(r) f^{\parallel}}{\ln(2r)} + \frac{8}{3\pi^2} ck\phi^2\eta_0\dot{\gamma}r \ln^{1/2}(r) + \frac{16}{\pi^2} \phi^2 \frac{\mu F}{D^2} r \end{aligned} \quad (19.1)$$

$$\begin{aligned} N_1 = \sigma_{11} - \sigma_{22} = & \frac{1}{2} nV_f\eta_0\dot{\gamma}\beta f^{\parallel} (\langle p_1^3 p_2 \rangle - \langle p_1 p_2^3 \rangle) + \frac{1}{6} kn^2 D^2 L^4 \eta_0\dot{\gamma} (\langle p_1^3 p_2 \rangle - \langle p_1 p_2^3 \rangle) + \\ & \frac{n^2 DL^3 \mu F}{6 \langle \hat{u} \rangle} (\langle p_1^3 p_2 \rangle - \langle p_1 p_2^3 \rangle) = \frac{1}{6} Cb\phi^2\eta_0\dot{\gamma} \frac{r^4 f^{\parallel}}{\ln(2r) \ln r} + \frac{2}{3\pi^2} Cbk\phi^3\eta_0\dot{\gamma} \frac{r^4}{\ln r} + \frac{4}{\pi^2} C \frac{b}{c} \phi^3 \frac{\mu F}{D^2} \frac{r^4}{\ln^{3/2} r} \end{aligned} \quad (19.2)$$

where $\phi = nV_f$ is the particle volume fraction of the suspension, $b=1.54$ and $c=0.254$. As in suspensions where fibres interact only through hydrodynamic forces, and in the limit $r \gg 1$, the second normal stress difference N_2 appears to be negligible as compared to N_1 . This comes from the fact that the third goniometric factor (14.3) is negligible with respect to the second

one (14.2) such that the ratio of the second-to-the first normal stress difference is much smaller than unity:

$$\frac{N_2}{N_1} = \frac{\langle p_1 p_2^3 \rangle - \langle p_1 p_2 p_3^2 \rangle}{\langle p_1^3 p_2 \rangle - \langle p_1 p_2^3 \rangle} \approx -\frac{10}{r_e^2}, \quad \left| \frac{N_2}{N_1} \right| \ll 1 \quad (20)$$

Notice that the last term in (19.1) and (19.2) stands for the solid friction force between fibres and appears to be independent of the shear rate, while the remaining terms are linear in shear rate. This means that both the shear stress and the first normal stress difference follow the Bingham rheological law, $\sigma_{12} = \sigma_Y + \eta_s \dot{\gamma}$ and $N_1 = N_Y + \eta_n \dot{\gamma}$, with the shear and normal viscosities η_s and η_n being functions of the particle volume fraction and aspect ratio, while the shear and normal yield stresses are defined by the following expressions:

$$\sigma_Y = \frac{n^2 D L^3 \mu F}{6 \langle \hat{u} \rangle} \langle p_1^2 p_2^2 \rangle = \frac{16}{\pi^2} \phi^2 \frac{\mu F}{D^2} r \quad (21.1)$$

$$N_Y = \frac{n^2 D L^3 \mu F}{6 \langle \hat{u} \rangle} (\langle p_1^3 p_2 \rangle - \langle p_1 p_2^3 \rangle) = \frac{4}{\pi^2} C \frac{b}{c} \phi^3 \frac{\mu F}{D^2} \frac{r^4}{\ln^{3/2} r} \quad (21.2)$$

Note that the obtained equations (19) and (20) could be applied for any attractive interaction between fibres and are not restricted to a specific type or a specific expression for the resulting attractive force, like the one given in (4). Since little is known about electrokinetic properties of the CNT analyzed in the present paper and about the separation h between the CNT surfaces, it is more convenient to use the colloidal force F , or rather a product μF , as an adjustable parameter of the model.

We will proceed now to the comparison of the shear and normal stress predicted by our model with experiments of Natale et al. (2014) on the CNT suspensions. In addition, the predictions of the shear yield stress will be compared to the experiments of Rahatekar et al. (2009).

3. Comparison with experiments

3.1. Flow curves

In experiments, the CNT were dispersed in a Newtonian epoxy resin having a viscosity $\eta_0 = 12.3$ Pa·s (Natale et al. (2014)). As stated in assumption (1) of §2.1, the average CNT diameter and average aspect ratio takes the values of $D \approx 16$ nm and $r \approx 160$. The experimental and theoretical flow curves (shear stress versus shear rate dependencies) are shown in figure 2 for four different CNT volume fractions ϕ ranging from 0.59 to 2.36%. First, we remark that the experimental flow curves (symbols in figure 2) have a rounded shape corresponding to a power law behaviour at low shear rates $\dot{\gamma} < 10$ s⁻¹ followed by a linear segment at higher shear rates $\dot{\gamma} > 10$ s⁻¹. Thus, the shear stress of CNT suspensions can be described by the Bingham law, $\sigma_{12} = \sigma_Y + \eta_s \dot{\gamma}$ at $\dot{\gamma} > 10$ s⁻¹ with the apparent shear yield stress

σ_y obtained by a linear extrapolation of the flow curves to zero shear rate. This yield stress should not be confounded with the real yield stress which appears in some structured fluids and is considered to be the threshold stress required for the onset of the flow when the structure breaks or becomes slipping on the rheometer walls (Barnes (1999)). Qualitatively, our model (solid lines in figure 2) reproduces the linear segments of the flow curves but fails to capture the initial rounded segment. This is likely because we ignore particle aggregation. This phenomenon should seriously impact the suspension rheology at low shear rates. The aggregate size is expected to decrease with increasing shear rate resulting in a shear thinning manifested by the rounded shape of the flow curves. All the aggregates are expected to be broken at high shear rates. Individual particles continue to interact with each other at high shear rates and result in linear segments of the flow curves. Thus, our model can be applied safely only for high enough shear rates corresponding to the non-aggregated state.

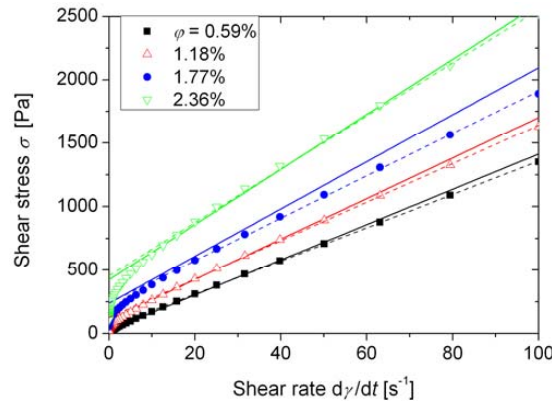


Figure 2. (Colour online) Experimental and theoretical flow curves of the CNT suspensions at different particle volume fractions ϕ . The symbols correspond to experimental data of Natale et al. (2014), the dashed lines to the linear fit of the experimental data in the shear rate range $10 \leq \dot{\gamma} \leq 100 \text{ s}^{-1}$, the solid lines correspond to the theory [equation (19.1) with $k=25$ and $\mu F=7.5 \times 10^{-13} \text{ N}$]. The values of the suspension volume fraction ϕ are given in the figure legend.

Quantitatively, the model fits reasonably well the experimental data of Natale et al. (2014) at $\dot{\gamma} > 10 \text{ s}^{-1}$. According to equation (19.1), the two free parameters used for the fit of the flow curves are the product μF of the friction coefficient by the colloidal force and the dimensionless constant k intervening into equation (1) for the lubrication force. The best fit is obtained for $k=25$ and $\mu F = 7.5 \times 10^{-13} \text{ N}$.

3.2. First normal stress difference

Experimental and theoretical (data of Natale et al. (2014)) shear rate dependencies of the first normal stress difference for four different CNT volume fractions are plotted in figure 3. The experimental dependencies (symbols in figure 3) show the similar trend as the flow curves plotted in figure 2. The normal stress difference seems to be insignificant at zero shear rate; a smooth power-law increase of the normal stress at low shear rates $\dot{\gamma} < 30 \text{ s}^{-1}$ is followed by a linear segment at higher shear rates $\dot{\gamma} > 30 \text{ s}^{-1}$. Thus, at $\dot{\gamma} > 30 \text{ s}^{-1}$ the

experimental dependencies can be fitted by a linear trend $N_1 = N_y + \eta_n \dot{\gamma}$ similar to the Bingham law for the shear stress. The apparent normal yield stress N_y is found by a linear extrapolation of the experimental N_1 versus $\dot{\gamma}$ dependencies to zero shear rate. The relative yield contribution N_y / N_1 to the normal stress appears to be more important than that σ_y / σ_{12} to the shear stress. This means that colloidal forces have more effects on the normal stress than on the shear stress. This could explain the difference between the shear rates $\dot{\gamma} \approx 30 \text{ s}^{-1}$ and $\dot{\gamma} \approx 10 \text{ s}^{-1}$ corresponding to the onset of the linear rheological behaviour of the normal and shear stresses, respectively.

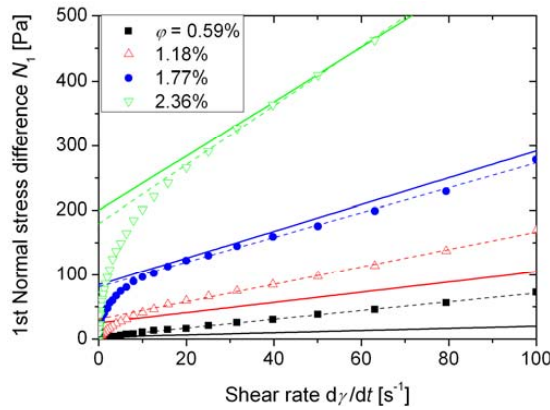


Figure 3. (Colour online) Experimental and theoretical shear rate dependencies of the first normal stress difference for the CNT suspensions at different particle volume fractions ϕ . The symbols correspond to experimental data of Natale et al. (2014), the dashed lines to the linear fit of the experimental data in the shear rate range $30 \leq \dot{\gamma} \leq 100 \text{ s}^{-1}$, the solid lines correspond to the theory (19.2). The suspension volume fraction ϕ is given in the figure legend.

The experimental curves were fitted by equation (19.2) of our model with the free parameters k , μF and C . The fit was performed over the linear segment of the N_1 versus $\dot{\gamma}$ dependency since our model ignores particle aggregation that, as explained before, is likely responsible for the rounded shape of the experimental curves at low shear rate. The values of the first two parameters were taken to be the same as for the fitting of the flow curves: $k=25$ and $\mu F = 7.5 \times 10^{-13} \text{ N}$. Thus, the fit was performed using the remaining free parameter – the dimensionless constant C appearing in equation (13) for the rotary diffusivity. The best fit corresponds to the value $C = 3.7 \cdot 10^{-5}$. Strictly speaking the weak diffusion limit is hardly satisfied: at the highest volume fraction, we get $C\phi r_e^3 \approx 0.6$ instead of $C\phi r_e^3 \ll 1$ assumed in the model. However, numerical resolution of the Fokker-Planck equation shows that the approximation $C\phi r_e^3 \ll 1$ still gives reasonable estimates of the moments $\langle \mathbf{PPPP} \rangle$ up to $C\phi r_e^3 \sim 1$. For more quantitative comparison with experiments, we performed a linear fit of the experimental data in the shear rate range $30 \leq \dot{\gamma} \leq 100 \text{ s}^{-1}$, individually for each particle concentration (cf. dashed lines in figure 3). As is seen from figure 3, the model seems to

correctly predict the apparent normal yield stress N_Y (ordinate at the origin) but gives poorer predictions for the slopes of N_1 versus $\dot{\gamma}$ dependencies.

3.3. Apparent yield stress

In order to better analyze the apparent yield stress predicted by our model, the concentration dependencies of both shear and normal yield stresses are plotted in figure 4. The experimental points are obtained as the ordinates at the origin of the lines corresponding to individual linear fit of each experimental curve $\sigma(\dot{\gamma})$ or $N_1(\dot{\gamma})$ (dashed lines in figures 2 and 3). The theoretical concentration dependencies $\sigma_Y(\phi)$ and $N_1(\phi)$ are calculated using equation (21). Figure 4 shows a relatively good correspondence between experiments of Natale et al. (2004) and our model. Therefore, we may conclude that our model is able to capture the concentration effect on the apparent yield stress of the CNT suspension: according to equation (21), the shear yield stress is proportional to the concentration squared, $\sigma_Y \propto \phi^2$, while the normal yield stress – to the third power of the concentration, $N_Y \propto \phi^3$. From the theoretical point of view, $\sigma_Y \propto \phi^2$ behaviour comes from the pair-wise interactions between fibres, and $N_Y \propto \phi^3$ behaviour is the result of the combination of pair interactions (giving ϕ^2 -contribution to the stress) and rotational diffusivity linear in ϕ (cf. equation (13)).

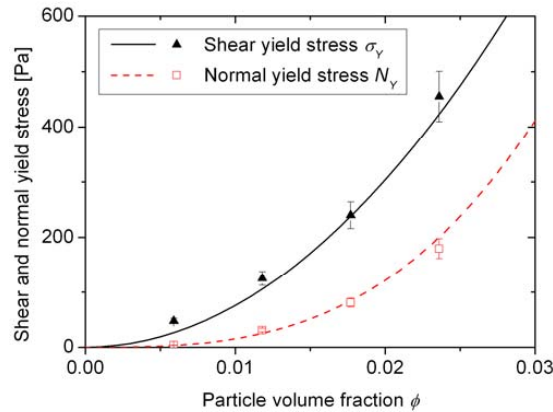


Figure 4. (Colour online) Experimental and theoretical dependencies of the shear and normal apparent yield stresses on particle volume fraction. Symbols correspond to the experiments of Natale et al. (2014) and solid lines to the theory

In experiments of Natale et al. (2014) the shear stress seems to be insignificant at zero shear rate (cf. figure 2), so, the suspension does not exhibit any real shear yield stress. Thus, until now we analyzed the apparent yield stress obtained as an intercept of the linear extrapolation of the experimental flow curves onto zero shear rate. However, some other authors report the real yield behaviour of CNT/epoxy suspensions, corresponding to the onset of the flow (Rahatekar et al. (2009); Hobbie (2010)). This real yield stress likely appears as a result of stronger colloidal interactions than those between CNTs used in Natale's experiments. Both types of CNT have quite different diameter and aspect ratio ($D=16$ and

$r=160$, in Natale's experiments and $D=50\text{nm}$ and $r=1200$ and 80 in Rahatekar's experiments) and, as a consequence, quite different stress levels. Therefore, to compare the three sets of experimental data with our theory, it is convenient to introduce a dimensionless shear yield stress, $\sigma_y D^2 / (\mu F)$, normalized by a characteristic "interaction" stress $\mu F / D^2$. Our model (21.1) predicts that the dimensionless yields stress scales as $\sigma_y D^2 / (\mu F) = 16\phi^2 r / \pi^2 \propto \phi^2 r$. To check whether this tendency holds for the three sets of experimental data, we plot in figure 5 the experimental and theoretical dependencies of the dimensionless yield stress on the factor $\phi^2 r$.

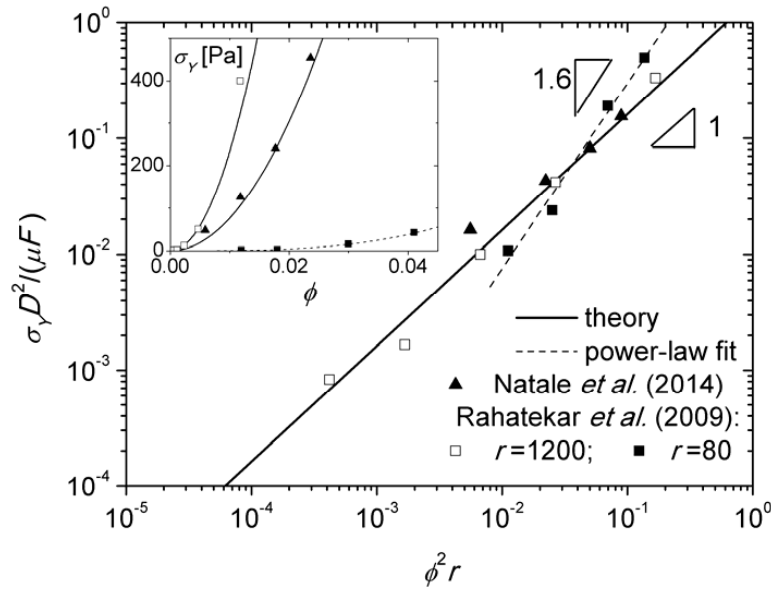


Figure 5. Dimensionless apparent yield stress as function of $\phi^2 r$. The inset shows the dependency of the dimensional yield stress on particle concentration for the three sets of experimental data (symbols). The solid lines represent theoretical fits to the experimental data of Natale et al. (2014) and Rahatekar et al. (2009), while the dashed line is a power law fit to the data of Rahatekar et al. (2009) for CNT aspect ratio $r=80$.

The experimental values of the dimensionless yield stress have been obtained by fitting the experimental curves to the theoretical ones using the product μF as single adjustable parameter. The best fit corresponds to the values $\mu F=3 \cdot 10^{-12}$ N and $2.1 \cdot 10^{-13}$ N for $r=1200$ and 80 in Rahatekar's experiments, while $\mu F=7.5 \cdot 10^{-13}$ N for Natale's data with $r=160$ (the same value has been used above for the fit of the Natale's data shown in Figs. 2-4). The inset of Fig.5 shows a concentration dependency of the dimensional yield stress. As inferred from this figure, the experimental data for the highest aspect ratios $r=160$ and 1200 respect the $\phi^2 r$ behaviour predicted by our model for the dimensionless yield stress. The concentration dependency of the dimensional yield stress is also correctly predicted for these two data. For shorter particles, $r=80$, used in Rahatekar's experiments, a stronger concentration behaviour is observed. More precisely, the dimensional yield stress is best fitted by a power law trend with an exponent 3.2 ($\sigma_y \propto \phi^{3.2}$, dashed line in the inset of Fig. 5). This gives the exponent 1.6 of the dimensionless yield stress versus $\phi^2 r$ (i.e. $\sigma_y D^2 / (\mu F) \propto (\phi^2 r)^{1.6}$, dashed line in Fig.5).

This discrepancy with our theory is likely connected to strong aggregation (ignored in the model) of the CNTs with $r=80$, while, at $r=1200$, the suspension is much less aggregated, as revealed by optical microscopy imaging reported by Rahatekar et al. (2009).

The value of the product μF found by the fit of the theoretical model to experimental results allows estimation of the average separation h between particle surfaces at the contact points. The electrostatic repulsion between untreated CNTs, used in Natale's and Rahatekar's experiments, is expected to be negligible and the value of h is retrieved from (4.3) with a zero second term in the right hand side, namely: $h = (A \cdot D / 12F)^{1/2}$. Thus, using a value $\mu=0.3$ for the friction coefficient [Petrich & Koch (1998)] and $A \sim 10^{-20}$ J for the Hamaker constant [see Appendix B], we obtain the value $h \approx 2.3$ nm for $r=160$ and $D=16$ nm (Natale's data) and $h \approx 2.0$ nm for $r=1200$ and $D=50$ nm (Rahatekar's data). These values seem to be realistic and satisfy the limit of validity $h \ll D$ of assumptions (4) and (5) of §2.1.

It is also worth noticing that in the general case of 3D shear or extensional flows, our model predicts an anisotropic yield stress, as follows (see the last term of (18)):

$$\sigma_{ik}^y = \frac{8}{3\pi^2} \phi^2 \frac{\mu F}{D^2} r \frac{\langle p_i p_k p_l p_m \rangle}{\langle \hat{u} \rangle} \hat{\gamma}_{lm} \quad (22.1)$$

$$\langle \hat{u} \rangle = \frac{\langle |\mathbf{u}| \rangle}{L \dot{\gamma}} = \frac{1}{L^3 \dot{\gamma}} \int_{\mathbf{p}^\alpha} \psi_\alpha d\mathbf{p}^\alpha \int_{\mathbf{p}^\beta} \psi_\beta d\mathbf{p}^\beta \int_{-L/2}^{L/2} \int_{-L/2}^{L/2} |\mathbf{u}| ds_\alpha ds_\beta \quad (22.2)$$

where $\hat{\gamma}_{lm} = \gamma_{lm} / \dot{\gamma}$. In the particular case of simple shear flow in low diffusion limit, considered in the present paper, the equation (22.2) for $\langle \hat{u} \rangle$ reduces to equation (17.2). Our expression (22.1) for the yield stress tensor differs from the one derived recently by Férec et al. (2015):

$$\sigma_{ik}^y = \frac{8}{\pi^2} \phi^2 k \frac{K}{D} r \left\langle \frac{p_i p_k p_l p_m \sin \delta}{\hat{u}} \right\rangle \hat{\gamma}_{lm} \quad (23.1)$$

$$\hat{u} = |p_n p_s \hat{\gamma}_{ns}| \quad (23.2)$$

where K is the consistency measured in N/m, k is the dimensionless interaction parameter describing the intensity of inter-fibre forces and $\sin \delta = |\mathbf{p}^\alpha \times \mathbf{p}^\beta|$ (cf. figure 1). The last expression has been derived by setting to zero the value of the power-law index κ in the phenomenological expression $\mathbf{F} \propto |\mathbf{u}|^{\kappa-1} \mathbf{u}$ for the interaction force between fibres. The physical meaning of the consistency K has not been clarified. In contrast to the phenomenological approach adopted in this previous model, the present model introduces realistic physical interactions between fibres (colloidal, solid friction and lubrication forces) and predicts the yield stress tensor in terms of the friction force. Comparing equations (22.1) and (23) allows us to identify the scaling of the consistency in the model of Férec et al. (2015) in terms of measurable physical quantities: $K = O(\mu F / D)$. Another difference consists in the

fact that the orientation tensor in (23) contains the Onsager potential $\sin \delta = |\mathbf{p}^\alpha \times \mathbf{p}^\beta|$ since, in the model of Férec et al. (2015), the interaction force is not supposed to be inversely proportional to $|\mathbf{p}^\alpha \times \mathbf{p}^\beta|$, like in the present theory (cf. discussion below equation (18)). Finally, the two models use different assumptions for the estimation of the absolute value $|\mathbf{u}|$ of the relative velocity of the fibres (cf. equations 17 and 22.2 for the present model and (23.2) for the model of Férec et al. (2015)). Notice that both models produce the same concentration behaviour of the yield stress, $\sigma_\gamma \propto \phi^2$, coming for pair-wise interactions.

In what concerns the aspect ratio effect, recall that the current model is developed for the high aspect ratio limit $r \gg 1$ predicting the shear yield stress proportional to r . The model is unable to provide quantitative predictions for lower aspect ratios, say $r < 10$. However, qualitatively, the mean number of contact points per particle (coordination number) is much higher for long fibres than for spheres, at the same particle volume fraction. Therefore, at particle concentrations, as low as $\phi = 0.02$, the effect of van der Waals forces is expected to be much lower for spherical particle suspensions than for long fibre suspensions.

4. Concluding remarks

This work is focused on the modelling of the shear and normal stresses in fibre suspensions that are subjected to a simple shear flow in the presence of short-range lubrication and overall attractive colloidal forces between fibres. The static friction force between fibres is also taken into account and supposed to be proportional to the attractive resultant colloidal force. The model is applied to the experimental data of Natale et al. (2014) and Rahatekar et al. (2009) on the suspensions of CNT dispersed in a Newtonian epoxy resin, however, it can also be used for other rod-like particle suspensions with attractive interactions.

The contact lubrication and solid friction forces are estimated in simple Cartesian reference frame and result in objective orientation and stress tensors. Following the approach of Djalili-Moghaddm & Toll (1995) and Férec et al. (2009), these forces are averaged over the contact probability. The mean force exerted by neighbouring fibres to a test fibre appears to be zero and results in an affine translational motion. Furthermore, the deterministic angular motion of fibres is also unaffected by the short-range forces in agreement with Djalili-Moghaddm & Toll (1995), as opposed to the work of Férec et al. (2009) who have used the co-rotational frame. These conclusions apply only under assumption of perfect sliding contacts in all contact points. The presence of sticky contacts should promote formation of fibre network (Switzer and Klingenberg (2004)). As a consequence, this could break the affinity of the translational motion and affect the rotational motion. Such an aggregation scenario is ignored in the present model.

The short-ranged interactions could in principle influence the rotary diffusivity of fibres and affect their stochastic rotational motion. However, in the weak diffusion $D_r r_e^3 / \dot{\gamma} \ll 1$ and high aspect ratio $r \gg 1$ limits employed in the present work, the rotary

diffusivity does not intervene into the component $\langle p_1^2 p_2^2 \rangle$ of the orientation tensor appearing in the shear stress but does into the goniometric factor $\langle p_1^3 p_2 \rangle - \langle p_1 p_2^3 \rangle$ appearing in the first normal stress difference. The effect of the colloidal interactions on the rotary diffusivity was neglected. The combined effect of the long and short-ranged hydrodynamic interactions was taken into account in a phenomenological way, assuming $D_r \propto \phi \dot{\gamma}$. In this way, the factor $\langle p_1^3 p_2 \rangle - \langle p_1 p_2^3 \rangle$ appeared to be independent of shear rate and proportional to the particle concentration.

The particle stress was shown to be the sum of two contributions as follows: (a) the stress coming from hydrodynamic interaction between the fibres and the suspending liquid (with the rheological coefficients borrowed from the slender body theory in the dilute limit); (b) the stress coming from solid friction between fibres and proportional to the resultant attractive colloidal force. In the considered experimental conditions (Natale et al. (2014)), the lubrication force does not seem to provide any direct contribution to the particle stress but may influence the rotary diffusivity of the fibres. Our model predicts a simple Bingham law for both the shear stress and the first normal stress difference with the apparent shear and normal yield stresses proportional to ϕ^2 and ϕ^3 , respectively. The $\sigma_y \propto \phi^2$ trend is explained by pair colloidal interactions between fibres. The behaviour $N_1 \propto \phi^2 (\langle p_1^3 p_2 \rangle - \langle p_1 p_2^3 \rangle) \propto \phi^3$ stands for the synergy between the attractive colloidal forces (responsible for the ϕ^2 contribution) and hydrodynamic interactions, implicitly included to the rotary diffusivity and giving $\langle p_1^3 p_2 \rangle - \langle p_1 p_2^3 \rangle \propto \phi$. The second normal stress difference is negligible with respect to the first normal stress difference in the same way as in non-Brownian suspensions where fibres interact only through hydrodynamic forces (Larson (1999)).

The experiments on CNT suspensions also reveal apparent Bingham behaviour. The model captures well the quadratic concentration behaviour of the yield stress for long CNT particles used in Rahatekar et al. (2009) experiments ($r=1200$) and Natale et al. (2014) experiments ($r=160$), but fails to predict the $\phi^{3.2}$ trend for shorter CNTs, $r=80$, used by Rahatekar, likely because of strong aggregation observed for those particles. The flow curves in Natale's experiments have a rounded shape at low shear rates, while our model predicts a linear shape with a pronounced yield stress. Such a discrepancy is tentatively explained by aggregation at low shear rates ignored by the present model. Besides all the simplifications, the model fits reasonably well to experimental σ_{12} versus $\dot{\gamma}$ and N_1 versus $\dot{\gamma}$ dependencies at high shear rates ($\dot{\gamma} > 10 \text{ s}^{-1}$ for σ_{12} and $\dot{\gamma} > 30 \text{ s}^{-1}$ for N_1). This is a positive argument for the validity of our non-aggregation approach. In future, we plan to construct a more realistic model taking into account both an imperfect sliding and particle aggregation. This future model should allow us to capture the rounded shape of the flow curves at low shear rates. It would combine the features of the present microscopic approach (allowing a rather rigorous determination of the contact forces) with macroscopic aggregation-orientation models proposed by Ma et al. (2008) and Abisset-Chavanne et al. (2015).

Acknowledgements

The authors are grateful to Prof. P.J. Carreau, Prof. M.C. Heuzey and Dr. G. Natale of Polytechnique Montréal for providing the experimental data. They also would like to acknowledge Région Provence – Alpes Côte d’Azur which funded one of them. This work was also supported by the Program of the Ministry of Education of the Russian Federation (project No. 3.12.2014/K).

Appendix A. Demonstration of equation (14) for the stress tensor

The particle stress averaged over the contact probability but not yet averaged over the fibre orientation reads (Landau & Lifshitz (1987), Pokrovskiy (1978)):

$$\begin{aligned}
 \langle \sigma_{ik}^p \rangle_S &= n \oint_{S_{particle}} \sigma_{il} n_l x_k dS = n \underbrace{\oint_{S_{particle}} \sigma_{il}^{long} n_l x_k dS}_{\text{contribution from long-ranged hydrodynamic forces}} + n \underbrace{\oint_{S_{particle}} \sigma_{il}^{stoch} n_l x_k dS}_{\text{contribution from stochastic torque (rotary diffusion)}} + n \underbrace{\oint_{S_{particle}} \sigma_{il}^{short} n_l x_k dS}_{\text{contribution from short-ranged forces}} = \\
 &= n V_f \eta_0 \left\{ 4\gamma_{ik} + \frac{\beta f^{\parallel}}{2} \left[\langle p_i p_k p_l p_m \rangle - \frac{1}{3} \delta_{ik} \langle p_l p_m \rangle \right] \gamma_{lm} \right\} - \frac{1}{2} n \left\{ p_i p_l T_{lk}^{hydro} + p_k p_l T_{li}^{hydro} \right\} + \frac{1}{2} n T_{ik}^{hydro} + \\
 &\quad \underbrace{\left[3 \langle p_i p_k \rangle - \delta_{ik} \right]}_{\text{contribution from long-ranged hydrodynamic forces}} \quad (A1) \\
 &+ n V_f \beta f^{\perp} \eta_0 D_r \left[3 \langle p_i p_k \rangle - \delta_{ik} \right] + n p_k \underbrace{\int s_{\alpha} F_i dP}_{\varphi_i} = \\
 &\quad \underbrace{\left[3 \langle p_i p_k \rangle - \delta_{ik} \right]}_{\text{contribution from rotary diffusion}} + \underbrace{\int s_{\alpha} F_i dP}_{\varphi_i} \\
 &\quad \underbrace{\left[3 \langle p_i p_k \rangle - \delta_{ik} \right]}_{\text{contribution from short-ranged forces}} \\
 &= \sigma_{ik}^p{}_0 - \frac{1}{2} n \left\{ p_i p_l T_{lk}^{hydro} + p_k p_l T_{li}^{hydro} \right\} + \frac{1}{2} n T_{ik}^{hydro} + \frac{1}{2} n (\varphi_i p_k + \varphi_k p_i) + \frac{1}{2} n (\varphi_i p_k - \varphi_k p_i)
 \end{aligned}$$

$$\sigma_{ik}^p{}_0 = n V_f \eta_0 \left\{ 4\gamma_{ik} + \frac{\beta f^{\parallel}}{2} \left[p_i p_k p_l p_m - \frac{1}{3} \delta_{ik} p_l p_m \right] \gamma_{lm} \right\} + n V_f \beta f^{\perp} \eta_0 D_r [3 p_i p_k - \delta_{ik}] \quad (A2)$$

where T_{ik}^{hydro} is the “ ik ”-component of the tensor of the hydrodynamic torque acting on fibres, $\sigma_{ik}^p{}_0$ is the stress generated by a test fibre at zero hydrodynamic torque in the absence of the short-ranged forces; $\varphi_i = \int s_{\alpha} F_i dP$; and other terms are explained below equation (14). The torque balance on a given fibre reads:

$$T_{ik}^{hydro} + (\varphi_i p_k - \varphi_k p_i) = 0 \quad (A3)$$

Using this expression, we can show that

$$\frac{1}{2} n \left\{ p_i p_l T_{lk}^{hydro} + p_k p_l T_{li}^{hydro} \right\} = \frac{1}{2} n (\varphi_i p_k + \varphi_k p_i) - n p_i p_k p_l \varphi_l \quad (A4)$$

Substituting (A3), (A4) into (A1) gives:

$$\langle \sigma_{ik}^p \rangle_S = \sigma_{ik}^p{}_0 + n p_i p_k p_l \varphi_l \quad (A5)$$

The second term here stands for the longitudinal stress generated by short-ranged forces on the fibres and is given by (A2). Substituting (A2) into (A5), averaging over all possible fibre orientations and adding the solvent contribution we arrive at the final expression (14) for the stress tensor in the suspension.

Appendix B. Estimation of the Hamaker constant

The Hamaker constant for CNT/epoxy composites can be estimated using simplified Lifshitz theory applied to the case of non-retarded van der Waals interaction and completely screened electrostatic interaction [Russel et al. (1989)]:

$$A \approx \frac{3\hbar\omega_{UV}}{16\sqrt{2}} \frac{(n_f^2 - n_s^2)^2}{(n_f^2 + n_s^2)^{3/2}} \quad (\text{A-1})$$

where $\hbar = 1.055 \cdot 10^{-34}$ J·s is the Planck constant, $\omega_{UV} \approx 7.2 \cdot 10^{15}$ rad/s – frequency of dominant relaxation of CNT in ultraviolet region, $n_f \approx 2.15$ and $n_s \approx 1.57$ - refractive indexes of CNT particles and epoxy matrix, respectively [Khalkhal et al. (2011)]. Estimations give a value $A \sim 10^{-20}$ J.

REFERENCES

- Abisset-Chavanne, E., Chinesta, F., Ferec, J., Ausias, G., & Keunings, R. 2015 On the multiscale description of dilute suspensions of non-Brownian rigid clusters composed of rods. *J. NonNewt Fluid. Mech.* **222**, 34-44
- Abisset-Chavanne, E., Mezher, R., Le Corre, S., Ammar, A., & Chinesta, F. 2013 Kinetic theory microstructure modelling in concentrated suspensions, *Entropy*, **15**, 2805-2832.
- Allaoui A., Bai S., Cheng H.M., & Bai J.B. 2002 Mechanical and electrical properties of a MWNT/epoxy composite, *Compos. Sci. Technol.* **62**, 1993-1998
- Barnes H.A. 1999 The yield stress—a review or 'παντα ρει'—everything flows? *J. NonNewt. Fluid Mech.* **81**, 133-178
- Batchelor, G. K. 1970 Slender-body theory for particles of arbitrary cross-section in Stokes flow. *J. Fluid Mech*, **44**, 419-440.
- Bennington, C. P. J., Kerekes R. J. & Grace J. R. 1990 The yield stress of fibre suspensions. *Canad. J. Chem. Eng.*, **68**, 748-757.
- Bergström, L. 1998 Shear thinning and shear thickening of concentrated ceramic suspensions. *Colloids and Surfaces A* **133**, 151-155.
- Brenner H. 1974 Rheology of a dilute suspension of axisymmetric Brownian particles, *Int. J. Multiphase Flow* **1**, 195-341
- Brenner S.L. & Parsegian V.A. 1974 “A physical method for deriving the electrostatic interaction between rod-like polyions at all mutual angles”, *Biophys J.* **14**, 327-334
- Chaouche, M., & Koch, D. L. 2001 Rheology of non-Brownian rigid fibre suspensions with adhesive contacts. *J. Rheol.* **45**, 369-382.
- Christensen, R. M. 1991 *Mechanics of Composite Materials*. Krieger Publishing Company, Malabar.
- Cui, H., & Grace, J. R. 2007 Flow of pulp fibre suspension and slurries: A review. *Int. J.*

- Multiphase Flow, **33**, 921-934.
- Djalili-Moghaddam, M. & Toll S. 2005 A model for short-range interactions in fibre suspensions. *J. NonNewt. Fluid. Mech.* **132**, 73-83.
- Doi, M., & Edwards S. F. 1986 *The Theory of Polymer Dynamics*. Oxford University Press, New York.
- Fan, Z. & Advani, S. G. 2007 Rheology of multiwall carbon nanotube suspensions, *J. Rheol.* **51**, 585-604.
- Férec, J., Ausias, G., Heuzey, M. C., & Carreau, P. J. 2009 Modelling fibre interactions in semiconcentrated fibre suspensions. *J. Rheol.* **53**, 49-72.
- Férec, J., & Ausias G. 2015 Rheological modelling of non-dilute rod suspensions, in *Rheology of non-spherical particle suspensions* (ed. F. Chinesta & G. Ausias) pp. 77-118. Elsevier, Oxford.
- Férec J., Perrot A. & Ausias G. 2015 Toward modelling anisotropic yield stress and consistency induced by fibre in fibre-reinforced viscoplastic fluids, *J. NonNewt. Fluid Mech.* **220**, 69-76.
- Folgar, F., & Tucker C. L. 1984 Orientation behaviour of fibres in concentrated suspensions *J.Reinf. Plast. Compos.* **3**, 98-119
- Grossberg A. Yu., & Khokhlov A.R. 1981 Statistical theory of polymeric lyotropic liquid crystals. *Adv. Polymer. Sci.* **41**, 53-97
- Hinch, E. J., & Leal, L. G. 1972 The effect of Brownian motion on the rheological properties of a suspension of non-spherical particles, *J. Fluid. Mech.* **52**, 683-712.
- Hobbie E.K., 2010 Shear rheology of carbon nanotube suspensions, *Rheol. Acta* **49**, 323-334
- Jeffery, G. B. 1922 The motion of ellipsoidal particles immersed in a viscous fluid. *Proc. Royal Soc. London A* **102**, 161-179.
- Khalkhal, F., Carreau, P. J., & Ausias, G. 2011 Effect of flow history on linear viscoelastic properties and the evolution of the structure of multiwalled carbon nanotube suspensions in an epoxy. *J. Rheol.* **55**, 153-175.
- Landau, L. D. & Lifshitz, E. M., 1987 *Course of Theoretical Physics, Vol. 6: Fluid Mechanics* 2nd Edition, Pergamon Press.
- Larson R. G., 1998 *The Structure and Rheology of Complex Fluids*. Oxford University Press.
- Leal, L. G. & Hinch, E. J. 1971 The effect of weak Brownian rotations on particles in shear flow. *J. Fluid. Mech.* **46**, 685-703.
- Ma, W. K. A., Chinesta, F., Ammar, A., & Mackley, M. R. 2008 Rheological modelling of carbon nanotube aggregate suspensions, *J. Rheol.* **52**, 1311-1330.
- Michot, L. J., Baravian, C., Bihannic, I., Maddi, S., Moyne, C., Duval, J. F., Levitz P., & Davidson, P. 2008 Sol- Gel and Isotropic/Nematic Transitions in Aqueous Suspensions of Natural Nontronite Clay. Influence of Particle Anisotropy. 2. Gel Structure and Mechanical Properties. *Langmuir* **25**, 127-139.
- Mongruel, A., & Cloitre, M. 1999 Shear viscosity of suspensions of aligned non-Brownian fibres". *Rheol. Acta* **38**, 451-457.
- Mueller, S., Llewellyn, E. W., & Mader, H. M. 2010. The rheology of suspensions of solid particles. *Proc. Royal Soc. A* **466**, 1201-1228.
- Natale G., Heuzey M. C., Carreau P. J., Ausias G. & Férec J. 2014 Rheological Modelling of Carbon Nanotube Suspensions with Rod-Rod Interactions. *AIChE J.* **60**, 1476-1487

- Natale G., Reddy N. K., Ausias G., Férec J., Heuzey M. C. & Carreau P. J. 2015 Rheo-optical response of carbon nanotube suspensions *J. Rheol.* **59**, 499-524.
- Petrich, M. P., & Koch, D. L. 1998 Interactions between contacting fibres, *Phys. Fluids* **10**, 2111-2113.
- Petrie, C. J. 1999 The rheology of fibre suspensions. *J. NonNewt. Fluid. Mech.* **87**, 369-402
- Pokrovskiy V.N., 1978 *Statistical mechanics of diluted suspensions*, Nauka, Moscow (in Russian).
- Rahatekar, S. S., Koziol, K. K. K., Butler, S. A., Elliott, J. A., Shaffer, M. S. P., Mackley, M. R., & Windle, A. H. 2006 Optical microstructure and viscosity enhancement for an epoxy resin matrix containing multiwall carbon nanotubes. *J. Rheol.* **50**, 599-610.
- Rahatekar S.S., Koziol K.K., Kline S.R., Hobbie E.K., Gilman J.W. & Windle A.H. 2009, Length-dependent mechanics of carbon-nanotube networks. *Adv. Mater.* **21**, 874-878.
- Russell, W. B., Saville D. A., & Schowalter W. R. 1989 “*Colloidal dispersions*” (Cambridge University Press, Cambridge)
- Saarinen, T., Haavisto, S, Sorvari, A., Salmela, J., & Seppälä J. 2014 “The effect of wall depletion on the rheology of microfibrillated cellulose water suspensions by optical coherence tomography”, *Cellulose* **21**, 1261-1275.
- Schmid C. F. & Klingenberg, D. J. 2000 Mechanical flocculation in flowing fiber suspensions, *Phys. Rev. Lett.* **84**, 290.
- Servais, C., Månson, J. A. E., & Toll, S. 1999 Fibre–fibre interaction in concentrated suspensions: Disperse fibres”. *J. Rheol.* **43**, 991-1004.
- Solomon, M. J., & Boger, D. V. 1998 The rheology of aqueous dispersions of spindle-type colloidal hematite rods, *J. Rheol.* **42**, 929-949.
- Song, Y. S., & Youn, J. R. 2005 Influence of dispersion states of carbon nanotubes on physical properties of epoxy nanocomposites. *Carbon* **43**, 1378-1385.
- Switzer, L. H., & Klingenberg, D. J. 2004 Flocculation in simulations of sheared fibre suspensions. *Int. J. Multiphase Flow* **30**, 67-87.
- Toll, S., & Månson, J. A. E. 1994 Dynamics of a planar concentrated fibre suspension with non-hydrodynamic interaction, *J. Rheol.* **38**, 985-997.
- Van der Schoot, P., & Odijk, T. 1992 Statistical theory and structure factor of a semidilute solution of rodlike macromolecules interacting by van der Waals forces. *J. Chem. Phys.*, **97**, 515-524.
- Wierenga, A., Philipse, A. P., Lekkerkerker, H. N., & Boger, D. V. 1998 Aqueous dispersions of colloidal boehmite: Structure, dynamics, and yield stress of rod gels. *Langmuir* **14**, 55-65
- Wolf, B., White, D., Melrose, J. R., & Frith, W. J. 2007 On the behaviour of gelled fibre suspensions in steady shear. *Rheol. Acta* **46**, 531-537.
- Yamane Y., Kaneda Y. & Doi M. 1994 Numerical simulations of semi-dilute suspensions of rodlike particles in shear flow. *J. NonNewt. Fluid. Mech.* **54**, 405-421

Shear-thinning in concentrated fiber suspensions:**Aggregation induced by adhesive interactions**

S. Bounoua¹, E. Lemaire¹, J. Férec², G. Ausias², and P.Kuzhir^{1*}

¹University of Nice-Sophia Antipolis, CNRS UMR7336, Laboratory of Condensed Matter Physics, Parc Valrose, Nice 06100 France

²Institut de recherche Dupuy de Lôme (IRDL), University of Bretagne-Sud, EA 4250, LIMATB, F-56100 Lorient, France

Synopsis

This work is focused on shear thinning behavior of suspensions of rigid non-Brownian fibers dispersed in a Newtonian liquid. The work consists in developing a new theoretical model and conducting accurate experimental measurements. The shear thinning is expected to be caused by adhesive interactions between fibers. Experiments on polyamide (PA) fibers (present work) and carbon nanotube (CNT) suspensions [Khalkhal *et al.*, *J. Rheol.* **55**, 153-175 (2001)] have revealed the following features: (a) the flow curves possess initial rounded-shaped segments interpreted in terms of the progressive aggregate destruction at the increasing shear rate; (b) the enhancement of the shear thinning with an increasing particle volume fraction is observed and explained by an increase of the strength of effective interactions between particles, as their concentration increases; (c) a weak yield stress of the PA fiber suspensions is detected in a controlled-stress mode and explained by the liquid-solid transition as the concentration of aggregates (constituted by fibers) approaches the close packing limit; (d) the shear thinning is much stronger in CNT suspensions because the adhesive interactions play a more important role between nano-sized CNT particles than between micron-sized PA fibers. A theoretical model considering the coexistence of transient aggregates with free non-aggregated fibers has been developed. The model allows viscosity calculations in terms of the aggregation parameter – the ratio of adhesive to hydrodynamic forces. It captures qualitatively the above-mentioned shear thinning behaviors and fits reasonably well to the experimental data on both PA fiber and CNT suspensions.

I. Introduction

Fiber-reinforced composites are broadly used in civil engineering, automobile and aerospace industries. Fabrication of these materials is often related to extrusion or mixing of fibers dispersed in a liquid matrix [1]. The composites are usually charged with a large amount of particles. Therefore, their successful fabrication and processing require a deep understanding of rheology of concentrated fiber suspensions.

Since the pioneering work of Jeffery [2], the rheology of dilute and semi-dilute fiber suspensions has been well understood and documented, see reviews by Larson [3], Petrie [4].

* Corresponding author : kuzhir@unice.fr

In concentrated suspensions, short-range interparticle interactions play an important, if not decisive, role. The effect of short-range hydrodynamic forces and of direct mechanical contacts has been understood through theoretical modeling [5,6] and direct numerical simulations [7–9]. In suspensions of fibers dispersed in a Newtonian solvent and interacting with each other through lubrication forces, direct collisions and Coulombic friction, all these interactions produce a single scaling for the stress, $\sigma \sim \eta_0 \dot{\gamma}$, with η_0 being the solvent viscosity and $\dot{\gamma}$ – a characteristic value of the rate-of-strain tensor (shear rate in the case of a simple shear flow). These suspensions exhibit a viscous behavior with the shear viscosity linear in particle volume fraction φ at low concentrations and nearly quadratic with φ at higher volume fractions [7,8]. The last trend is explained in terms of pair-wise interactions between fibers. Non-hydrodynamic interactions, such as adhesive or electrostatic repulsive forces between fibers, as well as elastic bending of flexible fibers produce non-linear scaling of the shear stress with the shear rate.

From a general perspective, the role of the non-hydrodynamic interactions becomes less important with increasing shear rate. In most cases, this results in a shear thinning behavior. The degree of shear thinning strongly depends on the types of interactions between particles, as well as on fiber flexibility, as discussed below:

1. In purely repulsive systems, the electric double layer may substantially increase the effective particle size and lead to gelation transition and consequently to a yield stress at particle volume fractions well below conventional dense packing fraction [10]. Electrostatic repulsion has recently been found to be at the origin of a yield stress in nanofiber suspensions [11].
2. Excluded volume interactions between rigid or semi-flexible fibers could also lead to gelation of the nanofiber suspension [12].
3. In attractive systems with colloidal nanoparticles, the interplay between the electrostatic repulsion and the van der Waals attraction governs the degree of particle flocculation and yielding behavior [13-15]. At the same time, adhesive interactions produce a moderate shear thinning in suspensions of rigid micron-sized rod-like particles, such as polyamide [16, 17], ceramic particles [18], wollastonite [19].
4. Elastic bending of flexible micron-sized or nano-sized fibers is another mechanism inducing both shear thinning or yield behaviors observed in pulp suspensions [20, 21], carbon nanotube (CNT) composites [22, 23], solutions of agar fibers [24]. The yield stress in flexible fiber suspensions comes from the formation of an entangled network whose strength depends mostly on inter-particle solid friction and, to a lesser extent, on the colloidal forces between them, as revealed by particle level simulations of Klingenberg and co-workers [25, 26]. Theoretical models by Toll and Månson [27] and Servais *et al.* [28] allow a correct prediction of the yield stress in pulp suspensions, while the model of Keshtkar *et al.* [29] captures the transient viscosity of semi-flexible fiber suspensions.

Surprisingly, theoretical modeling of the rheology of rigid fiber suspensions with colloidal interactions is less documented. One of the first rigorous models considering aggregation of rigid fibers has been developed by Ma *et al.* [30], in the case of Brownian fibers. This model introduces a continuous series of fiber populations with different degrees of aggregation. The model captures well the shear thinning behavior and shows a good agreement with experiments on CNT suspensions. However, the role of the colloidal interactions cannot be well understood. First, the shear-induced destruction of aggregates is taken into account only implicitly by the introduction of phenomenological shear rate dependencies of the aggregation and disaggregation rates. Second, the model introduces distinct rotary diffusivities for each population, and these diffusivities are taken to be independent of shear rate. The shear thinning is thus a synergy of the two following effects: (a) the fiber alignment at increasing Péclet numbers; and (b) disaggregation generated by a progressive decrease of the aggregation rate with increasing shear rate. More recently, a multi-scale model of aggregated fiber suspensions has been proposed by the same research group of Pr. Chinesta [31-33]. This approach considers both the dynamics of the rod-like particles inside the cluster and the dynamics of the whole cluster. The model allows a precise determination of the cluster rotation and deformation in shear flows. At this moment, colloidal interactions between fibers constituting the aggregates are not explicitly introduced, and the rheology of the clustered suspension is not analyzed in details.

Another model allowing capturing the shear thinning in fiber suspensions has been recently developed by Natale *et al.* [34] and Férec *et al.* [35]. This model discards aggregation of particles and considers short-ranged forces between contacting fibers. The authors capture shear thinning behavior introducing a non-linear lubrication force (proportional to $\dot{\gamma}^n$, $0 < n < 1$) between fibers that mimics a combined effect of the short-range hydrodynamic and non-hydrodynamic interactions. This force is weighed by the contact probability and affects both the orientation state (producing more isotropic orientation distribution) and the stress tensor. Such a phenomenological approach provides a good agreement with experiments on CNT suspensions. However, the role of the colloidal interactions remains unclear. In our recent work, we have extended this model to van der Waals interactions and solid friction between fibers [36]. Affine motion of the fibers in shear flow has been supposed. Despite the fact that aggregation was neglected, this model predicts a yielding behavior of the suspension with an apparent yield stress being totally defined by the strength of the van der Waals interaction. The model gives a satisfactory agreement with experiments on CNT suspensions at high shear rates, at which both the shear stress and the first normal stress difference are quasi linear with the shear rate and the extrapolation of the flow curves on zero shear rate gives the apparent yield stress. The model does not capture initial rounded shape of the flow curves. This disagreement comes probably from the aggregation of the suspension at low shear rates discarded in the model.

Since most of experiments show aggregation of fibers under attractive colloidal interactions [30, 37], it is important now to develop an adequate theoretical model of fiber suspensions with aggregation induced by these interactions. To the best of our knowledge,

such aggregation model explicitly accounting for attractive colloidal forces has never been reported in literature for fiber suspensions, even though various cluster models exist for suspensions of spherical particles [3, 38]. Furthermore, the experimental rheological results often depend on the mode of the suspension preparation and on the shear history [39]. Because of relatively large periods of fiber rotation, the steady state of the shear flow is expected to be achieved at a long time usually exceeding the typical duration of standard rheometric measurements. These two factors complicate the comparison between the theory and experiments on steady-state flows. Only accurate experiments ensuring the steady state and independence of shear history could be safely compared to the model.

This allows us to formulate the main objectives of the present work: (a) develop a theoretical model of aggregated fiber suspensions, in which the aggregate behavior and the suspension viscosity would be explicitly expressed through short-ranged adhesive forces between fibers; (b) conduct new rigorous experiments on the steady-state shear flow of non-Brownian fiber suspensions with adhesive interactions and compare these experiments to the theoretical model. The theory proposed in the present work is inspired by the multi-population aggregation model of Vaccaro and Marrucci [40], Ma *et al.* [30], the contact probability approach of Djalili-Moghaddam and Toll [5], Férec *et al.* [6] and a scenario of aggregate rupture under shearing forces developed by Snabre and Mills [41] for aggregated suspensions of spheres. The rheological experiments are made with neutrally buoying polyamide (PA) fibers dispersed in a Newtonian solvent in the range of the shear rates and shear stress when the fibers can be considered as almost perfectly rigid. We test our model on two different experimental systems exhibiting aggregation behavior – PA fibers (the present experiments) and CNT suspensions (experiments of Natale *et al.* [34]).

This paper is organized as follows. The theoretical model is presented in Sec. II. The experimental details are explained in Sec. III. Experimental results are reported and compared to the theoretical model in Sec. IV. Conclusions and perspectives are outlined in Sec. V.

II. Theory

II-A. Basic assumptions and qualitative behavior

Let us consider a steady state simple shear flow of a suspension of fibers dispersed in a Newtonian solvent of a viscosity η_0 . The Cartesian coordinate frame is chosen in such a way that the axes x_1 , x_2 and x_3 correspond to the flow, velocity gradient and vorticity directions, respectively, as depicted in Fig.1a. The flow is considered to be homogeneous on a macroscopic scale, and the volume average velocity is defined by the vector $\mathbf{v} = (\dot{\gamma}x_2, 0, 0)$, where $\dot{\gamma}$ is the shear rate.

5

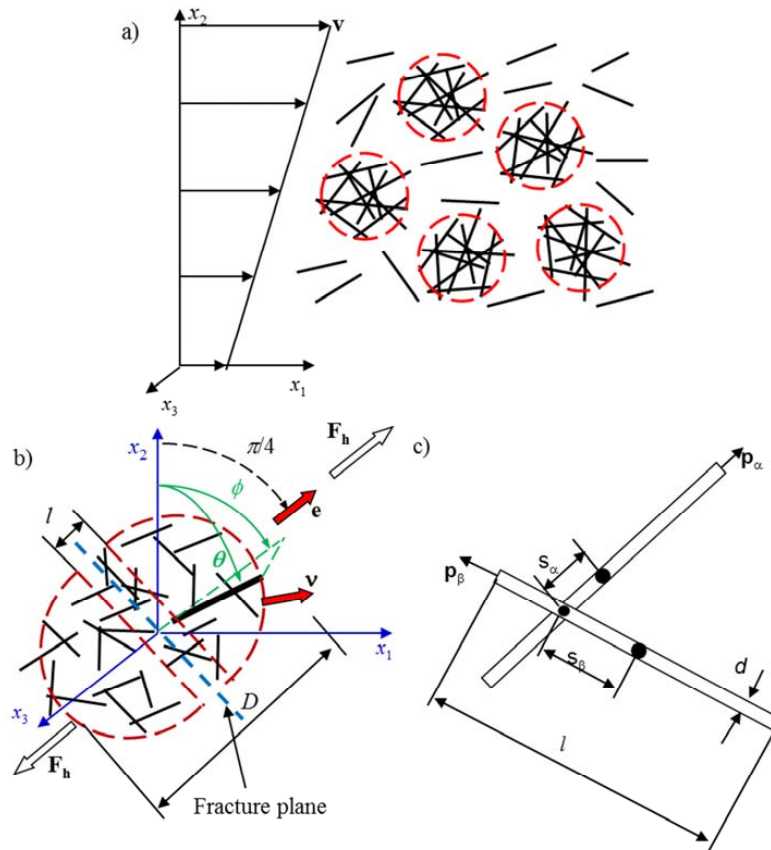


Fig. 1. Problem geometry. The two-population approach is schematically presented in figure (a). According to this approach, the spherical aggregates are dispersed in a suspension (population) of free fibers dispersed in a liquid carrier [cf. assumption (3) of Sec. II-A]. Aggregate rupture in the middle plane is presented in figure (b). Two contacting fibers inside an aggregate are shown in figure (c)

To get the physical insight into the role of adhesive interactions on aggregation and rheology of fiber suspensions, first we present a qualitative picture of the suspension behavior introducing the following simplifications and assumptions:

1. The fibers are considered to be perfectly rigid, non-Brownian and mono-disperse, i.e. all having the same length l , diameter d and aspect ratio $r=l/d$. The high aspect ratio limit $r \gg 1$ is considered. The gravitational settling of fibers is neglected. The validity of these conditions is checked in Sec. B of Supplemental Materials [42] for the PA fibers.

2. The flow is considered to be laminar both on the scale of the whole suspension and on the scale of the aggregates or isolated fibers. This condition is satisfied by low values of the Reynolds number, $Re < 1$, at all the scales of the problem, as shown by estimations in Sec. B of Supplemental Materials [42].

3. The model is developed for attractive colloidal interactions between fibers which induce sticky contacts between them and consequently appearance of aggregates. Based on the structural models of attractive spherical particle suspensions, developed by Quemada and Berli [10], Snabre and Mills [41], we suppose that:

3.1. The aggregates are some transient structures showing a co-operative motion of fibers within them.

3.2. The whole suspension is considered to be a two population system – transient aggregates immersed in a suspension of free fibers filling the space between them, as depicted in Fig. 1a. The fraction of fibers involved into aggregates is denoted by Φ_1 , while the fraction of free fibers is Φ_2 . The particle conservation implies:

$$\Phi_1 + \Phi_2 = 1. \quad (1)$$

3.3. The aggregates are periodically formed by inter-fiber collisions and destroyed by the shear. At steady state, the construction and destruction rates are the same; the fractions Φ_1 and Φ_2 remain constant with time and are defined by a kinetic equation formulated in Sec. II-D.

3.4. For the sake of clarity, we will consider aggregates of spherical shape, while extension of the model to longated shape (prolate ellipsoids of revolution) is developed in Sec. A of Supplemental Materials [42].

3.5. The contribution of aggregates to the suspension viscosity is estimated ignoring filtration flows and relative motion of fibers within the aggregates (rigid aggregate assumption), as if we dealt with a rigid particle suspension of an effective particle volume fraction equal to $\varphi_a = \Phi_1 \varphi / \varphi_i$, with φ - volume fraction of fibers in the whole suspension, φ_i – internal volume fraction of aggregates. Note however, that such viscosity estimation can be subject to some uncertainty because both internal flows and relative motion of fibers may appear during fragmentation of aggregates unless this process is very fast compared to their living time.

3.6. The suspension viscosity is calculated using the Krieger-Daugherty relationship [3], in which the shear viscosity, η_f , of anisotropic free fiber population is used as the viscosity of the suspending medium for aggregates. Perturbation of the orientation state of the free fibers surrounding the aggregates, and its consequence on η_f value are neglected. Studies on the liquid crystalline polymers charged with hard sphere particles show that this approach gives at least a semi-quantitative agreement with experiments for the composite viscosity [43].

3.7. The aggregate behavior (and, as a consequence, the suspension rheology) is governed by the dimensionless ratio of the characteristic adhesive force F_A to the characteristic hydrodynamic force σd^2 (with σ - the applied shear stress):

$$N_A = \frac{F_A}{\sigma d^2}, \quad (2)$$

called hereinafter the aggregation parameter.

4. Two length scales of inter-fiber interactions are considered. The hydrodynamic interactions correspond to a length scale of about a fiber diameter d and to the separation between fibers, $h_R < h_H < d$, where h_R is the surface roughness scale. The adhesive

7

interactions usually have a shorter length scale h_A . The interactions between fibers in aggregates are supposed to be adhesive, while the interactions between free fibers are hydrodynamic. *A posteriori* estimation of both magnitudes h_H and h_A confirms this hypothesis for our PA system [see Section IV-C, Appendix B].

5. Two different scenarios of the break-up of inter-fiber contacts during aggregate fragmentation are considered: (a) rupture in the direction normal to the contact surface; (b) sliding of fibers along each other. In the case (a), friction does not intervene, and the cohesive strength of the aggregate is fully defined by the normal colloidal force F_n . In the case (b), the cohesion strength is defined by tangential friction force F_τ , while the normal colloidal force F_n intervenes into the cohesive strength through a friction law. The cases (a) and (b) will be hereinafter referred to as, respectively, the normal and the tangential rupture scenarios.

6. The classical Amontons-Coulomb friction law is supposed for the tangential rupture:

$$F_\tau = \mu F_n. \quad (3)$$

Here μ is the friction coefficient, whose typical values vary in a relatively narrow range for polymer fibers in different solvents, namely $\mu=0.3-0.5$, as measured experimentally by Bowden and Tabor [44], Petrich and Koch [45]. Note that little is known about friction mechanics at nanoscale, especially in the boundary lubrication regime. However, the simplest Amontons-Coulomb law still allows correct predictions of the friction between single crystal nanoparticles [46], as well as of flows of concentrated colloidal nanoparticles [47] or hard-sphere suspensions [48].

7. The three following assumptions are related to the internal aggregate structure:

7.1. The orientation state of the fibers inside the aggregates is considered to be isotropic. However, to check whether the orientation distribution strongly affects the aggregate cohesive strength, we extend our model to nearly aligned state and obtain only a slight difference with respect to the isotropic orientation distribution [Appendix A]. Thus, the model can be applied for our experiments with PA fibers showing an intermediate orientation state.

7.2. The internal aggregate structure corresponds to the colloidal glass state, characterized by spatially homogeneous distribution of fibers with a fractal dimension equal to 3. This state occurs within the range of the internal particle volume fractions inside the aggregates, $0.7/r \leq \varphi_i \leq 5.4/r$, valid for the high aspect ratio limit [49, 50]. The lower bound of this interval corresponds to the percolation threshold. Analysis at the end of Sec. II-C shows that concentration of fibers inside the aggregates in our PA suspensions is above the percolation threshold.

7.3. All the aggregates have the same internal volume fraction φ_i , corresponding to the limit of their mechanical stability [see Sec. II-C].

8. The characteristic aggregate size, D , is supposed to be much smaller than the width of the flow channel b , and possible wall interactions are neglected. Particle/aggregate migration induced by shear rate gradients or normal stress gradients in rheometric flows are also neglected for both populations of free and aggregated fibers. These both assumptions are *a posteriori* verified, at least, for the PA suspensions [see Sec. III-A, III-B].

The approach introduced in the assumption (3.5) allows us to calculate separately the viscosity of the free fiber population suspension [Sec. II-B] and then the viscosity of the whole suspension [Sec. II-C]. To close the problem, the unknown fractions Φ_1 and Φ_2 of fibers belonging to both populations will be determined by a kinetic equation in Sec. II-D.

II-B. Viscosity of the free fiber population suspension

The rheology of this population is governed by the fiber-fluid and hydrodynamic fiber-fiber interactions, while adhesive interactions are negligible [Assumption (4) justified in Sec. IV-C and Appendix B]. In what follows, on the basis of our previous work [36], we will briefly describe how the viscosity of the free fiber population can be found accounting for hydrodynamic interactions between fibers.

Only the short-range hydrodynamic fiber-fiber interactions are considered. They correspond to lubrication forces that are assumed to be proportional to the contact surface [51] and to be linear in velocity [5]. This gives us the following phenomenological equation:

$$\mathbf{F}_{\text{lub}} = \frac{k\eta_0 d\mathbf{u}}{|\mathbf{p}^\alpha \times \mathbf{p}^\beta|} \quad (4)$$

where \mathbf{u} is the relative velocity of the approach of two fibers, whose orientation is described by unit vectors \mathbf{p}^α and \mathbf{p}^β , and k is a dimensionless constant depending on the microscopic details of the lubrication contact. This constant is taken as a free parameter in the model and will allow us later to estimate the gap h_H between free fibers.

The hydrodynamic interactions between fibers induce their stochastic angular motion [52] that can be mimicked by an isotropic rotary diffusion process with a phenomenological rotary diffusivity

$$D_r = C\varphi\Phi_2\dot{\gamma}, \quad (5)$$

accounting for pair-wise interactions between fibers with frequency proportional to the particle volume fraction ($\varphi\Phi_2$ in the case of the free fiber population) and to the shear rate. The dimensionless constant C accounts for geometrical details of the interaction.

The orientation state of the fibers can be found in low diffusion, $D_r r^3 / \dot{\gamma} \ll 1$, and high aspect ratio, $r \gg 1$ limits, following the work of Leal and Hinch [53]. In this limit, the moment $\langle p_1^2 p_2^2 \rangle$ of the orientation distribution function does not depend on D_r and is equal

to $\langle p_1^2 p_2^2 \rangle \approx 0.315/r_e$, with $r_e \approx 1.24r/\ln^{1/2}r$ being the equivalent aspect ratio of fibers Brenner [54]. The shear viscosity η_f of the free fiber population depends only on the moment $\langle p_1^2 p_2^2 \rangle$. Thus, η_f appears to be independent of the rotary diffusivity, and the unknown constant C does not intervene into the final expression for η_f .

The stress tensor is obtained by the averaging of the local stress over the contact probability and over the fibers' orientation. The component of lubrication force parallel to the fiber axis gives a contribution proportional to the square of the particle concentration. Since non-hydrodynamic interactions between free fibers are neglected, the free fiber population behaves as a Newtonian suspension of an effective particle volume fraction $\varphi\Phi_2$ with a relative shear viscosity given by the following formula [36]:

$$\eta_f^r = \frac{\eta_f}{\eta_0} = 1 + 2(\varphi\Phi_2) + \frac{2}{3}c(\varphi\Phi_2) \frac{r \ln^{1/2}(r) f^{\parallel}}{\ln(2r)} + \frac{8}{3\pi^2} ck(\varphi\Phi_2)^2 r \ln^{1/2}(r) \quad (6)$$

where $f^{\parallel} = (1 + 0.64\varepsilon)/(1 - 1.5\varepsilon)$ is the form factor estimated with the help of the slender body theory of Batchelor [55] in the dilute limit; $\varepsilon = 1/\ln(2r)$ and $c \approx 0.254$. The last two terms of Eq. (6) stand respectively for hydrodynamic interactions between the fibers and the solvent and for short-range lubrication forces between contacting fibers.

Notice that the relative viscosity of the whole disaggregated suspension at high shear plateau is defined by Eq. (6) where the fraction of free fibers Φ_2 should be set to unity: $\Phi_2=1$.

II-C. Mechanical equilibrium of the aggregates and suspension viscosity

According to the assumption (3) [Sec. II-A], the rigid impermeable clusters are dispersed in a Newtonian fluid formed by the population of free fibers suspended in the liquid solvent. The volume fraction of the aggregates is $\varphi_a = \varphi\Phi_1/\varphi_i$, and the relative viscosity of the suspension of the aggregates dispersed in the continuous medium of viscosity η_f is estimated by the Krieger-Daugherty relationship [3]:

$$\eta_a^r = \frac{\eta_a}{\eta_f} = \left[1 - \frac{\varphi_a}{\varphi_{m,a}} \right]^{-[\eta]\varphi_{m,a}} = \left[1 - \frac{\varphi\Phi_1}{\varphi_{m,a}\varphi_i} \right]^{-[\eta]\varphi_{m,a}} \quad (7)$$

where $[\eta]$ is the intrinsic viscosity of a dilute suspension of aggregates, $\varphi_{m,a}$ is their random close packing fraction. Equation (7) provides correct predictions for aggregates with an anisotropic shape [56]. For these aggregates, the intrinsic viscosity $[\eta]$ and the packing fraction $\varphi_{m,a}$ depend on their aspect ratio r_a (Sec. A of Supplemental Materials) [42], while

the product $[\eta]\varphi_{m,a}$ varies in a relatively narrow range 1.4-3 [3]. The values $[\eta] = 2.5$ and $\varphi_{m,a} \approx 0.64$ are taken for spherical aggregates.

The relative viscosity η_a^r depends on the two unknown parameters Φ_1 and φ_i . The fraction Φ_1 of aggregated fibers will be estimated in Sec. II-D. The internal volume fraction φ_i of aggregates is determined in this section.

According to the assumption (7.3) [Sec. II-A], all the aggregates are supposed to have the same internal volume fraction corresponding to the limit of their mechanical stability under shearing forces. The adhesive forces between fibers are capable to preserve the aggregates from destruction until they are dominant over the shearing forces.

We suppose that the aggregates can be broken in equal parts by shearing forces. The hydrodynamic force acting on a half of a broken aggregate is maximal along the extension axis. Therefore, the fracture is assumed to happen at the aggregate middle plane perpendicular to the extension axis of the shear flow, making an angle $\pi/4$ with the flow direction [Fig. 1b] Note that appearance of the voids inside the flocs under shearing forces has been reported by Björkmann [57] and Karppinen *et al.* [58] for micro-fibrillated cellulose suspensions. These voids were extended along the largest compression axis (therefore perpendicular to the extension axis) and led to partial breakup of the fiber network.

The aggregate fracture corresponds to a break-up of the adhesive contacts within the fracture region. It is expected to occur when the hydrodynamic force, F_h , acting on a half of the aggregate surface overcomes the aggregate cohesive strength, F_c , defined by the sum of all adhesive forces in the fracture region. Both F_h and F_c represent the projection of the forces onto the extension axis along which the aggregate is torn.

Since the concentration φ_a of aggregates in the suspension is high enough, the hydrodynamic force acting on aggregates will be affected by multi-body hydrodynamic interactions with neighboring aggregates. These interactions can be accounted for by an effective medium approach considering that the aggregates are immersed into a fluid whose viscosity is equal to the viscosity η of the whole suspension rather than the viscosity η_f of the suspending medium. Such an approach has been successfully used by Snabre and Mills [41] for aggregated suspensions of spherical particles. At this condition, the hydrodynamic force acting on a half of the aggregate along the extension axis is given by the following expression [59]:

$$F_h = \frac{5\pi}{8} \zeta \eta \dot{\gamma} D^2 = \frac{5\pi}{8} \zeta \sigma D^2 \quad (8)$$

where D is the aggregate diameter, σ is the applied shear stress and ζ is a correction factor for anisotropic aggregates, which are supposed to be prolate ellipsoids of revolution with a minor

axis D and aspect ratio r_a . The factor ζ is calculated in Sec. A of Supplemental Materials [42] as function of r_a . The value $\zeta=1$ is used for spherical aggregates.

Similarly to lubrication forces between free fibers, the normal adhesive force F_n between aggregated fibers is expected to be proportional to the inter-fiber contact area, thus inversely proportional to the sine of the angle δ between fibers ($\sin \delta = |\mathbf{p}^\alpha \times \mathbf{p}^\beta|$) [11]:

$$F_n = \frac{F}{|\mathbf{p}^\alpha \times \mathbf{p}^\beta|} \quad (9)$$

where F is the value of the normal adhesive force corresponding to the angle $\delta=\pi/2$ between two fibers. In the particular case of van der Waals interaction, equation (9) holds at $r^{-1} \leq \delta \leq \pi/2$ and, at small separations $h_A \ll d$ between the fiber surfaces, the expression for F reads [60]:

$$F = \frac{A}{12} \frac{d}{h_A^2} \quad (10)$$

where A is the Hamaker constant.

The cohesive strength, F_c , of the aggregates is estimated in Appendix A for both normal and tangential rupture scenarios [assumption (4)] and for both isotropic and nearly aligned fiber orientation within the aggregates [assumption (7.1)]. These four cases are combined into a single expression for F_c :

$$F_c = -\frac{4\varphi_i^2 F_A D^2 r}{\pi d^2} \quad (11)$$

where r and d are the fiber aspect ratio and diameter, respectively, $F_A = \xi F$ is an effective colloidal force, where the multiplier ξ is of the order of unity and varies in a narrow range $\min(1/2, \pi\mu/4) \leq \xi \leq \max(1, \mu)$ depending on the contact rupture scenario and the orientation state. The reasons for a weak variation of the cohesive strength with the rupture scenario and with the orientation distribution are explained in details in Appendix A. On the other hand, the characteristic value of the normal adhesive force, F , can be estimated using Eq. (10) if the separation h_A between aggregated fibers is known. In the present model, the value $F_A \sim F$ is taken as an adjustable parameter, which will allow us to estimate the separation h_A [Sec. IV-C, Appendix B].

At mechanical equilibrium, the sum of the hydrodynamic [Eq. (8)] and cohesive [Eq.(11)] forces is zero, and we arrive at the following expression for the desired quantity – the internal volume fraction of aggregates:

$$\frac{1}{\varphi_i^2} = \frac{32F_A r}{5\pi^2 \zeta \sigma d^2} = \frac{32N_A r}{5\pi^2 \zeta}, \quad (12)$$

where we have made use of Eq. (2) for the aggregation parameter N_A .

The equation (12) gives a progressive increase of the internal volume fraction with an increase of the shear stress. This comes from the fact that the total number of contacts inside the fracture region (proportional to φ_i^2) should increase in order that the aggregate might support a higher applied stress. At high shear stresses, the aggregation parameter vanishes, $N_A \ll 1$, and the volume fraction becomes much larger than unity: $\varphi_i \gg 1$. This indicates that the present model is only valid for moderate-to-high aggregation state, $N_A > 1$ ensuring physically correct values of the internal volume fraction $\varphi_i < 1$. To extend our model to high shear states, we add a term $1/\varphi_{m,i}^2$ to the right-hand side of Eq. (12), allowing an upper limitation of the φ_i value by some maximum admissible internal volume fraction $\varphi_{m,i}$:

$$\frac{1}{\varphi_i^2} = \frac{32N_A r}{5\pi^2 \zeta} + \frac{1}{\varphi_{m,i}^2} \quad (13)$$

For definiteness, we put $\varphi_{m,i}$ equal to the upper limit concentration of the colloidal glass state: $\varphi_{m,i} = 5.4/r$. Notice that the aggregate diameter D disappears from Eq. (13) for φ_i . This has been expected thanks to non-fractal nature of the aggregate structure [assumption (7.2)].

Finally, substituting Eq. (13) for φ_i into Eq. (7), we get the following expression for the relative viscosity of the suspension of spherical aggregates dispersed in a free fiber suspension:

$$\eta_a^r = \left[1 - \frac{\varphi \Phi_1}{\varphi_{m,a}} \left(\frac{32N_A r}{5\pi^2 \zeta} + \frac{1}{\varphi_{m,i}^2} \right)^{1/2} \right]^{-[\eta] \varphi_{m,a}} = \left[1 - \frac{\varphi \Phi_1}{\varphi_{m,a}} \left(\frac{32F_A r}{5\pi^2 \zeta \sigma d^2} + \frac{1}{\varphi_{m,i}^2} \right)^{1/2} \right]^{-[\eta] \varphi_{m,a}} \quad (14)$$

Recall that $\zeta=1$, $[\eta]=2.5$ and $\varphi_{m,a} \approx 0.64$ for spherical aggregates, while the values of these parameters are provided in Sec. A of Supplemental Materials [42] for non-spherical aggregates.

The equation (14) allows one to find the relative viscosity of the aggregate population as function of the aggregation parameter N_A (or, alternatively, the applied stress σ) and of the particle volume fraction φ . The viscosity of the whole suspension is found as the product of the relative viscosity η_a^r of the aggregate suspension and the viscosity η_f of its suspending medium – the free fiber population:

$$\eta = \eta_f \eta_a^r = \eta_0 \eta_f^r \eta_a^r \quad (15)$$

where η_0 is the Newtonian solvent viscosity, η_f^r is given by Eq. (6) and η_a^r - by Eq. (14).

It is important to notice that the viscosities η_f^r and η_a^r of both fiber populations are affected by the average number of contacts per fiber, called the coordination number and defined by the expression [61]: $Z = 4\varphi(2f_1 r / \pi + f_2 + 1)$, where $f_1 = \langle |\mathbf{p}^\alpha \times \mathbf{p}^\beta| \rangle$ and $f_2 = \langle |\mathbf{p}^\alpha \cdot \mathbf{p}^\beta| \rangle$. More precisely, the coordination number affects the viscosities through the term $Z / f_1 \approx 8\varphi r / \pi$ obtained at $r \gg 1$. The orientation scalar f_1 disappears while averaging adhesive and lubrication forces over the contact probability, because the product of each of this force with the contact probability is independent of $|\mathbf{p}^\alpha \times \mathbf{p}^\beta|$, as inferred from Eqs. (4), (9) and (A-3). The coordination number inside the aggregates should be higher than the percolation threshold $Z_p \approx 1.4$ Balberg et al. [62]. This constraint imposes the lower bounds of suspension concentration at which our model is still valid: $\varphi_{\min} \approx 0.02$ at $r=18$ and $\varphi_{\min} \approx 0.01$ at $r=33$. Our PA suspensions respect these bounds. The CNT suspensions characterized by Khalkhal *et al.* (2011) [37] and used for comparison with our model are quite polydisperse, some CNTs attain the aspect ratio of the order of 100 at the mean value $r=36$. Therefore their coordination number is likely underestimated.

To close the problem, we need to define the fractions Φ_1 and Φ_2 of fibers belonging to both populations, since these quantities appear in the suspension viscosity.

II-D. Kinetic equation for the fractions Φ_1 and Φ_2

Kinetics of aggregation and of destruction of the aggregates is a complicated multiscale process. The aggregation is usually governed by the collisions between the aggregates of different sizes and is satisfactorily described by Smoluchowsky equation [63] allowing estimation of the aggregate size distribution. If the aggregation of spherical particles is well documented, the aggregation of fibers is studied only scarcely [64, 65] likely because of complexities related to orientational ordering and intricate cluster geometry. Development of a rigorous multiscale approach of the aggregation kinetics is out of scope of the present study. In the frame of our two population model, all the aggregates are supposed to be equivalent and only the particle exchange between these two populations is considered [assumption (3), Sec. II-A].

Let n_1 and n_2 number density of particles belonging to populations of aggregated and free fibers, respectively, while n is the number density of all particles in the suspension. The particle conservation implies $n = n_1 + n_2$. The kinetic equations of both populations are written in the most general form, as follows:

$$\frac{dn_1}{dt} = q_c - q_d \quad (16a)$$

$$\frac{dn_2}{dt} = -q_c + q_d \quad (16b)$$

where t is the time; q_c and q_d are, respectively, the aggregate construction and the aggregate destruction rates per unit volume of the suspension. The sum of both kinetic equations gives $dn/dt = 0$ that verifies the particle conservation condition.

The aggregate construction is supposed to be governed by the fiber collision frequency, whose volume density has been estimated theoretically [8] and then confirmed by simulations [66]:

$$q_c \sim n_2^2 \dot{\gamma} l^3 \frac{\ln r}{r^2} \sim n_2^2 V_f \dot{\gamma} \ln r \quad (17)$$

Where V_f , l and r are, respectively, the fiber volume, length and aspect ratio. The aggregation rate is then given by the product of the collision rate to the probability α_0 that the collision sticks the fibers together, also called the orthokinetic capture efficiency [67] and takes the form:

$$q_c = k_1 \alpha_0 n_2^2 V_f \dot{\gamma} \ln r \quad (18)$$

where k_1 is a dimensionless constant accounting for geometrical details of the fiber-fiber collisions.

According to the fracture scenario introduced in Sec. II-C, the aggregate destruction is supposed to be governed by the fracturing of unstable aggregates having an internal volume fraction φ_i lower than that given by Eq. (13) and thus having an insufficient cohesive strength to resist to the shearing forces. The broken halves are expected to have nearly the same internal volume fraction as the original aggregate; they are therefore unstable and subject to a further fracturing. Thus, the first break-up could initiate a continuous fracturing-break-up process until the aggregates are fully disintegrated into separate fibers. In such a scenario, the destruction rate is given by:

$$q_d = n_a J \sim n_a n_i V_a \dot{\gamma}, \quad (19)$$

where n_a is the number density of the aggregates in the suspension; J is the number of fibers per unit time moving apart from the destroyed aggregate under the action of the shear flow, n_i is the number density of the fibers in the aggregates; and V_a is the aggregate volume. The product $n_a n_i$ appearing in the last equation is related to the number density n_1 of the aggregated fibers by the following expressions: $n_a n_i = n_1 / V_a$. The destruction rate is corrected

15

by the term $1-\varphi/\varphi_{m,i}$ to ensure zero rate when the fiber concentration in the suspension approaches its upper gelation limit $\varphi_{m,i}=5.4/r$ [50]. In this way, topological interactions between fibers are implicitly taken into account. The final expression for the volume density of the destruction rate reads:

$$q_d = k_2 n_1 \dot{\gamma} \left(1 - \frac{\varphi}{\varphi_{m,i}} \right) \quad (20)$$

with k_2 - a dimensionless constant, accounting for microscopic details of the aggregate destruction. Combining together Eqs. (16a), (18) and (20), the kinetic equation for n_1 is written in its final form:

$$\frac{dn_1}{dt} = k_1 \alpha_0 V_f \dot{\gamma} \ln(r) n_2^2 - k_2 \dot{\gamma} n_1 \left(1 - \frac{\varphi}{\varphi_{m,i}} \right) \quad (21)$$

The number densities n_1 and n_2 are related to the fractions Φ_1 and Φ_2 of the aggregated and free fibers by the following expressions: $n_1 = \Phi_1 \varphi / V_f$ and $n_2 = \Phi_2 \varphi / V_f$. Replacing these formulas in Eq. (21) and taking into account the particle conservation [Eq.(1)], we arrive at the following equation with respect to Φ_1 :

$$\frac{d\Phi_1}{dt} = k_1 \alpha_0 \dot{\gamma} \ln(r) \varphi (1 - \Phi_1)^2 - k_2 \dot{\gamma} \Phi_1 \left(1 - \frac{\varphi}{\varphi_{m,i}} \right) \quad (22)$$

This equation admits the following steady state solution (at $d\Phi_1 / dt = 0$):

$$\Phi_1 = 1 + \lambda - [\lambda(\lambda + 2)]^{1/2} \quad (23a)$$

$$\lambda = \kappa \frac{1 - \varphi / \varphi_{m,i}}{2 \alpha_0 \varphi \ln r} \quad (23b)$$

Where $\kappa = k_2 / k_1$ - a dimensionless constant taken as an adjustable parameter of the present model. The fraction Φ_2 of the free fibers is obtained from Eqs. (1) and (23a):

$$\Phi_2 = 1 - \Phi_1 = [\lambda(\lambda + 2)]^{1/2} - \lambda \quad (24)$$

The last unknown parameter intervening into the expressions (23a) and (24) for Φ_1 and Φ_2 is the orthokinetic capture efficiency α_0 . At this moment, we are unable to predict this parameter as a function of the aggregation parameter N_A . In case of two equal size spherical particles interacting through van der Waals forces and subjected to simple shear flow, the orthokinetic capture efficiency appears to depend rather weakly on the aggregation parameter

[67]: $\alpha_0 \propto N_A^{0.18}$. Assuming that the similar trend holds for fibers, we will neglect such a dependency and put this coefficient equal to unity ($\alpha_0 \approx 1$) for all the range of the shear rates used in experiments. This approximation gives us nonzero values of Φ_1 (i.e. aggregates are always present) even at infinite shear rates. The errors related to the assumption $\alpha_0 \approx 1$ will be quantitatively analyzed in Sec. IV-B [cf. Fig. 5a].

In summary, the suspension shear viscosity η is calculated by Eqs. (15), (6), (14), in which the fiber fractions Φ_1 and Φ_2 are replaced by Eqs. (23) and (24), respectively. The three adjustable parameters of the model are the constant k in the phenomenological lubrication law [Eq. (4)]; the effective adhesive force F_A ; and the parameter κ appearing in the expression [Eq. (23)] for the fraction Φ_1 of aggregated fibers.

III. Experiments

In this work two kinds of fiber suspensions were investigated: polyamide fiber (PA) and carbon nanotube (CNT) suspensions. The characterization and experimental measuring protocols for PA suspensions will be presented in Sec. III-A and III-B, while the CNT suspensions will be briefly characterized in Sec. III-C.

III-A. Polyamide fiber suspensions

The PA fibers (provided by “La société nouvelle le flochage”, France) of the length $l=0.5$ mm and of two different diameters, $d=15.2\pm 0.5$ μm and 27.8 ± 0.5 μm , corresponding to aspect ratios of $r=33\pm 1$ and 18 ± 0.5 , were used. The fibers were monodisperse and their size was confirmed by optical microscopy measurements. The fiber density was measured precisely by a pycnometer method. Table 1 summarizes the size, the density and the effective stiffness [Eq. (27)] of both the fibers.

The fiber surface roughness has been measured using an atomic force microscope (AFM). We obtained the values $h_R=5\pm 2$ nm and $h_R=14\pm 4$ nm of the arithmetic average roughness (R_a) for the fibers of the aspect ratios, $r=18$ and $r=33$, respectively.

The PA fibers were dispersed in a mixture of UCON oil 75H90000 (Dow Chemical, France; density $\rho_{oil}=1.09$ g/cm³, viscosity $\eta_{oil}=30$ Pa·s at 25°C) in distilled water at different volume fractions φ ranging from 1 to 17% depending on the fiber aspect ratio. This mixture has been chosen as a model system, ensuring the neutral buoyancy and having a relatively low viscosity that allows attaining a relatively high ratio of colloidal-to-hydrodynamic forces required for studies of the shear thinning behavior. Furthermore, UCON oil shows a good solubility in water without phase separation, and the mixture exhibits a perfectly Newtonian response in the considered range of the shear rates, $10^{-2} < \dot{\gamma} < 10^2$ s⁻¹. An appropriate amount of zinc bromide (ZnBr₂) or sodium bromide (NaBr) salt [Sigma-Aldrich, France] was added into the mixture in order to adjust the density of the suspending liquid to that of the fibers.

The composition of the suspending liquid for both fiber sizes is summarized in Table 2 along with its physical properties.

Table 1. Characterization of PA fibers and CNT

Material	Length l [μm]	Diameter d [μm]	Aspect ratio r	Density ρ_f [g/cm^3]	Effective dimensionless stiffness, S_{eff}^{***}
PA	500	15.2 \pm 0.5	33 \pm 1	1.340 \pm 0.001	4 – 4 \cdot 10 ⁴
PA	500	27.8 \pm 0.5	18 \pm 0.5	1.090 \pm 0.001	30 – 3 \cdot 10 ⁵
CNT	0.1-2.2 (0.5)*	0.007-0.025 (0.014)*	4-314 (36)**	\approx 2.0	0.4 – 4 \cdot 10 ³

* The values in brackets correspond to the peak of the size distribution of CNT reported by Khalkhal *et al.* [37];

** The value in brackets correspond to the ratio of the peak value of the CNT length to the peak value of its diameter

*** Estimations are provided in Sec. B of Supplemental Materials [42]

Table 2. Characterization of the suspending liquid of the fiber suspensions

Fibers	Composition	Density ρ_0 [g/cm^3]	Viscosity η_0 [$\text{Pa}\cdot\text{s}$]	Ionic strength I [mol/L]*
PA, $r=33$	Ucon oil (30%vol)/ water (70%vol) / ZnBr ₂ (404 g/L)	1.340 \pm 0.001	0.310 \pm 0.010 at 20°C	4.5
PA, $r=18$	Ucon oil (40%vol)/ water (60%vol) / NaBr (92.6 g/L)	1.090 \pm 0.001	0.364 \pm 0.010 at 20°C	0.9
CNT, $r=36$	Epoxy Epson 828 (HEXION Specialty Chemicals Inc.)	1.16	12.33 at 25°C	N/A

* Estimations are provided in Sec. B of Supplemental Materials [42]

The fiber sedimentation time scale, the fiber effective stiffness Péclet and Reynolds numbers, inertial pressure, Debye screening length and Hamaker constant of PA/UCON-water system are estimated in Sec. B of Supplemental Materials [42]. These estimations allow us to draw the following conclusions on PA suspensions:

(a) the assumption (1) on rigid non-Brownian (Péclet number is $Pe \approx 3 \cdot 10^7$) and neutrally buoyant fibers is confirmed;

(b) the assumption (2) on laminar flow on the flow scale (Reynolds number $Re_{flow} \approx 360$) and particle scale ($Re_p \approx 4 \cdot 10^{-3}$) is validated;

(c) the electrostatic interactions are completely screened by a relatively large amount of brome salts added to the suspending fluid resulting in Debye length $\kappa_e^{-1} < 1$ nm; PA suspensions are therefore fitted into the frames of our model developed for attractive interactions [assumption (3)].

The same conclusions hold for CNT suspensions, as follows from appropriate characterizations and estimations done in the work of Khalkhal *et al.* [37].

The quiescent PA fiber suspensions were visualized after shearing using an inverted optical microscope Nikon Dashpot. The micrographs shown in Fig. 2 confirm some spatial heterogeneity at relatively low suspension concentration.

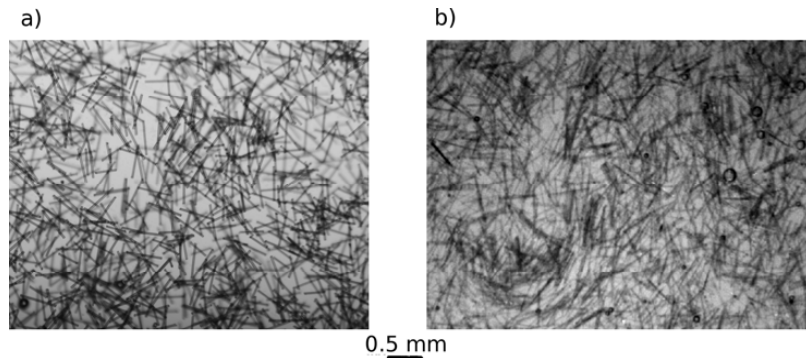


Fig. 2. Optical microscopy images for quiescent PA fiber suspensions. The figure (a) corresponds to particle aspect ratio $r=18$ and $\varphi=0.03$; the figure (b) – to $r=33$ and $\varphi=0.05$

Existence and behavior of concentration heterogeneities can be better analyzed via observation of the suspension behavior under shear. The video available in Supplemental Materials [68] (best viewed in Google Chrome or Safari browsers) shows the shearing of the suspension of fiber volume fraction $\varphi=0.05$ and aspect ratio $r=18$ at a shear rate 0.3 s^{-1} and at the gap between moving plates fixed to three fiber lengths. The experiment starts with a short and intense pre-shear at 50 s^{-1} applied before the main shearing at 0.3 s^{-1} in order to be closer to the experimental protocol of the rheometric measurements [Sec. III-B]. The following information can be drawn from this observation: (a) the existence of denser domains separated by free fibers is confirmed; (b) these domains are more or less sparse structures (like the ones shown in Fig.2) whose fibers exhibit a cooperative motion and some misalignment relatively to each other; (c) some domains have an isotropic shape, other ones – an extended shape aligned with the main flow; their characteristic size is estimated to be about one-to-two fiber lengths, $D \sim (1-2)l$, and their aspect ratio varies between 1 and 3; (d) some rearrangement of fibers inside the denser domains is observed but it is difficult to follow kinetics of their formation and disintegration because of their small travel distance limited by the narrow

observation window. Nevertheless, we believe that these observations are in agreement with our basic assumptions (3.1)-(3.4) concerning particle aggregation, as we defined it in Sec. II-A.

III-B. Experimental procedure on polyamide fiber suspensions

The viscosity measurements are carried out with a controlled-stress rheometer (Thermo Mars II) in rotating parallel plate geometry. The suspension is introduced into a pool and sheared by a rotating top disk, as shown schematically in Fig. 3. The suspension level in the pool is adjusted to the upper surface of the rotating plate. This allows minimization of capillary pressure effects and shear rate oscillations at low shear rates. The pool is covered by a Plexiglas lid in order to minimize evaporation of the suspending liquid. The temperature of the lower plate (bottom of the pool) is kept constant and equal to 20°C by a standard Peltier element, while the experimental room is air conditioned at 22°C. The measuring system had the following dimensions: the rotating plate and the pool radii were $R_{plate}=30$ mm and $R_{pool}=44$ mm, respectively. The gap between the rotating plate and the bottom of the pool was varied in the range $b=2-10$ mm. This geometry was chosen in order to decrease possible effects of the fiber or aggregate confinement in the measuring gap. However, due to shearing of the suspension in the pool outside the gap, this geometry gives overestimated values of the viscosity and the measurements need to be corrected.

To estimate the necessary correction, the suspending liquid viscosity is measured both in the pool geometry as a function of the gap, $\eta_0^{pool}(b)$, and in conventional plate-plate geometry with a meniscus at the rim, η_0^{p-p} . The ratio of these viscosities is fitted by a linear function: $f(b) \equiv \eta_0^{pool}(b) / \eta_0^{p-p} = \alpha_1 + \alpha_2 b$. Then, the viscosity, $\eta^{pool}(b=5 \text{ mm})$, of the PA suspensions is measured in the pool geometry with a gap equal to $b=5$ mm. Finally, assuming that the correction function $f(b)$ is the same for the fiber suspension and for the suspending liquid, the “true value” of the suspension viscosity η and of the relative viscosity η^r are deduced: $\eta = \eta^{pool}(b=5 \text{ mm}) / f(b=5 \text{ mm})$ and $\eta^r = \eta / \eta_0^{p-p}$.

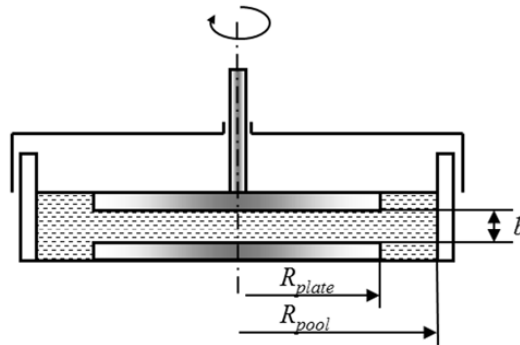


Fig. 3. Sketch of the experimental pool geometry

Besides the confinement effects, an effective slip of the suspension over the rheometer plates could occur because of different structural arrangement of fibers near the walls and in the gap center. To check this effect, we have measured the suspension viscosity in the pool geometry at different gaps b , ranging from 1 to 6 mm, and applied the above mentioned pool correction to each gap: $\eta(b) = \eta^{pool}(b) / f(b)$. The measurements show that the suspension viscosity becomes independent of the gap at $b > 4$ mm. We expect therefore that both the confinement and possible wall slip effects are negligible when the gap is set to $b = 5$ mm for all the measurements reported in the present paper. This is also consistent with the scale separation, $D \ll b$ assumed in our model [assumption (8)] and approximately verified in visualization experiments [Sec. III-A], where $D \sim (1-2)l = 0.5-1$ mm is the aggregate length scale.

The shear stress is defined through the measurements of the applied torque M . The shear rate varies linearly from zero on the axis of symmetry to its maximum value at the rim, $\dot{\gamma}_R$ which is calculated from the measured rotational speed Ω . The following expressions were applied for the measured shear stress, shear rate and suspension viscosity [69]:

$$\sigma_{app} = \frac{2M}{\pi R_{plate}^3}; \quad \dot{\gamma}_R = \frac{R_{plate}\Omega}{b}; \quad \eta_{app} = \frac{\sigma_{app}}{\dot{\gamma}_R} \quad (25)$$

where the subscript “*app*” stands for the apparent shear stress or the apparent viscosity, which correspond exactly to the shear rate $\dot{\gamma}_R$ only in the case of a Newtonian fluid. In experiments, the apparent values σ_{app} and η_{app} are measured as function of $\dot{\gamma}_R$. Thus, to compare our experiments with the theory, the theoretical values of the shear stress σ and viscosity η are converted to the apparent ones using the following relationships [69]:

$$\sigma_{app}(\dot{\gamma}_R) = \frac{4}{\dot{\gamma}_R^3} \int_0^{\dot{\gamma}_R} \dot{\gamma}^2 \sigma(\dot{\gamma}) d\dot{\gamma} \quad (26a)$$

$$\eta_{app}(\dot{\gamma}_R) = \frac{\sigma_{app}}{\dot{\gamma}_R} = \frac{4}{\dot{\gamma}_R^4} \int_0^{\dot{\gamma}_R} \dot{\gamma}^3 \eta(\dot{\gamma}) d\dot{\gamma} \quad (26b)$$

In order to use these relationships, we need to find theoretical dependences $\sigma(\dot{\gamma})$ and $\eta(\dot{\gamma})$ by solving the transcendental equation (14) with respect to σ and η , respectively, by using $\sigma = \eta\dot{\gamma} = \eta_0 \eta_f^r \eta_a^r \dot{\gamma}$ [Eq. (15)].

The measurements are performed in a controlled-stress mode using the following protocol. First, the suspension is pre-sheared for 3 min at $\dot{\gamma} = 10^2 \text{ s}^{-1}$. Then, the suspension is left at rest for 3 min. Then, the constant shear stress of the lowest value (corresponding approximately to $\dot{\gamma} = 10^{-2} \text{ s}^{-1}$) is applied for a time ranging between 2 and 5 h, long enough to ensure that the steady state has been reached. The shear rate and the suspension viscosity are

measured as function of time. At the end of this period, the suspension is left un-sheared for 3 min, and sheared again for 3 min at $\dot{\gamma} = 10^2 \text{ s}^{-1}$, left un-sheared once more for 3 min, and a new value of the constant shear stress is applied for a time sufficient for reaching the steady-state. This procedure with a pre-shear stage is repeated for all the values of the applied shear stress (increasing at each new step) until its highest value corresponding to $\dot{\gamma} = 10^2 \text{ s}^{-1}$. In some cases, the measurements have also been continued by a decreasing shear stress ramp. And, even though the full measurement lasts several hours, we did not observe distinguishable flow curve hysteresis and the low-shear steady-state viscosity was found to be the same at the beginning and the end of the test. This proves the absence of sedimentation and evaporation of the suspending liquid, in agreement with the estimation by Eq. (S-10) in Supplemental Materials [42], as well as the absence of aging effects. Furthermore, shear-induced particle migration, either within the gap or from the inside to outside of the gap, appears not to play any role, in agreement with the assumption (8) and with the experimental data on suspensions of spherical particles in parallel plate geometry [70-72].

It is important to note that our measuring protocol with high shear rate pre-shearing ensured the similar initial conditions for each value of the applied shear stress. This allowed us to exclude the effects of the shear history on the suspension rheology.

III-C. Carbon nanotube suspensions

The CNT suspensions have been characterized in details in the work of Khalkhal *et al.* [37]. Some parameters of the multiwall CNT particles are summarized in Table 1. The particles showed a rather broad distribution of their length and diameter, with the values $l=0.5 \text{ }\mu\text{m}$ and $d=14 \text{ nm}$ corresponding to the peak of the size distribution curves. These values result in some effective aspect ratio $r=36$ and were used for the comparison between experiments and our model.

The multiwall CNTs were dispersed in a Newtonian epoxy resin Epon 828 (HEXION Specialty Chemicals Inc.) having a viscosity $\eta_0=12.3 \text{ Pa}\cdot\text{s}$ at 25°C at different volume fractions φ ranging from 0.59 to 2.36%. The estimations using Eqs. (S-10)-(S-12) in Supplemental Materials [42] allow one to neglect the CNT settling during experiments and consider them as rigid and non-Brownian within the experimental range of applied shear rates, even though the electron microscopy reveals some bending of fibers likely because of some local defects. The Hamaker constant for CNT/epoxy system was evaluated to be $A\sim 10^{-20} \text{ J}$ (cf. Sec. B of Supplemental Materials) [42]. Unfortunately, there is no more precise information about colloidal interactions between the CNT and their surface roughness.

A torsional cone-plate flow was realized using an Anton Paar Physica MCR 501 rheometer in a controlled-rate mode with a rotating cone having a diameter of 50 mm and an apex angle of 2° . The shear rate is homogeneous in this geometry, and any rheological correction, like the one described by Eq. (26), is not required. The flow respected the non-inertia limit according to the estimations of the Reynolds numbers and of the inertial pressure

(cf. Eqs. (S-15) and (S-16) in Supplemental Materials) [42]. The experimental protocol is described in details in the work of Natale *et al.* [34].

IV. Results and discussion

IV-A. Transient response

Experimental time dependency of the viscosity of PA fiber suspension during all the measurement corresponding to the increasing stress ramp including pre-shearing stages between each applied stress is shown in Fig. 4a for the particle volume fraction $\varphi=0.09$ and aspect ratio $r=18$. The time dependency of the imposed shear stress is also shown on this figure. As is seen from this figure, the total duration of the measurement is about 10.5h. The duration of the longest measurement step between intense pre-shearing steps (that are expected to re-suspend the particles) is 2h and is smaller than the typical settling time of 7h, estimated by Eq. (S-10) in Supplemental Materials [42].

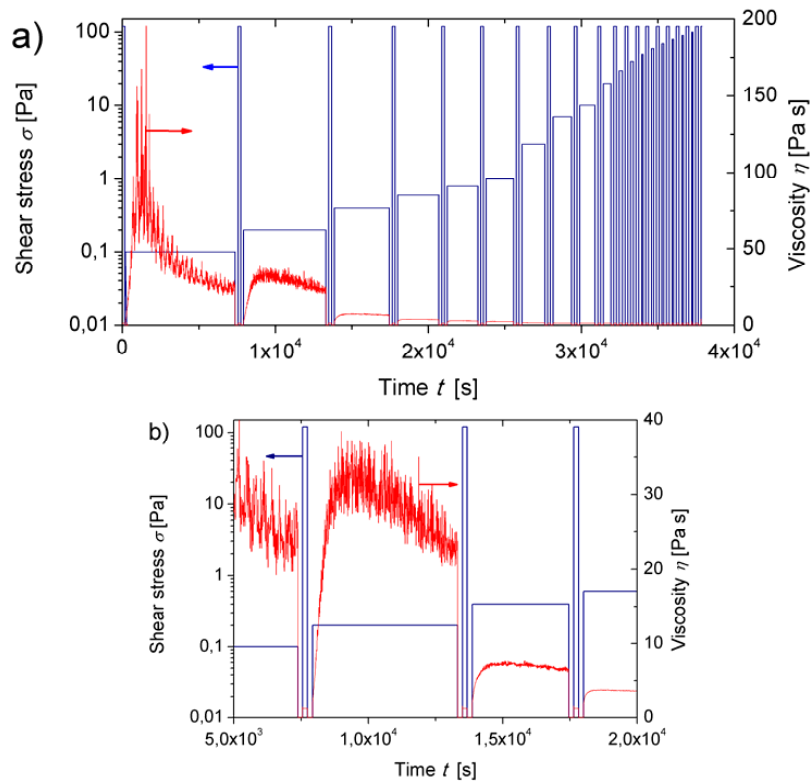


Fig. 4. Transient rheological response of a PA fiber suspension with a particle aspect ratio $r=18$ and a particle volume fraction $\varphi=0.09$. The figure (a) corresponds to the whole duration of the experiment; the figure (b) is a detailed view of the second and third stress steps at imposed shear stress equal to $\sigma=0.2$ Pa and 0.3 Pa. On both graphs, the blue line corresponds to the imposed stress $\sigma(t)$; the red curve – to the viscosity $\eta(t)$. Raw values of the viscosity are presented in figures (a) and (b) without performing the correction due to the pool geometry.

A detailed view of the second and the third stress steps ($\sigma=0.2$ Pa and 0.3 Pa) is presented in Fig. 4b for the same suspension. This figure deserves some comments. Firstly, the viscosity signal for $\sigma=0.2$ Pa is quite noisy probably because such a small imposed stress generates an extremely low shear rate of about $2 \cdot 10^{-3} \text{ s}^{-1}$ being near the detection limit of the rheometer. Another possible reason could come from an unstable and inhomogeneous flow of highly aggregated suspension at very low shear rate near the yield point. The viscosity signal becomes rather smooth and regular starting from the imposed stress equal to 0.3 Pa.

Secondly, very large times are required to achieve the steady state viscosity at low shear rates $\dot{\gamma} \sim 10^{-2} \text{ s}^{-1}$. This can be easily understood in terms of slow orientation dynamics of fibers in the shear flow. The Jeffery period of the rotation of high aspect ratio fibers is given by [3]: $T_{rot} \approx 2\pi r / \dot{\gamma}$ that gives about 3h for $r=18$ and $\dot{\gamma} = 10^{-2} \text{ s}^{-1}$. Even though the fibers are pre-oriented by intense pre-shearing at the beginning of each measurement, they spend almost half of the Jeffery period being nearly aligned with the flow and trying to readjust their mean orientation to the new steady state value. Another possible reason for a slow dynamics is the kinetics of aggregation. The aggregation governed by pair collisions between fibers has a time scale of $T_{agr} \sim \dot{\gamma}^{-1}$. A more precise estimation based on the solution of the kinetic equation (22) gives the value of 2-5 min for the time required for the fraction, Φ_1 , of aggregated fibers to reach 95% of its steady state value at $\dot{\gamma} = 10^{-2} \text{ s}^{-1}$, depending on the fiber aspect ratio and concentration [we set $k_1 = k_2 = \alpha_0 \sim 1$ in Eq.(22)]. Thus, the aggregation appears to be a fast process compared to the long-time transient response of the suspension.

IV-B. Steady-state: high shear viscosity

The steady-state values of the shear rate and of the suspension viscosity at a given apparent shear stress σ_{app} were calculated by the time averaging of the experimental $\dot{\gamma}_R(t)$ and $\eta(t)$ dependencies [Fig. 4] over the last quarter of the corresponding time interval. Before the study of the suspension shear thinning, it is important to inspect the high shear rate response when all the aggregates are expected to be destroyed and the suspension should behave as a Newtonian fiber suspension in absence of non-hydrodynamic interactions. The theoretical and experimental dependencies of the high shear relative viscosity $\eta^r = \eta / \eta_0$ on the particle volume fraction φ is presented in Fig. 5a for PA fibers of both aspect ratios $r=18$ and 33.

The experimental values of η^r (symbols in Fig. 5a) were taken at the highest shear rate $\dot{\gamma} \approx 10^2 \text{ s}^{-1}$, while the theoretical values (solid lines) were calculated by Eq. (6), in which the fraction of the free fibers was set to one: $\Phi_2 = 1$. As is seen from this figure, both experimental and theoretical concentration dependencies are stronger than linear indicating the presence of hydrodynamic interactions between fibers. The pair-wise lubrication

interactions between free fibers have been taken into account in our model producing a term quadratic in particle volume fraction [last term in Eq. (6)]. Recall that the theoretical expression (6) contains one adjustable parameter – the constant k appearing in the phenomenological lubrication law [Eq. (4)]. A satisfactory fit of the experimental curves was ensured almost in the whole range of particle volume fractions φ except for the highest concentrations. A disagreement at high concentrations could come from multi-body interactions ignored in the present model. The following values of k were used to ensure the best fits: $k=28$ for the fibers of the aspect ratio $r=33$ at $\varphi \leq 0.07$ and $k=40$ for $r=18$ at $\varphi \leq 0.15$.

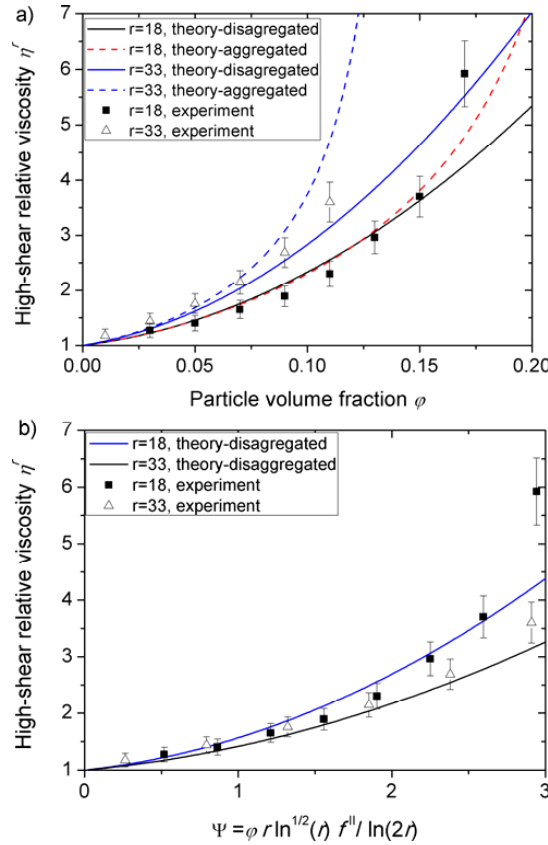


Fig.5. Experimental and theoretical dependencies of the relative high shear viscosity of the PA fiber suspensions on the particle volume fraction (a) and on the factor Ψ (b). Solid curves – theory of disaggregated suspension [Eq. (6) with $\Phi_2 = 1$]; dashed curves – theory of aggregated suspensions at high shear rates [Eq. (6) with $\Phi_2 < 1$ calculated with Eq. (23)] In the case of aggregated suspensions, the theoretical curves were calculated under assumption of spherical aggregates using the adjustable parameter $k=28$ for the fibers of $r=33$ and $k=40$ for the fibers of $r=18$

It is known that, in the low diffusion, $D_r r^3 / \dot{\gamma} \ll 1$, and high aspect ratio, $r \gg 1$ limits, the relative viscosity of dilute-to-semi-dilute fiber suspensions is approximately proportional to the product φr of the particle concentration and the fiber aspect ratio [3, 54]. More

precisely, according to Eq. (6), we expect that the relative viscosity η^r is proportional to the factor $\Psi = \varphi r \ln^{1/2}(r) f^{||} / \ln(2r)$ in the low concentration limit, $\varphi k \ll 1$, when the lubrication forces between fibers give a negligible contribution to the suspension viscosity. In this case, the data for fibers of different aspect ratios are expected to fit onto a single master curve $\eta^r = f(\Psi)$. To check this point, we plot experimental and theoretical dependencies of the relative viscosity on the factor Ψ on Fig. 5b for both aspect ratios $r=18$ and 33 . The experimental data for two aspect ratios collapse in a single curve in a relatively wide range of factors Ψ , namely $0 < \Psi < 2$, while the data diverge at $\Psi \approx 3$.

We should keep in mind that our aggregation model [Sec. II-C] allows recovering the high shear viscosity [Eq. (6)] only if the value of the orthokinetic capture efficiency is set to zero in Eq. (23b), $\alpha_0 = 0$. Physically, this means that the fibers are unable to aggregate after a pair collision at high shear rates, and that the fraction of free fibers tends to unity, $\Phi_2 = 1$ [Eq. (24) with $\lambda \rightarrow \infty$ at $\alpha_0 = 0$]. Being unable to predict the shear rate dependency of α_0 , we tentatively set this parameter to unity, $\alpha_0 = 1$, in the whole range of the studied shear rates, as if we always dealt with aggregated suspension whatever the shear rate. Now, we have to check whether this approach will produce a significant error on the high shear viscosity with respect to exact calculations with $\alpha_0 = 0$. To this purpose, a second set of theoretical curves corresponding to $\alpha_0 = 1$ and $\Phi_2 < 1$ is plotted as dashed lines in Fig. 5a for the same values of the adjustable parameter k (40 for $r=18$ and 28 for $r=33$). A reasonably good agreement between the two approaches ($\alpha_0 = 0$ and $\alpha_0 = 1$) is observed in a relatively wide concentration range ($\varphi \leq 0.09$ for $r=33$ and $\varphi \leq 0.15$ for $r=18$). This allows us to apply safely the approach of the aggregated suspension ($\alpha_0 = 1$) within the considered concentration range without modeling the shear rate dependency of α_0 . Note that at higher concentrations, the model of aggregated suspension [Eq. (14)] gives a stronger concentration behavior than the model of isolated fibers [Eq. (6)].

IV-C. Steady-state: shear thinning behavior

Experimental and theoretical flow curves are shown on the left column of Fig. 6, while the shear rate dependency of the relative viscosity $\eta^r = \eta / \eta_0$ is shown on the right column of this figure, for PA fibers with aspect ratio $r=18$ [Fig. 6a], PA fibers with $r=33$ [Fig. 6b] and CNT dispersed in a Newtonian epoxy resin [Fig. 6c]. Recall that theoretical $\sigma(\dot{\gamma})$ and $\eta(\dot{\gamma})$ dependencies were corrected by formulas (26) in the case of parallel plate geometry for the PA suspensions, while this correction was unnecessary in the case of cone-plate geometry for the CNT suspensions. In what follows, we omit the subscripts “*app*” and “*R*” at σ and $\dot{\gamma}$ for brevity. All the theoretical curves were fitted to experimental data using the set of the adjustable parameters (k, F_A, κ) summarized in Table 4 of Appendix B. In what concerns the aggregate shape, analysis conducted in Sec. A of Supplemental Materials [42] shows that the

aggregate aspect ratio r_a has only a minor influence on the suspension viscosity in the range $1 \leq r_a \leq 3$ corresponding to our experiments on PA suspensions. Therefore, all the calculations reported in the present paper correspond to the spherical aggregate shape.

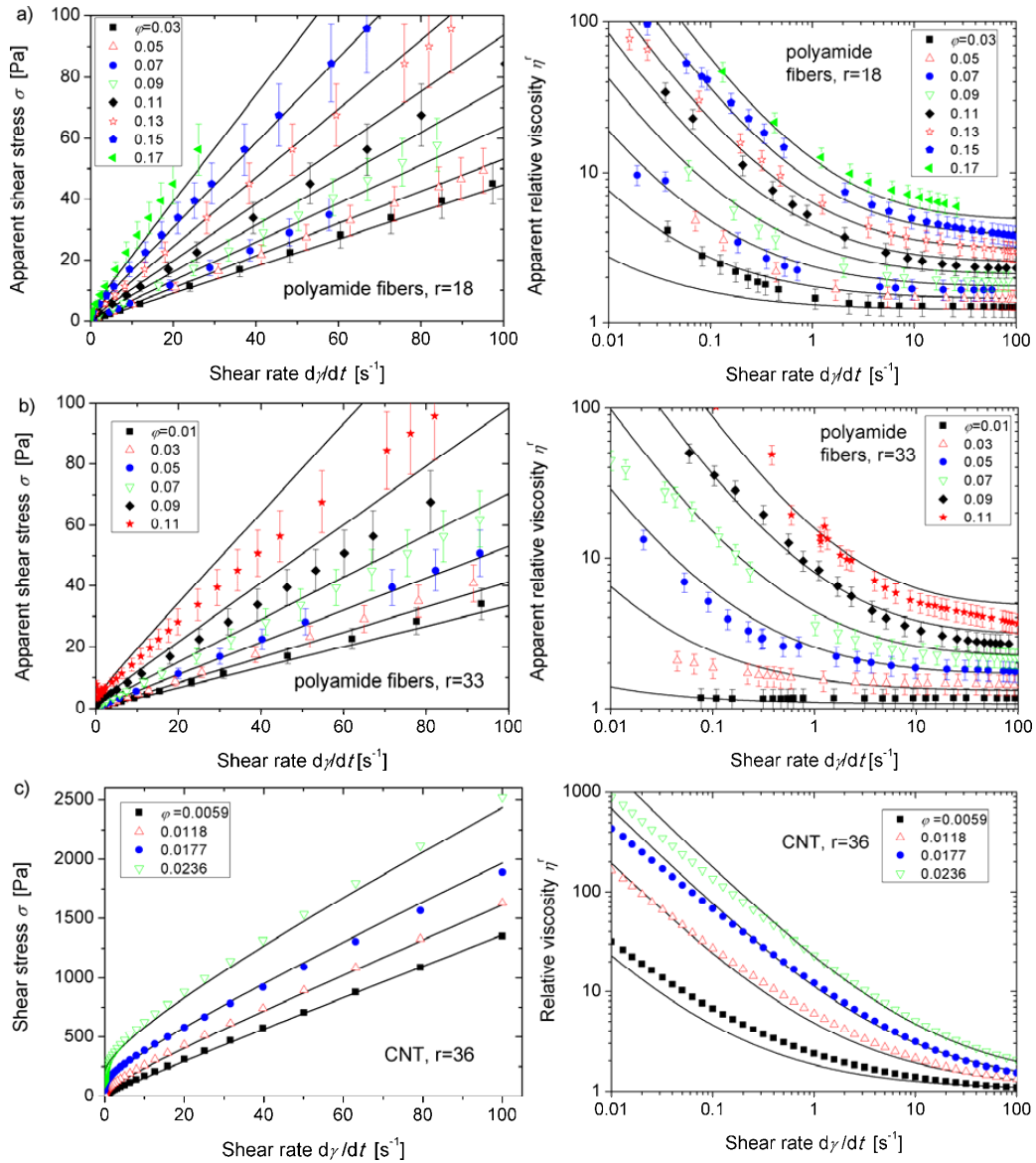


Fig. 6. Experimental and theoretical flow curves (left column) and viscosity versus shear rate dependences (right column) of different fiber suspensions at different particle volume fractions: PA microfibers with the particle aspect ratio equal to $r=18$ (a); PA microfibers with $r=33$ (b); and CNT with $r=36$ (c). Symbols correspond to experiments and solid lines – to the theory. The spherical aggregate shape is considered in the model and the values of the adjustable parameters are summarized in Table 4 in Appendix B.

All the theoretical and experimental flow curves shown on the left column in Fig. 6 share the following common features: (a) they show a shear-thinning behavior; (b) they are shifted upwards with increasing the particle concentration signifying an increase of the viscous dissipation. The main difference consists in the fact that the flow curves of the CNT suspensions possess a more pronounced initial rounded-shape segment [Fig. 6c] than the PA fiber suspensions [Figs. 6a-6b]. This means that the CNT suspensions experience a stronger shear thinning. We can notice that the rounded-shaped segment of CNT flow curves are observed at relatively low shear rates $\dot{\gamma} < 20 \text{ s}^{-1}$. They are followed by a quasi-linear segment at higher shear rates $\dot{\gamma} > 20 \text{ s}^{-1}$. Such a behavior can be understood in terms of the progressive destruction of the aggregates when the shear rate is increased and it is reproduced reasonably well by our model (solid lines on the left graph of Fig. 6c).

The observed shear thinning behavior can be better analyzed with the help of the shear rate dependency of the relative viscosity [right column of Fig. 6]. Let us first analyze the curves corresponding to the PA fiber suspensions and then compare them to those corresponding to the CNT suspensions. Qualitatively, for PA fibers, both the theory (solid curves) and experiments (symbols) reveal a rather strong shear thinning with an increase of the viscosity of more than one order of magnitude (compared to the high shear rate viscosity value) for the highest fiber concentrations. The high shear plateaus are well distinguished at relatively low particle volume fractions ($\varphi < 0.07$ at $r=18$ and $\varphi < 0.05$ at $r=33$). They are shifted to higher shear rate values when the particle volume fraction increases and disappear at the highest concentrations ($\varphi > 0.15$ at $r=18$ and $\varphi = 0.11$ at $r=33$). Such a shift is accompanied by a significant increase of the degree of shear thinning when the particle volume fraction becomes larger. These both concentration effects could be explained by an increasing role of the adhesive interactions between fibers when the particle volume fraction increases. Such concentration behavior is analyzed in details in Appendix C.

In what concerns the CNT suspensions [right graph on Fig. 6c], both theory and experiments also reveal a strong shear thinning with low shear viscosity at $\dot{\gamma} = 10^{-2} \text{ s}^{-1}$ being two-to-three orders of magnitude higher than the high-shear viscosity at $\dot{\gamma} = 10^2 \text{ s}^{-1}$. Estimation of the colloidal forces could clarify the reason behind a stronger shear thinning in CNT suspensions. By fitting the rheological curves to the experimental data, we obtain the value of the effective adhesive force F_A for PA fibers three orders of magnitude larger than for CNT [see Table 4, Appendix B], that is something expected because of the size difference between these two types of fibers. However, it is not the value F_A that directly affects the suspension viscosity but rather the ratio of colloidal to hydrodynamic forces N_A , or more precisely, the dimensionless factor $N_A r = F_A r / (\sigma d^2)$, as inferred from Eq. (14). At the same applied stress, σ , and nearly the same aspect ratio ($r=33$ for PA fibers and $r=36$ for CNT), the factor $N_A r$ for CNT is about $4 \cdot 10^3$ times higher than for PA fibers. At the same shear rate, say $\dot{\gamma} = 1 \text{ s}^{-1}$, and nearly the same volume fraction ($\varphi = 0.01$ for PA and 0.0118 for CNT), this difference reduces to 20 times because of much higher viscosity of the suspending liquid of

CNT. Both estimations indicate a more pronounced role of colloidal interactions between nanoscale CNT compared to micron-sized PA fibers. As a consequence, the CNT aggregates better resist to the shearing forces and give a higher viscosity at low shear rates and thus a higher decrease in viscosity between the low-shear and high-shear regimes.

As is seen in Fig. 6, the best agreement between the theory and experiments is obtained at intermediate particle concentrations for both PA fiber suspensions [Figs. 6a, 6b] and CNT suspensions [Fig. 6c]. Some mismatch at the lowest concentrations likely comes from a non-spherical shape of the aggregates caused by collisions between the fibers mostly aligned with the flow at low particle volume fractions. The discrepancy at the highest concentrations (especially pronounced for CNT fibers at $r=33$, left graph on Fig. 6b) can be related to different factors, such as (a) incorrect estimation of the high-shear viscosity under approximation of $\alpha_0 = 1$ [see discussion at the end of Sec. IV-B]; (b) multi-body instead of pair-wise interactions between fibers belonging to the free fiber population; (c) a more complex kinetics of aggregation/destruction rather than that considered in Sec. II-D. Despite of these disagreements, our model captures relatively well, both qualitatively and quantitatively, the shear thinning behavior of both the CNT and the PA fiber suspensions.

Finally, the obtained values of the adjustable parameters k [lubrication constant in Eq. (4)] and F_A allow *a posteriori* estimation of the inter-fiber separations h_H and h_A between the free fibers and between the aggregated fibers, respectively. The details of this estimation are reported in Appendix B. Briefly, we get $h_H = (0.24 - 0.34)d \approx 5 - 7 \mu\text{m}$ for free PA fibers and $h_A \sim (0.15 - 0.40)h_R \sim 2 \text{ nm}$ for aggregated fibers, with $d \approx 15 - 28 \mu\text{m}$ being the fiber diameter and $h_R \sim 5 - 14 \text{ nm}$ - surface roughness [Sec. III-A]. These values fit into the length scale ranges of hydrodynamic and colloidal interactions and justify the assumption (4) of Sec. II-A. In other words, the adhesive van der Waals forces are shown to be negligible between free fibers at the length scale h_H , as opposed to aggregated fibers separated by a short distance h_A . Note that the value $h_A \sim 2 \text{ nm}$ is somewhat lower than the fiber surface roughness h_R that likely indicates a close contact between fibers inside the aggregates with interlocking asperities. On the other hand, surface roughness is known to substantially increase the effective van der Waals attraction at close separations h_A between rough surfaces [73]. Therefore, the value of $h_A \sim 2 \text{ nm}$ is likely underestimated. The same conclusions hold for CNT suspensions.

IV-D. Yield stress

Theoretical flow curves of the fibers suspensions shown in Fig. 6 reveal some small yield stress, which appears to be higher in CNT suspensions than in PA fiber suspensions. Experiments on PA fiber suspensions conducted in a stress-control mode also showed some small but measurable yield stresses at high enough particle volume fractions ($\varphi \geq 0.07$ at $r=18$ and $\varphi \geq 0.05$ at $r=33$). Experiments on CNT were carried out by Natale *et al.* [34] in shear rate-control mode, not allowing a direct measurement of the yield stress. However,

potential yield stress for this suspension can be seen in flow curves plotted in a log-log scale – see Fig. 7. It is worth noticing that, in contrast to the results of Natale *et al.* [34], other authors report a non-negligible yield stress in suspensions of CNT dispersed in the Newtonian epoxy solvent [74, 75]. They attribute the yield behavior to appearance of the network of nanotubes having a higher aspect ratio ($80 < r < 1200$) than those used by Natale *et al.* ($r \approx 36$) and being less stiff.

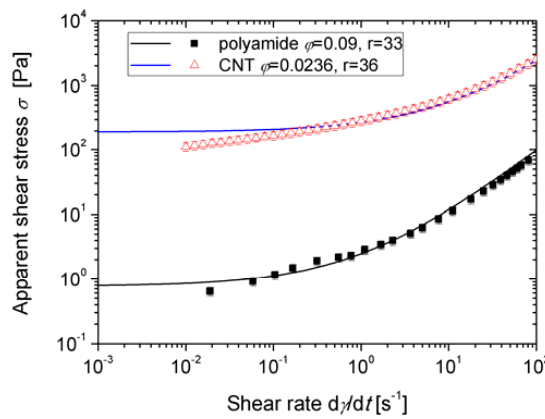


Fig. 7. Experimental and theoretical flow curves in log-log scale of PA microfibers with $r=33$ and $\varphi=0.09$ and CNT with $r=36$ and $\varphi=0.0236$. Symbols correspond to experiments and solid lines – to the theory. The spherical aggregate shape is considered in the model and the values of the adjustable parameters are summarized in Table 4 in Appendix B.

As is seen from this figure, a low shear plateau of the stress is predicted for both the PA fiber suspension ($r=33$ and $\varphi=0.09$) and the CNT suspension ($r=36$, $\varphi=0.0236$). The extrapolation of these plateaus to infinitely small shear rates gives the suspension yield stress. The experiments conducted for the CNT suspensions do not exhibit an explicit low shear plateaus, within the experimental range of shear rates $\dot{\gamma} > 10^{-2} \text{ s}^{-1}$. That is why it is rather impossible to confirm the existence of a yield stress in CNT suspensions, while it was well detected in PA fiber suspensions in controlled-stress mode. At nearly the same particle aspect ratio, the theoretical yield stress of the CNT suspension is two orders of magnitude higher than that of the PA fiber suspension even though the particle concentration of the PA fibers is almost four times larger than that of the CNT. For a deeper understanding of the yielding behavior, let us find an explicit expression for the predicted yield stress.

Similarly to the structural models of Snabre and Mills [41], Quemada and Berli [10], the yield stress arises in our model when the effective aggregate concentration $\varphi_a = \varphi \Phi_1 / \varphi_i$ approaches the value $\varphi_{m,a}$ of the random dense packing fraction of aggregates. Physically, when the shear rate is decreased, the aggregates get larger (more inflated) such that they finally touch each other and form an infinite spanning network at rest. In this sense, the model predicts the threshold stress, σ_{th} , below which the suspension is jammed when the applied stress is decreased. Thus, the proposed aggregation scenario is, to some extent, equivalent to

the network failure scenario of the yield stress. The difference lies in opposite directions of reaching the yield point. The network scenario considers a network breakup at increasing stress, while the aggregation scenario deals with the jamming at decreasing stress. If one assumes a reversible process of the network destruction (at increasing stress) and construction (at decreasing stress), both scenarios give the same magnitude σ_{th} , which can be assimilated to the yield stress. Absence of distinguishable flow curve hysteresis in our experiments allows us to use the value σ_{th} as an estimate of the yield stress σ_Y .

The condition $\varphi_a \approx \varphi_{m,a}$ is reached when the term in square brackets of Eqs. (7) and (14) tends to zero and the relative viscosity η_a^r diverges. Setting this term to zero and neglecting $1/\varphi_{m,i}^2$ in Eq. (14), the following expression for the yield stress is obtained:

$$\sigma_Y = \left(\frac{\varphi \Phi_1}{\varphi_{m,a}} \right)^2 \frac{32 F_A r}{5 \pi^2 \zeta d^2} \quad (27)$$

where $\zeta=1$ and $\varphi_{m,a} \approx 0.64$ for spherical aggregates. Notice that, the apparent yield stress measured for PA suspensions in the parallel plate geometry is 4/3 times the one given by Eq. (27), $\sigma_{Y,app} = (4/3)\sigma_Y$, as it follows from Eq.(26a). Such a correction is unnecessary for CNT suspensions measured in the cone-plate geometry.

The concentration behavior of the yield stress is defined by the product $(\varphi \Phi_1)^2$ of the particle volume fraction by the fraction Φ_1 of the free fibers. In general, Φ_1 is a monotonically growing but complicated function of φ [see Figure 11 in Appendix C]. A simple concentration dependency of the yield stress can be obtained in the low concentration limit, $\varphi \ll \varphi_{m,i} = 5.4/r$, for which Eq. (23) for Φ_1 reduces to

$$\Phi_1 \approx \frac{\alpha_0 \ln r}{\kappa} \varphi \quad (28)$$

where $\alpha_0 \approx 1$ is the orthokinetic capture efficiency and κ is an adjustable parameter intervening in Eq. (22). For this limit, the yield stress reads:

$$\sigma_Y \approx \left(\frac{\alpha_0 \varphi^2 \ln r}{\kappa \varphi_{m,a}} \right)^2 \frac{32 F_A r}{5 \pi^2 \zeta d^2} \propto \varphi^4 \quad (29)$$

To analyze the concentration behavior, we plot in Fig. 8 the theoretical dependency of the suspension yield stress on particle volume fraction in log-log scale for the three different suspensions used in experiments. We add to this graph the experimental data of the yield stress directly measured for PA fiber suspensions at high enough concentrations. The agreement between the theory and the experiments is rather poor likely because of a poor

precision of the yield stress determination at the stress values as low as 0.1 Pa. At low concentrations, all the theoretical curves for the three suspensions are linear in the log-log scale with a slope equal to four corresponding to the φ^4 -behavior established by Eq. (29). This concentration dependency becomes even stronger for the PA fibers when the particle volume fraction approaches the upper limit of the colloidal glass state $\varphi \rightarrow \varphi_{m,i} = 5.4/r$ - see the final sharp increase of the red and blue curves. This enhancement comes from a rapid increase of the Φ_1 versus φ dependency as $\varphi \rightarrow \varphi_{m,i}$ and $\Phi_1 \rightarrow 1$ [cf. Figure 11 in Appendix C]. The CNT suspensions follow a near cubic (φ^3) increase of the yield stress at intermediate concentrations, $5 \cdot 10^{-3} < \varphi < 0.1$, which is explained by $\Phi_1 \propto \varphi^{1/2}$ behavior observed at this concentration range in Figure 11. Such strong concentration effects on the yield stress have been previously observed in: (a) CNT suspensions with $\varphi^{2.1}$ to $\varphi^{3.2}$ behaviors for aspect ratios $r=80$ and 1200 , respectively [74, 75], (b) nanofibrillated cellulose suspensions with $\varphi^{3.1}$ [11], and (c) flexible pulp fiber suspensions with $\varphi^{2.5}$ to φ^5 -trend found between the experiments, theory and simulations [20, 21, 28, 76]. As already mentioned, the existence of a yield stress and the strong concentration effects for attractive flexible fiber suspensions are explained mostly by the interplay between the fiber bending and inter-fiber solid friction. In repulsive systems, the yield stress is interpreted as a stress required to overcome repulsive colloidal forces to continuously extract the fibers from the current network configuration to the new one [11]. The $\varphi^{3.1}$ behavior in these systems comes from the decrease in the Debye length and the variations in electrostatic potential with increasing concentration. In the case of attractive rigid fibers, considered in the present paper, the strong concentration effects appear as a result of the synergy between pair adhesive interactions between fibers constituting the aggregates and the degree of aggregation (characterized by Φ_1) increasing with the particle volume fraction due to a growing number of pair collisions.

Besides the strong concentration dependency, the yield stress is also a growing function of the fiber aspect ratio r and of the ratio F_A/d^2 of the effective adhesive force to the square of the fiber diameter [Eqs. (27) and (29)]. This explains the two following differences between the three curves in Fig. 8: (a) the yield stress of PA fiber suspension with $r=33$ is larger than that for $r=18$ because the magnitude $F_A r/d^2$ for the former suspension is four times larger than for the latter suspension; (b) the yield stress of the CNT suspension is two orders of magnitude larger than that of the PA fiber suspension at approximately the same particle aspect ratio ($r=33$ for PA and $r=36$ for CNT) because the ratio $F_A r/d^2$ is about 400 times smaller for the PA fibers than for the CNT. This is another confirmation of the important role of the colloidal interactions between nanoscale particles as compared to micron-sized ones.

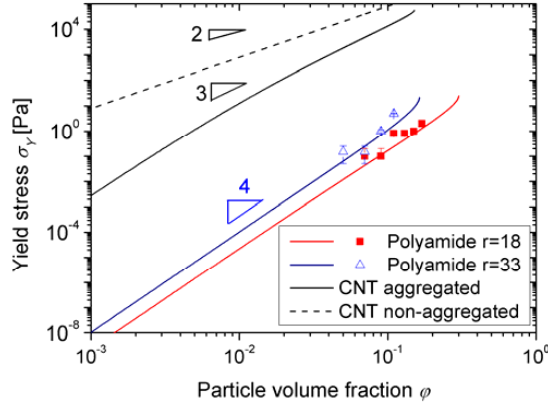


Fig. 8. Theoretical and experimental dependencies of the yield stress on the particle volume fraction for the three suspensions used in the experiments: PA fibers with $r=18$ (red curve); PA fibers with $r=33$ (blue curve), and CNT with $r=36$ (black solid line). The black dashed line corresponds to the model of non-aggregated suspension [36] applied to the CNT at $r=36$. The spherical aggregate shape is considered in the model. The values of the adjustable parameters summarized in Table 4 of Appendix B were used for the yield stress calculations. The symbols stand for the experiments with PA fibers

Finally, notice that our previous model, considering only non-aggregated fibers with frictional contacts, predicted a purely Bingham behavior with a yield stress given by the expression [36]:

$$\sigma_y = \frac{16}{\pi^2} \varphi^2 \frac{F_A r}{d^2} \quad (30)$$

with $F_A = \mu F$ and μ - friction coefficient. Both models give the same scaling for the yield stress, $\sigma_y \propto F_A r / d^2$. However, the present aggregation model provides a stronger concentration behavior (between φ^3 and φ^4 for low-to-moderate concentrations) than the model of non-aggregated fibers with $\sigma_y \propto \varphi^2$. To inspect the difference between the two models, a black dashed curve has been added to Fig. 8 corresponding to the model of non-aggregated fibers applied to the CNT suspension with the same parameters (d , r , F_A) as the ones taken for the black solid curve corresponding to the aggregation model. As expected, this new curve shows a weaker concentration behavior (with a slope equal to 2) than the solid curve with the slope ranging between 3 and 4. The model of non-aggregated fibers [36] does not reproduce an initial rounded shape of the flow curves observed in experiments [left graph on Fig. 6] but predicts a pure Bingham behavior. As a consequence, the yield stress predicted by that model (black dashed line) is much larger than the one found by the aggregation model of the present paper (black solid curve). In summary, both models need experimental approbation in strongly flocculated fiber suspensions.

V. Concluding remarks

This work is focused on shear thinning behavior of rigid non-Brownian fiber suspensions under the action of adhesive interactions between particles. Rheological experiments have been conducted with neutrally buoyant PA fiber suspensions. For the sake of comparison, the experimental data of Natale *et al.* [34] on suspensions of untreated multiwall CNTs dispersed in a Newtonian epoxy resin have also been analyzed. The experimental results can be summarized as follows:

- The steady-state flow curves of both PA and CNT fiber suspensions show a significant shear thinning with a decrease of the viscosity that can be larger than two orders of magnitude when the shear rate is increased from 0.1 to 100 s⁻¹. The degree of shear thinning has been found to increase with particle concentration, in accordance with experimental results of Mueller *et al.* [19].
- A small yield stress has been detected in PA fiber suspensions in controlled-stress measurements. The measurements in controlled-rate mode were unable to confirm the existence of a yield stress in suspensions of relatively short CNT ($r \approx 36$) used in experiments of Natale *et al.* [34]. However, other authors report a non-negligible yield stress related to formation of a network in suspensions of longer nanotubes ($80 < r < 1200$) [74, 75].
- Visualization experiments on PA suspensions reveal some spatial heterogeneity with denser domains separated by free fibers. The fibers belonging to these domains show a cooperative motion and some misalignment relatively to each other.

For a better understanding of these findings, a theoretical model has been developed allowing us to establish the relationship between the adhesive force between contacting fibers and the shear thinning behavior. The key points of the model are summarized as follows:

- The model considers two distinct populations of fibers: the population of fibers forming transient aggregates and the population of free fibers, as observed in visualization experiments with PA fibers.
- The dynamic equilibrium between both populations is governed by a simple second-order kinetic equation giving the fractions Φ_1 and Φ_2 of aggregated and free fibers.
- The particle volume fraction φ_i inside the aggregates is found from the balance of the tensile hydrodynamic force acting on the aggregates and of the total cohesive force preserving the aggregates from destruction.
- According to the developed fracture scenario, φ_i increases with the applied shear stress or shear rate. As a consequence, the concentration φ_a of the aggregates in the suspension decreases leading to a viscosity decrease with an increasing shear stress or shear rate.

This model has been tested against experimental results on PA fiber and CNT suspensions. The model seems to capture the main experimental behaviors of these two rather different systems:

- The enhancement of the shear thinning with increasing particle volume fraction has been confirmed and explained by the fact that both the adhesive interactions and the fraction Φ_1 of aggregated fibers increase with the particle concentration.

- A weak yield behavior of the PA fiber suspensions has been confirmed. According to our model, the yield stress comes from the liquid-solid transition as the aggregate concentration φ_a approaches the close packing limit $\varphi_{m,a}$ resulting in divergence of the viscosity as the shear rate goes to zero.
- The model reproduces a much stronger shear thinning in CNT suspensions than in PA ones, which is explained by a stronger role of adhesive interactions between nanoscale CNT particles than between micron-sized PA fibers.
- From a microscopic perspective, the short-ranged interactions between fibers are likely governed by two different length scales. Comparison between theoretical and experimental rheological response indicates that the interactions between free fibers are hydrodynamic with a characteristic length $h_H \sim d$, while the interactions between aggregated fibers are predominately adhesive (frictional or non-frictional) with $h_A \ll d$, where d is the fiber diameter.

Acknowledgements

The authors are grateful to Région Provence Alpes Côte d'Azur for funding one of us, to “La société nouvelle le flockage” for supplying the fibers. We are grateful to Dr. E. Peuvrel-Disdier and Dr. R. Castellani of Ecole des Mines de Paris for visualization experiments and to Prof. P.J. Carreau, Prof. M.C. Heuzey and Dr. G. Natale of Polytechnique Montréal for providing the data on CNT suspensions.

Appendix A. Cohesive strength of the aggregates

Let us suppose that the fracture region is localized in a plane layer of a width equal to the fiber length l and created by cutting the aggregate by two planes parallel to the middle fracture plane and separated from it by a distance $l/2$ [Fig. 1b]. Let the orientation of two contacting fibers inside the aggregates described by unit vectors the unit vectors \mathbf{p}^α and \mathbf{p}^β [Fig. 1c] and the direction of the aggregate rupture – by a unit vector \mathbf{e} oriented along the extension axis [Fig. 1b]. During the aggregate break-up, two possibilities of the contact rupture are considered on the basis of Assumption (5), as schematized in Fig. 9. In the case of normal rupture, the fibers are separated from each other along a unit vector \mathbf{n} perpendicular to their contact surface. Then, the cohesive force is the normal adhesive force \mathbf{F}_n aligned with \mathbf{n} . In the case of tangential rupture, the fibers slide along each other. In such a case, the cohesive force is the friction force \mathbf{F}_τ whose absolute value is proportional to the normal adhesive force, $F_\tau = \mu F_n$ [Eq. (3)] and whose orientation is opposed to the direction of motion of the contact point. This direction is characterized by a unit vector $\boldsymbol{\tau}$, which belongs to the plane $\alpha\beta$ (formed by the contacting fibers α and β) and oriented along the projection of the unit vector \mathbf{e} onto the plane $\alpha\beta$ [Fig. 9]. Let Θ be the angle that the unit vector \mathbf{e} makes with the unit vector \mathbf{n} . For a given contact point, the projection of the cohesive force onto the extension axis reads:

$$F_1 = \begin{cases} -F_n |\cos \Theta|, & \text{normal rupture;} \\ -\mu F_n |\sin \Theta|, & \text{tangential rupture} \end{cases} \quad (\text{A-1})$$

Here the minus sign appears because the cohesion force is opposed to the direction of the aggregate rupture. The e -component (along the extension axis) of the total cohesion force exerted on a test fiber α by all the neighboring fibers β is found by weighing the cohesion force [Eq. (A-1)] by the contact probability dP introduced by Doi and Edwards [77], Férec *et al.* [6]:

$$F_\alpha = \int F_1 dP \quad (\text{A-2})$$

$$dP = 2n_i d |\mathbf{p}^\alpha \times \mathbf{p}^\beta| ds_\alpha ds_\beta \psi_\beta d\mathbf{p}^\beta \quad (\text{A-3})$$

Where n_i is the number fraction of fibers inside the aggregates; ψ_β is the angular distribution function of the neighboring fibers β ; s_α and s_β are the distances between the contact point and the centers of the fibers α and β .

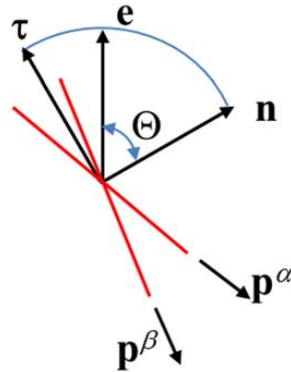


Fig. 9. Sketch for determination of the contact rupture

The resultant cohesive force (cohesive strength) acting on all N fibers situated in the fracture region is proportional to the product of the number of fibers N by the force F_α averaged over all possible orientations of the test fiber “ α ”:

$$\begin{aligned} F_c &= \frac{1}{2} N \int F_\alpha \psi_\alpha d\mathbf{p}^\alpha = \frac{1}{2} N (2n_i d) \int_{-1/2}^{1/2} ds_\alpha \int_{-1/2}^{1/2} ds_\beta \int_{\mathbf{p}^\alpha} \psi_\alpha d\mathbf{p}^\alpha \int_{\mathbf{p}^\beta} |\mathbf{p}^\alpha \times \mathbf{p}^\beta| F_1 \psi_\beta d\mathbf{p}^\beta = \\ &= -N n_i d l^2 F \times \begin{cases} \langle |\cos \Theta| \rangle, & \text{normal rupture;} \\ \mu \langle |\sin \Theta| \rangle, & \text{tangential rupture} \end{cases} \quad (\text{A-4}) \end{aligned}$$

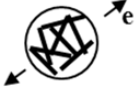


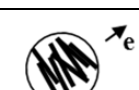
where ψ_α is the angular distribution function of the test fibers α ; F is the value of the normal colloidal force F_n for the angle between two fibers equal to $\delta = \pi/2$ [cf. Eq. (9)]; the factor (1/2) is introduced in order to avoid double counting of the contact force acting in the contact point

of a pair of fibers; the magnitudes $|\cos \Theta|$ and $|\sin \Theta|$ are averaged according to the rule $\langle X \rangle = \int_{\mathbf{p}^\alpha} \psi_\alpha d\mathbf{p}^\alpha \int_{\mathbf{p}^\beta} \psi_\beta X(\mathbf{p}^\alpha, \mathbf{p}^\beta) d\mathbf{p}^\beta$ and are found as function of the orientation vectors \mathbf{p}^α , \mathbf{p}^β and \mathbf{e} by the following expressions:

$$|\cos(\Theta)| = \frac{|\mathbf{e} \cdot (\mathbf{p}^\alpha \times \mathbf{p}^\beta)|}{|\mathbf{p}^\alpha \times \mathbf{p}^\beta|}, \quad |\sin \Theta| = \left[1 - \left(\frac{\mathbf{e} \cdot (\mathbf{p}^\alpha \times \mathbf{p}^\beta)}{|\mathbf{p}^\alpha \times \mathbf{p}^\beta|} \right)^2 \right]^{1/2} \quad (\text{A-5})$$

The average values $\langle |\cos \Theta| \rangle$ and $\langle |\sin \Theta| \rangle$ depend on the orientation state inside the aggregates and are summarized in Table 3.

Table 3. Values of $\langle |\cos \Theta| \rangle$, $\langle |\sin \Theta| \rangle$ and ξ for different considered cases

Orientation state	Sketch	$\langle \cos \Theta \rangle$	$\langle \sin \Theta \rangle$	Rupture scenario	$\xi = F_A / F$
Isotropic		$\frac{1}{2}$	$\frac{\pi}{4}$	normal	$\frac{1}{2}$
Isotropic		$\frac{1}{2}$	$\frac{\pi}{4}$	tangential	$\frac{\pi}{4} \mu$
Nearly aligned along \mathbf{e}		$O(r^{-1})$	≈ 1	tangential	μ
Nearly aligned, perpendicular to \mathbf{e}		≈ 1	$O(r^{-1})$	normal	1

To get the final expression for the cohesive strength, we find the number of fibers N and their number density n_i in the fracture region as follows:

$$n_i = \frac{\varphi_i}{V_f} = \frac{4\varphi_i}{\pi d^2 l}; \quad N = n_i V_{fracture} \approx \frac{4\varphi_i}{\pi d^2 l} \frac{\pi D^2 l}{4} = \varphi_i \frac{D^2}{d^2}, \quad (\text{A-6})$$

where V_f is the fiber volume, φ_i is the internal volume fraction of aggregates, and $V_{fracture}$ is the volume of the fracture zone of a thickness l and diameter D [Fig.1b].

Substituting Eq. (A-6) into Eq. (A-5) and using appropriate values of $\langle |\cos \Theta| \rangle$ and $\langle |\sin \Theta| \rangle$ [Table 3], we get the final expression [Eq. (11)] for the cohesive strength. The effective adhesive force $F_A = \xi F$ introduced into this expression generalizes different considered cases through the multiplier ξ whose values are summarized in Table 3, as function of the chosen contact rupture scenario and orientation state.

For realistic values $0.3 < \mu < 0.5$ of the friction coefficient, the cohesive force between fibers, F or μF , is of the same order of magnitude for both rupture mechanisms.

To check whether the fiber orientation strongly influences the cohesive strength of the aggregates, in addition to the assumed isotropic state (Assumption 7.1) we consider a nearly aligned state, in which case the condition $\langle \sin \delta \rangle = \langle |\mathbf{p}^\alpha \times \mathbf{p}^\beta| \rangle \geq r^{-1}$ holds and the equations (9) and (A.3) are still valid [60]. We assume that the aggregate rupture occurs when the fibers are either aligned with the extension axis or perpendicular to it. In the first case, the fibers slide along extension axis during the aggregate break-up. This corresponds to the tangential rupture scenario. In the second case, the fibers move apart in the direction normal to the contact surface; normal rupture scenario is expected [cf. sketches in Table 3]. In both these cases of the aligned orientation, the cohesive strength of the aggregate appears to be very close to the one found for isotropic orientation. This is because: (a) the product of the number of contacts by the adhesive force of a pair of fibers is independent of the orientation scalar $f_1 = \langle |\mathbf{p}^\alpha \times \mathbf{p}^\beta| \rangle$ [cf. discussion at the end of Sec. II-C], and (b) $\langle |\cos \Theta| \rangle$ and $\langle |\sin \Theta| \rangle$ vary between $\frac{1}{2}$ and 1 for different orientations, while the value $O(r^{-1})$ is excluded from consideration because it does not contribute to the cohesive strength.

A relatively small variation of ξ (which is of the order of unity) allows us to apply the obtained results to intermediate states where (1) normal rupture of contacts coexist with tangential rupture during the aggregate break-up; and (2) the orientation state inside the aggregate is arbitrary. In those cases, an appropriate value of the parameter ξ , that fits into the range $\min(1/2, \pi\mu/4) \leq \xi \leq \max(1, \mu)$, should be chosen.

Note finally that if the aggregate size is of the order of the fiber length, the whole aggregate is expected to be disintegrated into individual fibers rather than be broken in parts. However, the number of ruptured contacts and, consequently, the aggregate cohesive strength are still correctly estimated using the above considered fracture scenario.

Appendix B. Adjustable parameters and estimation of h_H and h_A gaps

The set of the adjustable parameters (k, F_A, κ) is summarized in Table 4. The values of the first adjustable parameter k [lubrication constant, Eq. (4)] for the PA fibers were chosen similar to those used for the fit of the concentration dependencies of the high-shear viscosity [cf. Fig. 5]. This constant could be related to average gap h_H between the free fibers by

comparing the phenomenological lubrication law [Eq. (4)] with the theoretical one established for two perfectly smooth cylindrical surfaces giving the following expression for the force [78]:

$$\mathbf{F}_{\text{lub}} = \frac{3\pi\eta_0 d^2 \mathbf{u}}{|\mathbf{p}^\alpha \times \mathbf{p}^\beta| h_H} \quad (\text{B-1})$$

where d is the fiber diameter. Equalizing the right-hand parts of Eqs. (4) and (B-1), we arrive at the following estimate of the parameter k :

$$k = 3\pi d / h_H \quad (\text{B-2})$$

Using the values of k obtained by fitting our theory to experiments, we estimate the values of the gap h_H to be about 5-7 μm for PA suspensions and 7 nm for CNT suspensions. These values are reported in Table 4 along with other length scales. As is seen from the comparison of the characteristic lengths d , h_H and h_R , the obtained value of the hydrodynamic gap h_H fits to the length scale of lubrication forces $h_r \ll h_H < d$, *a priori* supposed between free fibers.

Table 4. Adjustable parameters of the model and different length scales

Sample	Lubri- cation const k	Effective adhesive force F_A [N]	Correction factor [Eq.(23)] κ	Length scales			
				Fiber diameter d [μm]	Roughness h_R [μm]	Gap (hydro) h_H [μm]	Gap (adhesive) h_A [μm]
PA, $r=18$	40	$5.7 \cdot 10^{-9}$	1	27.8 ± 0.5	$(5 \pm 2) \cdot 10^{-3}$	6.6	$2.0 \cdot 10^{-3}$
PA, $r=33$	28	$2.8 \cdot 10^{-9}$	1	15.2 ± 0.5	$(14 \pm 4) \cdot 10^{-3}$	5.1	$2.1 \cdot 10^{-3}$
CNT	20	$8.5 \cdot 10^{-12}$	0.1	0.014*	N/A	$6.6 \cdot 10^{-3}$	$1.2 \cdot 10^{-3}$

* Peak value of the CNT diameter

The values of the second adjustable parameter, F_A , allow us to estimate the gap h_A between aggregated fibers. Assuming van der Waals adhesive interaction, the value of h_A is obtained from Eq. (10), in which the Hamaker constant is of the order $A \sim 10^{-20}$ J for both PA and CNT suspensions (cf. Sec. B of Supplemental Materials) [43] and F is replaced by $F_A = \xi F$ taking into account that the multiplier ξ is of the order of unity [cf. Appendix A]. We get the values of h_A about 2 nm for PA fibers and 1 nm for CNT suspensions, as reported in Table 4. The value for PA fibers is smaller than their surface roughness and, as explained in Sec. IV-C, could have been underestimated because Eq. (10) under-predicts the van der Waals force at the roughness scale. The roughness of CNT is unknown.

It is worth noticing that, the chosen values of our adjustable parameter $F_A \sim (3-6) \cdot 10^{-9}$ N approach the values of the adhesive force measured by Chaouche and Koch [17] for PA fibers dispersed either in a silicon oil, $F \sim 10^{-8}$ N or in a water-glycerol solution, $F \sim 10^{-7}$ N and having nearly the same size as the ours.

Finally, the dimensionless correction factor κ , appearing in Eqs. (23), (24) for fiber fractions Φ_1 and Φ_2 , is set to unity ($\kappa=1$) for PA fibers of both aspect ratios ($r=18$ and 33). This parameter is set to 0.1 for CNT suspensions – a value ten times lower than the one used for PA fibers. A lower parameter $\kappa = k_2/k_1$ stands for higher aggregation rate or lower destruction rate [cf. Eq.(22)] in CNT suspensions. This is qualitatively consistent with our previous argument on more important role of colloidal interactions between nanoscale CNT particles as compared to micron-sized PA fibers [Section IV-C].

Appendix C. Low-shear concentration behavior

At low shear rates, the suspensions are expected to be highly aggregated, and their concentration behavior is expected to differ from that shown on Fig. 5 for high shear rates. Volume fraction dependencies of the apparent relative viscosity at the fixed shear rate equal to $\dot{\gamma}=0.1 \text{ s}^{-1}$ are plotted on Fig. 10a for both the PA fiber (at $r=18$ and 33) and CNT suspensions. The CNT suspensions with $r=36$ show a much stronger increase in viscosity with concentration growth than the PA fiber suspension with $r=33$ despite the fact that both particles have nearly the same effective aspect ratio and relatively close values of the lubrication constant ($k=28$ for PA and $k=20$ for CNT). At high shear rates, both suspensions would have nearly the same $\eta^r(\varphi)$ -dependency. At low shear rates, the difference comes from the adhesive interactions between CNT particles that are larger than between PA fibers. Our model (solid lines in Fig. 10a) reproduces rather well this difference.

In order to better appreciate the concentration effect on the low shear viscosity, the ratio $\eta^r(0.1 \text{ s}^{-1})/\eta^r(100 \text{ s}^{-1})$ of the low shear viscosity to the high shear viscosity is plotted against particle volume fraction in Fig. 10b for the three considered suspensions. The viscosity ratio appears to be a growing function of the particle concentration for the three suspensions meaning that the suspensions are much more shear-thinning at high concentrations than at low concentrations. Such concentration enhancement of the shear thinning comes from the synergy of the two following effects: (a) adhesive interactions between fibers give a stronger than linear concentration behavior of the suspension viscosity [cf. Eq. (14)]; (b) the fraction Φ_1 of aggregated fibers monotonically increases with the particle concentration [cf. Eq. (23)] providing a further increase in viscosity.

40

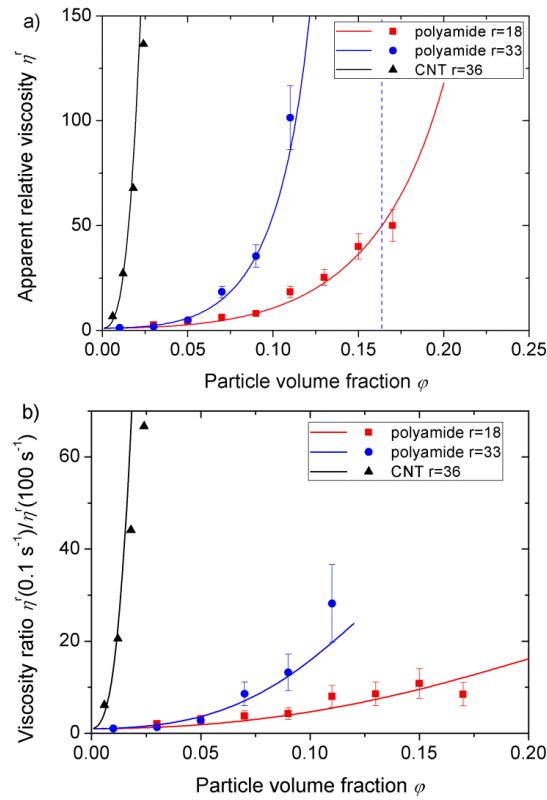


Fig. 10. Theoretical and experimental dependences of the apparent relative viscosity of fiber suspensions on the particle volume fraction at low shear rate $\dot{\gamma} = 0.1 \text{ s}^{-1}$ (a). The concentration dependencies of the ratio of low-shear-to-high-shear viscosity $\eta^r(0.1 \text{ s}^{-1})/\eta^r(100 \text{ s}^{-1})$ are shown in figure (b). Symbols – experiment, solid lines – theory. The vertical blue dashed line stands for the upper concentration limit $\phi_{m,i} \approx 0.16$ for the PA fiber suspension with $r=33$. The aggregates are supposed spherical and the values of the adjustable parameters are summarized in Table 4 of Appendix B.

In order to better illustrate the second effect, the theoretical dependency of the fraction Φ_1 of aggregated fibers on the particle volume fraction is plotted in Figure 11 for the three considered suspensions.

41

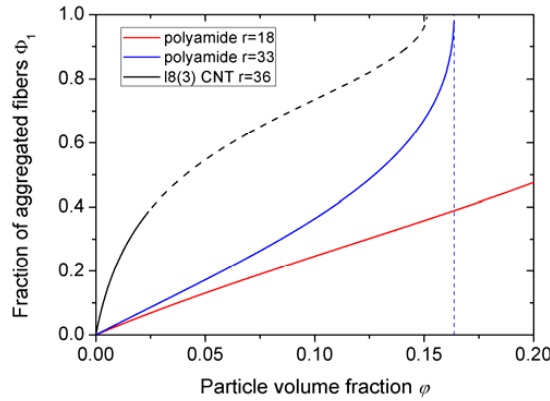


Fig. 11. Theoretical dependences of the fraction of aggregated fibers on the particle volume fraction of the suspension. The black dashed line stands for the extension of the theoretical Φ_1 versus φ dependency beyond the concentration range $\varphi \leq 0.0236$ used in experiments with CNT. The vertical blue dashed line stands for the upper concentration limit $\varphi_{m,i} \approx 0.16$ of the PA fiber suspension with $r=33$. The aggregates are supposed spherical and the values of the adjustable parameters are summarized in Table 4 in Appendix B.

Figure 11 deserves some comments. Firstly, a quasi linear increase of the Φ_1 versus φ dependency for PA fibers at $r=18$ follows from Eq. (28) valid at low concentrations. Secondly, a rapid growth of Φ_1 with φ is observed for PA fibers with $r=33$ and for CNT suspensions when the concentration of these both suspensions attain the upper limit of the colloidal glass state, $\varphi \rightarrow \varphi_{m,i} = 5.4/r$ and the fraction Φ_1 tends to unity. Thirdly, the suspension of PA fibers is more aggregated (possess higher Φ_1 values) at higher aspect ratio. This effect comes from the fact that the suspensions of higher aspect ratios have a lower maximum concentration, $\varphi_{m,i} = 5.4/r$, therefore they approach complete aggregation ($\Phi_1 = 1$) at lower concentrations. Finally, stronger aggregation state (higher values of Φ_1) for the CNT suspensions is produced by the lower value of the adjustable parameter κ intervening into the expression for Φ_1 [Eq. (23)]. It is clear that this constant should be a growing function of the aggregation parameter $N_A = F_A/(\sigma d^2)$, however, at this moment we are unable to predict this dependency.

References

- [1] Agassant J.F., P. Avenas, J.P. Sergent, B. Vergnes, and M. Vincent. « *La mise en forme des matières plastiques* » (Lavoisier, TEC & DOC, 1996).
- [2] Jeffery, G. B. "The motion of ellipsoidal particles immersed in a viscous fluid". Proc. Royal Soc. London A **102**, 161-179 (1922).
- [3] Larson R. G., "The Structure and Rheology of Complex Fluids" (Oxford University Press, 1999).
- [4] Petrie C. J. The rheology of fibre suspensions. J. NonNewt. Fluid. Mech. **87**, 369-402 (1999)

- [5] Djalili-Moghaddam, M., and Toll S. “A model for short-range interactions in fibre suspensions”. *J. NonNewt. Fluid. Mech.* **132**, 73-83 (2005).
- [6] Férec, J., Ausias, G., Heuzey, M. C., and Carreau, P. J. “Modeling fiber interactions in semiconcentrated fiber suspensions.” *J. Rheol.* **53**, 49-72 (2009)
- [7] Sundararajakumar, R. R., and Koch, D. L. “Structure and properties of sheared fiber suspensions with mechanical contacts”. *J. NonNewt. Fluid Mech.* **73**, 205-239 (1997).
- [8] Lindström, S. B., and Uesaka, T. A., “Numerical investigation of the rheology of sheared fiber suspensions”, *Phys. Fluids* **21**, 083301 (2009).
- [9] Snook, B., Davidson, L. M., Butler, J. E., Pouliquen, O., and Guazzelli, E. “Normal stress differences in suspensions of rigid fibres”. *J. Fluid Mech.* **758**, 486-507 (2014).
- [10] Quemada, D., and Berli, C. “Energy of interaction in colloids and its implications in rheological modeling”. *Adv. Coll. Int. Sci.*, **98**, 51-85 (2002)
- [11] Martoša, F., Dumont, P. J. J., Orgéas, L., Belgacem, M. N., and Putaux, J. L. « Micro-mechanics of electrostatically stabilized suspensions of cellulose nanofibrils under steady state shear flow”. *Soft Matter* **12**, 1721-1735 (2016).
- [12] Raghavan, S. R., and Douglas, J. F. “The conundrum of gel formation by molecular nanofibers, wormlike micelles, and filamentous proteins: gelation without cross-links?” *Soft Matter* **8**, 8539-8546 (2012).
- [13] Solomon, M. J., and Boger, D. V. “The rheology of aqueous dispersions of spindle-type colloidal hematite rods”, *J. Rheol.* **42**, 929-949 (1998).
- [14] Michot, L. J., Baravian, C., Bihannic, I., Maddi, S., Moyne, C., Duval, J. F., Levitz P., and Davidson, P. “Sol– Gel and Isotropic/Nematic Transitions in Aqueous Suspensions of Natural Nontronite Clay”. Influence of Particle Anisotropy. 2. Gel Structure and Mechanical Properties,” *Langmuir* **25**, 127-139 (2008).
- [15] Wierenga, A., Philipse, A. P., Lekkerkerker, H. N., and Boger, D. V. “Aqueous dispersions of colloidal boehmite: Structure, dynamics, and yield stress of rod gels”, *Langmuir* **14**, 55-65 (1998)
- [16] Mongrue, A., and Cloitre, M. “Shear viscosity of suspensions of aligned non-Brownian fibres”. *Rheol. Acta* **38**, 451-457 (1999).
- [17] Chaouche, M., and Koch, D. L. “Rheology of non-Brownian rigid fiber suspensions with adhesive contacts”. *J. Rheol.* **45**, 369-382 (2001).
- [18] Bergström, L. “Shear thinning and shear thickening of concentrated ceramic suspensions.” *Colloids and Surfaces A* **133**, 151-155 (1998).
- [19] Mueller, S., Llewellyn, E. W., and Mader, H. M. “The rheology of suspensions of solid particles.” *Proc. Royal Soc. London A* **466**, 1201-1228 (2009).
- [20] Bennington, C. P. J., Kerekes, R. J., and Grace, J. R. “The yield stress of fibre suspensions”. *Canad. J. Chem. Eng.*, **68**, 748-757 (1990).
- [21] Cui, H., and Grace, J. R. “Flow of pulp fibre suspension and slurries: A review”. *Int. J. Multiphase Flow*, **33**, 921-934 (2007).
- [22] Song, Y. S., and Youn, J. R.” Influence of dispersion states of carbon nanotubes on physical properties of epoxy nanocomposites”, *Carbon* **43**, 1378-1385. (2005).
- [23] Fan, Z., and Advani, S. G. “Rheology of multiwall carbon nanotube suspensions”,

- J.Rheol. **51**, 585-604 (2007).
- [24] Wolf, B., White, D., Melrose, J. R., and Frith, W. J. "On the behaviour of gelled fibre suspensions in steady shear". *Rheol. Acta* **46**, 531-537 (2007).
- [25] Schmid, C. F., and Klingenberg, D. J. "Mechanical flocculation in flowing fiber suspensions", *Phys. Rev. Lett.* **84**, 290-293 (2000).
- [26] Switzer III L. H., and Klingenberg, D. J. "Flocculation in simulations of sheared fiber suspensions". *Int. J. Multiphase Flow* **30**, 67-87 (2004).
- [27] Toll, S., and Månson, J. A. E. "Dynamics of a planar concentrated fiber suspension with non-hydrodynamic interaction", *J. Rheol.* **38**, 985-997 (1994).
- [28] Servais, C., Månson, J. A. E., and Toll, S. "Fiber-fiber interaction in concentrated suspensions: Disperse fibers". *J. Rheol.* **43**, 991-1004 (1999).
- [29] Keshkar M., MC Heuzey, and PJ Carreau. "Rheological behavior of fiber-filled model suspensions: effect of fiber flexibility," *J. Rheology* **53**, 631-650 (2009).
- [30] Ma, W. K. A., Chinesta, F., Ammar, A., and Mackley, M. R. "Rheological modeling of carbon nanotube aggregate suspensions", *J. Rheol.* **52**, 1311-1330 (2008)
- [31] Chinesta F., "From Single-Scale to Two-Scales Kinetic Theory Descriptions of Rods Suspensions," *Archives of Computational Methods in Engineering* **20**, 1-29 (2013)
- [32] Abisset-Chavanne, E., Mezher, R., Le Corre, S., Ammar, A., and Chinesta, F. "Kinetic theory microstructure modeling in concentrated suspensions", *Entropy*, **15**, 2805-2832 (2013).
- [33] Abisset-Chavanne, E., Chinesta, F., Ferec, J., Ausias, G., and Keunings, R. "On the multiscale description of dilute suspensions of non-Brownian rigid clusters composed of rods." *J. NonNewt Fluid. Mech.* **222**, 34-44 (2015)
- [34] Natale G., M. C. Heuzey, and P. J. Carreau, G. Ausias and J. Férec, "Rheological Modeling of Carbon Nanotube Suspensions with Rod-Rod Interactions» *AIChE J.* **60**, 1476-1487 (2014)
- [35] Férec J., A. Perrot and G. Ausias, "Toward modeling anisotropic yield stress and consistency induced by fiber in fiber-reinforced viscoplastic fluids", *J.NonNewt. Fluid Mech.* **220**, 69-76 (2015).
- [36] Bounoua S., E. Lemaire, J. Férec, G. Ausias, A. Zubarev, and P. Kuzhir, "Apparent yield stress in rigid fibre suspensions: The role of van der Waals interactions," submitted (2016)
- [37] Khalkhal, F., P. J. Carreau, and G. Ausias, Effect of flow history on linear viscoelastic properties and the evolution of the structure of multiwalled carbon nanotube suspensions in an epoxy. *J. Rheol.* **55**, 153-175 (2011).
- [38] Genovese D. B., "Shear rheology of hard-sphere, dispersed, and aggregated suspensions, and filler-matrix composites." *Adv. Coll. Int. Sci.* **171-172**, 1-16 (2012)
- [39] Rahatekar, S. S., Koziol, K. K. K., Butler, S. A., Elliott, J. A., Shaffer, M. S. P., Mackley, M. R., and Windle, A. H. "Optical microstructure and viscosity enhancement for an epoxy resin matrix containing multiwall carbon nanotubes". *J. Rheol.* **50**, 599-610 (2006).
- [40] Vaccaro A. and G. Marrucci, "A model for the nonlinear rheology of associating polymers," *J. Non-Newt. Fluid Mech.* **92**, 261-273 (2000).

- [41] Snabre P. and P. Mills, “I. Rheology of weakly flocculated suspensions of rigid particles”, *Journal de Physique III* **6**, 1811-1834 (1996)
- [42] Supplemental Material: Extension of the theoretical model to non-spherical aggregates (Sec. A); Estimations of different parameters related to polyamide fiber suspensions and of the Hamaker constant for carbon nanotube suspensions (Sec. B)
- [43] Hartmann V., J. Vermant, E. Heinrich, J. Mewis and P. Moldenaers, “Effects of particles on the steady state and transient rheology of lyotropic hydroxypropylcellulose solutions”, *J.Rheol.* **44**, 1417-1432 (2000).
- [44] Bowden, F. P., and Tabor, D. “*The friction and lubrication of solids. Part. II.*” (Oxford University Press, London, 1964).
- [45] Petrich, M. P., and Koch, D. L. “Interactions between contacting fibers”, *Phys. Fluids* **10**, 2111-2113 (1998).
- [46] Stone, T. W., Horstemeyer, M. F., Hammi, Y., and Gullett, P. M. “Contact and friction of single crystal nickel nanoparticles using molecular dynamics”, *Acta Materialia*, **56**, 3577-3584 (2008).
- [47] Fujita, M., and Yamaguchi, Y. “Simulation model of concentrated colloidal nanoparticulate flows”. *Phys. Rev. E* **77**, 026706 (2008)
- [48] Gallier, S., Lemaire, E., Peters, F., and Lobry, L. “Rheology of sheared suspensions of rough frictional particles”, *J. Fluid Mech.*, **757**, 514-549 (2014)
- [49] Philipse, A. P., and Wierenga, A. M. “On the density and structure formation in gels and clusters of colloidal rods and fibers”. *Langmuir* **14**, 49-54 (1998).
- [50] Solomon, M. J., and Spicer, P. T. “Microstructural regimes of colloidal rod suspensions, gels, and glasses.” *Soft Matter* **6**, 1391-1400 (2010).
- [51] Guiraud, O., Orgéas, L., Dumont, P. J. J., and du Roscoat, S. R. “Microstructure and deformation micromechanisms of concentrated fiber bundle suspensions: An analysis combining X-ray microtomography and pull-out tests”. *J. Rheol.*, **56**, 593-623 (2012)
- [52] Rahnama, M., Koch, D. L., and Shaqfeh, E. S. “The effect of hydrodynamic interactions on the orientation distribution in a fiber suspension subject to simple shear flow.” *Phys. Fluids* **7**, 487-506 (1995)
- [53] Leal, L. G., and Hinch, E. J. “The effect of weak Brownian rotations on particles in shear flow,” *J. Fluid. Mech.* **46**, 685-703 (1971).
- [54] Brenner H., “Rheology of a dilute suspension of axisymmetric Brownian particles”, *Int. J. Multiphase Flow* **1**, 195-341 (1974)
- [55] Batchelor, G. K. “Slender-body theory for particles of arbitrary cross-section in Stokes flow”. *J. Fluid Mech*, **44**, 419-440 (1970).
- [56] Barnes H.A, J.F. Hutton, and K. Walters, “*An introduction to rheology*” (Elsevier, Amsterdam, 1989)
- [57] Björkman, U. “Break-up of suspended fibre networks”. *Nordic Pulp and Paper Research Journal* **18**, 32-37 (2003)
- [58] Karppinen, A., Saarinen, T., Salmela, J., Laukkanen, A., Nuopponen, M., and Seppälä, J. “Flocculation of microfibrillated cellulose in shear flow”. *Cellulose* **19**, 1807-1819 (2012).
- [59] Bagster, D. F., and Tomi, D. “The stresses within a sphere in simple flow fields.” *Chem.*

- Eng. Sci. **29**, 1773-1783 (1974)
- [60] Van der Schoot, P., and Odijk, T. "Statistical theory and structure factor of a semidilute solution of rodlike macromolecules interacting by van der Waals forces". J. Chem. Phys., **97**, 515-524 (1992).
- [61] Toll, S. "Note: On the tube model for fiber suspensions". J. Rheol. **37**, 123-125 (1993)
- [62] Balberg I., C. H. Anderson, S. Alexander and N. Wagner, "Excluded volume and its relation to the onset of percolation", Phys. Rev. B **30**, 3933-3943 (1984)
- [63] Russell, W. B., D. A. Saville, and W. R. Schowalter, "*Colloidal dispersions*" (Cambridge University Press, Cambridge, 1989)
- [64] Vincze A., L. Demko, M. Vörös, M. Zrinyi, M. N. Esmail, and Z. Horvölgyi, "Two-Dimensional Aggregation of Rod-Like Particles: A Model Investigation", J. Phys. Chem. B **106**, 2404-2414 (2002)
- [65] Puisto A., Illa X., Mohtaschemi M., Alava M.J. "Modeling the viscosity and aggregation of suspensions of highly anisotropic nanoparticles". Eur. Phys. J.E **35**, 1-7 (2012).
- [66] Singh V., D. L. Koch, and A. D. Stroock, "Ideal Rate of Collision of Cylinders in Simple Shear Flow", Langmuir **27**, 11813–11823 (2011)
- [67] Van de Ven, T. G. M., "*Colloidal Hydrodynamics*" (Academic, London, 1989).
- [68] Supplemental Material: MP4-video (best viewed in Google Chrome or Safari browsers) showing the shearing of the suspension of fiber volume fraction $\phi=0.05$ and aspect ratio $r=18$ at 0.3 s^{-1} and at the gap between moving plates fixed to three fiber lengths.
- [69] Macosko, Ch. W., "*Rheology: Principles, Measurements, and Applications*" (Wiley-VCH, Inc., New York, 1994)
- [70] Chapman B. "Shear-induced migration phenomena in concentrated suspensions" PhD Thesis, University of Notre Dame, US (1990)
- [71] Chow, A. W., Sinton, S. W., Iwamiya, J. H., and Stephens, T. S. "Shear-induced particle migration in Couette and parallel-plate viscometers: NMR imaging and stress measurements". Phys. Fluids **6**, 2561-2576 (1994)
- [72] Dbouk, T., Lobry, L., and Lemaire, E. "Normal stresses in concentrated non-Brownian suspensions". J. Fluid. Mech. **715**, 239-272 (2013).
- [73] Suresh, L., and Walz, J. Y. "Effect of surface roughness on the interaction energy between a colloidal sphere and a flat plate". J. Coll. Int. Sci. **183**, 199-213 (1996)
- [74] Rahatekar S.S., K.K. Koziol, S.R. Kline, E.K. Hobbie, J.W. Gilman, and A.H. Windle, "Length-dependent mechanics of carbon-nanotube networks," Adv. Mater. **21**, 874-878 (2009)
- [75] Hobbie E.K., "Shear rheology of carbon nanotube suspensions", Rheol. Acta **49**, 323-334 (2010)
- [76] Switzer III L. H. and D. J. Klingenberg, "Rheology of sheared flexible fiber suspensions via fiber-level simulations", J. Rheol. **47**, 759-778 (2003)
- [77] Doi, M., and S. F. Edwards, "*The Theory of Polymer Dynamics*" (Oxford University Press, New York, 1986).
- [78] Yamane Y., Y. Kaneda, and. M. Doi, "Numerical simulations of semi-dilute suspensions of rodlike particles in shear flow", J. NonNewt. Fluid. Mech. **54**, 405-421 (1994)

Contraintes normales et migration dans les suspensions de fibres concentrées

6.1 Introduction

Ce chapitre est consacré à l'étude des différences de contraintes normales dans les suspensions de fibres. Nos expériences sont réalisées en écoulement torsionnel et grâce à un dispositif inédit que nous avons mis en place : le plan fixe est équipé d'un réseau de capteurs de pression. Quatre capteurs permettent de mesurer directement la contrainte normale de la suspension dans la direction du gradient de vitesse, Σ_{22} , et quatre autres capteurs à grilles qui retiennent les fibres permettent de mesurer la pression dans le liquide interstitiel. En déterminant le profil radial de Σ_{22} total, nous sommes en mesure de déduire les deux différences de contraintes normales à partir de la résolution de l'équation de Stokes (équation (1.29)). Les contraintes normales d'origine particulière quant à elles sont obtenues en soustrayant la pression interstitielle aux contraintes normales totales. Ce chapitre comprend deux parties, la première partie concerne les mesures de différences de contraintes normales dans la suspension et est présentée sous forme d'un article récemment publié dans *Journal of Rheology*. La seconde partie de ce chapitre est consacrée à l'étude des contraintes normales particulières. Nous présentons quelques résultats préliminaires et la mise en évidence de phénomènes de migration induite par un écoulement dans les suspensions de fibres.

6.2 Mesure des différences de contraintes normales



Normal stress differences in non-Brownian fiber suspensions

Sihem Bounoua, Pavel Kuzhir, and Elisabeth Lemaire^{a)}

LPMC UMR 7336, CNRS Université de Nice Sophia-Antipolis, Parc Valrose, 06108 Nice cedex 2, France

(Received 21 September 2015; final revision received 20 April 2016; published 21 June 2016)

Abstract

In this paper, we present an experimental study of the normal stress differences that arise in non-Brownian rigid fiber suspensions subject to a shear flow. While early measurements of the normal stress in fiber suspensions in Newtonian fluids measured only $N_1 - N_2$, the recent work of Snook *et al.* [J. Fluid Mech. **758**, 486–507 (2014)] and the present paper provide the first measurements of N_1 and N_2 separately. Snook *et al.* [J. Fluid Mech. **758**, 486–507 (2014)] perform such measurements with a gap that is very wide compared with the fiber length, whereas the present paper explores the effects of confinement when the gap is 4–10 times the fiber length. The first and the second normal stress differences are measured using a single experiment which consists of determining the radial profile of the second normal stress, along the velocity gradient direction, Σ_{22} , in a torsional flow between two parallel disks. Suspensions are made of monodisperse fibers immersed in a neutrally buoyant Newtonian fluid. Two fiber lengths and three aspect ratios $a_r = L/d$, and a wide range of concentrations have been tested. N_1 is found to be positive while N_2 is negative and the magnitude of both normal stress differences increases when nL^2d increases, n being the number fraction of fibers. The magnitude of N_2 is found to be much smaller than N_1 only for high aspect ratios and low fiber concentrations. Otherwise, N_1 and N_2 are of the same order of magnitude. This is in contradiction with what is often assumed (i.e., $|N_2| \ll N_1$) but consistent with the recent numerical work of Snook *et al.* [J. Fluid Mech. **758**, 486–507 (2014)] that includes contact interactions. The effect of confinement on N_1 and N_2 is studied and it is shown that the more confined the suspension, the greater the magnitude of the normal stress differences. At last, the surface properties of the fibers are changed and the impact on the normal stress differences is discussed. © 2016 The Society of Rheology. [<http://dx.doi.org/10.1122/1.4954084>]

I. INTRODUCTION

Fiber suspension rheology is involved in many industrial processes that make use of the reinforcement of polymeric materials with short fibers. The question of fiber suspension rheology is rather complicated since there is a strong coupling between the flow, the fiber orientation, and the rheological properties. Most theoretical approaches have considered purely hydrodynamic interactions between particles [1–4] that, in non-Brownian fiber suspensions, would give rise to zero or weak normal stress differences [5] thanks to reversibility of the Stokes flow implying a symmetry of the fiber orientation distribution with respect to the velocity gradient. Particle level simulations [5–7] have shown that direct mechanical contacts and Coulombic friction forces between fibers still give a linear scaling of the suspension stress on the shear rate but perturb the symmetry of the orientation distribution, thus leading to nonzero normal stress differences. The first normal stress difference N_1 has been found to be positive, while the second one, N_2 , is negative and its absolute value is usually much lower than that of the first normal stress difference, at least for fibers of high aspect ratio. Some semiphenomenological theories have also been developed to account for direct contacts between fibers by adding a diffusion term to the Jeffery equation [8] and have been able to correctly predict fiber orientation distribution in the semidilute regime with an asymmetry induced by fiber-fiber collisions. In the

weak diffusion limit, such an approach predicts the first normal stress difference scales with $a_r^4/\ln(a_r)$, where a_r is the fiber aspect ratio. However, the experimental data from different authors (analyzed in detail in the paper of Zirnsak *et al.* [9]) scale much better with the prediction of Carter [10]: $N_1 \sim a_r^{3/2}/\ln(a_r)$. Some authors [11–13] have developed an analytical model including short-range hydrodynamic interactions between fibers and their collision-induced diffusion. They obtained both transient and steady-state responses for the difference $N_1 - N_2$. The model results fit at least semi-quantitatively to the measurements in parallel plate geometry. However, the relative importance of the second normal stress difference has not been reported. Besides mechanical contacts, fiber flexibility can also lead to nonzero normal stress differences in noncolloidal fiber suspensions, as shown theoretically by Keshtkar *et al.* [14] and by particle level simulations [6,15].

Besides these conceptual difficulties, experimental measurements of the normal stress differences are tricky and these results are less documented in literature [7,10,14,16,17] than the measurements of shear viscosity. Actually, in most studies [14,16,17], it is the difference between the first and the second normal stress differences, $N_1 - N_2$, that is measured. Indeed, usually a parallel plate geometry is used and $N_1 - N_2$ is directly determined from the measurement of the net thrust force exerted on one of the disks. Then, N_2 is commonly assumed to be much smaller than N_1 [16,17] so that the measurement of the thrust force is expected to give an estimate of N_1 . Nevertheless, recently, Snook *et al.* [7] have measured for the first time N_1 and N_2 independently, or more precisely

^{a)}Author to whom correspondence should be addressed; electronic mail: elemaire@unice.fr

the two normal stress coefficients, α_1 and α_2 that are the ratios of N_1 and N_2 to the shear stress. The values of α_1 and α_2 measured for aspect ratios comprised between 12 and 32 are deduced from the deformation of the free surface of fiber suspensions flowing in a tilted trough and in a Weissenberg rheometer and have shown that the magnitude of the first normal stress difference, which is positive, is only approximately twice that of the second normal stress difference which is negative. These measurements were performed with a gap that is very large compared to the fiber length whereas the present paper explores the effects of confinement when the gap is 4–10 times the fiber length.

The present paper is indeed devoted to the measurement of the first and the second normal stress differences in fiber suspensions, using an alternative method based on a device previously designed by Dbouk *et al.* [18,19]. This device has been already used to measure both N_1 and N_2 in concentrated suspensions of spherical particles. Note that, in contrast to what had been obtained before for spherical particles [20–22], Dbouk *et al.* [19] measured a positive first normal stress difference while, as in the previous studies, N_2 was found to be negative. Recently, the same qualitative behavior has been reported by Gamonpilas *et al.* [23] (i.e., $N_1 \geq 0$ and $N_2 < 0$) and the authors have shown that the sign of the first normal stress difference was very sensitive to the polydispersity of the spherical particles. In particular, they compare the values of N_1 and N_2 obtained for two monodisperse and two bidisperse non-Brownian suspensions for two particle concentrations, 0.4 and 0.5. N_1 is found almost equal to zero for the bidisperse suspensions while it is positive for the monodisperse suspensions even though much smaller than the values obtained by Dbouk *et al.*

In the present paper, the measurements are carried out for neutrally buoyant suspensions made of short rigid fibers dispersed in a Newtonian fluid for two fiber lengths, L , three aspect ratios, $a_r = L/d$, where d is the fiber diameter and for volume concentrations ranging from 0.03 to 0.25. The measurement principle is described in Sec. II and details on fiber suspensions, experimental device, and measurement procedure are given in Sec. III. Results are presented and discussed in the last section (Sec. IV) of the paper where the fiber concentration dependence of N_1 and N_2 is presented as well as the impact of the confinement and of the fiber surface properties on the normal stress differences.

II. DETERMINATION OF THE MATERIAL FUNCTIONS IN PARALLEL-PLATE GEOMETRY

A. Material functions

We consider a suspension of rigid rodlike particles immersed in a Newtonian fluid. The viscosity of the suspension, η_s , depends on the fiber volume fraction, ϕ and on the fiber aspect ratio, a_r . The suspension is subjected to a shear stress Σ_{12} in a torsional flow between two rotating parallel disks, the indices 1 and 2 denoting the direction of the shear velocity and of the velocity gradient, respectively.

The variation of the relative viscosity $\eta_r = \eta_s(\phi)/\eta_f$, where η_f is the viscosity of the suspending fluid, with shear

rate, $\dot{\gamma}$, is shown in Fig. 1. First, we have to mention that the viscosity reported here is actually the apparent viscosity that is the ratio of the shear stress at the rim to the shear rate at the rim and not the true viscosity that should have been obtained by deconvoluting the data with various shear stress and rates at the rim. Nevertheless, it clearly appears that fiber suspensions are shear-thinning when the fiber concentration is high enough. The higher the fiber concentration and aspect ratio, the more pronounced is the shear-thinning behavior (see, for instance, [24]). Such a shear thinning behavior has often been reported [14,17,24–26] whereas its origin has not received any clear explanation. Most models either theoretical [11,12] or numerical [5–7] do not report such a shear-thinning behavior because the effect of short-range hydrodynamic forces and of direct mechanical contacts that are all supposed to be proportional to the shear rate, leading to a linear scaling of the shear stress with the shear rate. Shear thinning can only occur if a characteristic time different from $1/\dot{\gamma}$ is involved in the dynamics of the suspension. In particular, this is the case if the contacts are adhesive or if the friction is not Coulombic (i.e., a nonlinear frictional law). The ratio of the characteristic adhesive force F to the characteristic hydrodynamic force can be evaluated [26]

$$N \approx \frac{F}{\eta_f \dot{\gamma} d^2}. \quad (1)$$

If $N > 1$, adhesive forces are dominant and are expected to play a role in the suspension rheology while they can be neglected if $N < 1$. We deduce the critical shear rate value that has to be applied for the suspension to behave as a viscous liquid

$$\dot{\gamma}_c \approx \frac{F}{\eta_f d^2}. \quad (2)$$

An order of magnitude for the adhesive force is given by Chaouche and Koch [26]: $F \approx 10^{-9} - 10^{-8}$ N for polyamide

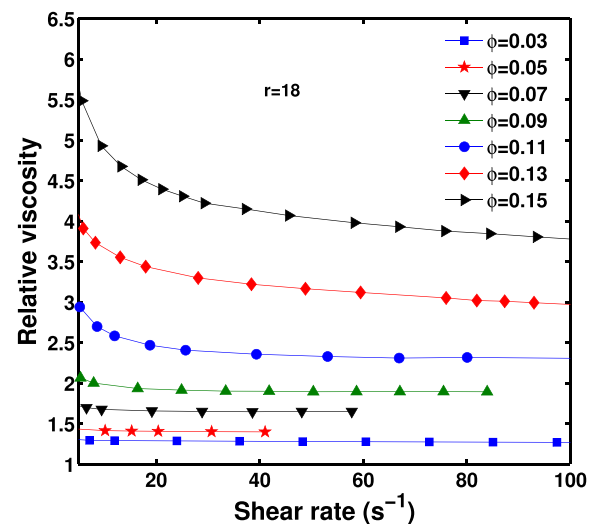


FIG. 1. Relative shear viscosity, η_r , versus shear rate for suspensions of fibers with an aspect ratio $a_r = 18$ and for different concentrations.

fibers with size close to that of the fibers used in the present experiments. Thus, according to the values of the suspending liquid viscosity and of the fiber diameter, we obtain the following estimate for the critical shear rate above which there is no or slight shear thinning: $\dot{\gamma}_c \approx 10 - 100 \text{ s}^{-1}$. This order of magnitude is consistent with the measurements presented in Fig. 1.

In the following, the normal stress differences will be measured in the shear rate range of approximately $20 - 50 \text{ s}^{-1}$ and the residual shear-thinning will be described by a power law

$$\Sigma_{12} = K(\phi)\dot{\gamma}^n, \tag{3}$$

where $n \leq 1$ is the shear-thinning index and $K(\phi)$ is the consistency.

When the fiber concentration is high enough, anisotropic normal stresses Σ_{11} , Σ_{22} , and Σ_{33} arise [5,7,17]. Then, two important quantities are introduced: The first and the second normal stress differences, defined as

$$N_1(\dot{\gamma}) = \Sigma_{11} - \Sigma_{22}, \quad N_2(\dot{\gamma}) = \Sigma_{22} - \Sigma_{33}, \tag{4}$$

where the index 3 denotes the direction of the vorticity. Normal stress differences in fiber suspensions are known to scale linearly with the shear stress [10,27], even for shear thinning suspensions, as can be observed in [17]. Hence, we introduce the first and the second normal stress coefficients $\alpha_1(\phi)$ and $\alpha_2(\phi)$

$$N_1(\dot{\gamma}) = \alpha_1(\phi)\Sigma_{12}, \quad N_2(\dot{\gamma}) = \alpha_2(\phi)\Sigma_{12}. \tag{5}$$

The linear scaling of N_1 and N_2 with the shear stress will be rediscussed in Sec. III B 5.

B. Determination of the normal stress differences

Here, we present the method to determine the values of the first and the second normal stress differences. N_1 and N_2 are deduced from the radial profile of the normal stress along the velocity gradient direction, Σ_{22} , in a torsional flow between two parallel disks separated by a distance h . The flow is generated by a torque, Γ , applied to the upper disk that rotates with an angular velocity, Ω . The shear rate $\dot{\gamma}(r) = \partial v_\theta / \partial z$ depends linearly on r .

In this geometry, the components of the suspension velocity are

$$v_r = 0, \quad v_\theta(r) = r\Omega(z), \quad v_z = 0 \tag{6}$$

and the shear rate is

$$\dot{\gamma}(r) = \frac{\Omega r}{h}. \tag{7}$$

Starting from the equation of motion for Stokes flow in cylindrical coordinates [28]

$$r - \text{component} \quad \frac{\partial \Sigma_{33}}{\partial r} + \frac{\Sigma_{33} - \Sigma_{11}}{r} = 0, \tag{8}$$

$$\theta - \text{component} \quad \frac{\partial \Sigma_{12}}{\partial z} = 0 \tag{9}$$

and expressing Σ_{11} and Σ_{33} in terms of N_1 , N_2 , and Σ_{22} and using Eq. (5), we obtain the radial profile of the second normal stress Σ_{22}

$$\frac{\partial \Sigma_{22}}{\partial r/R} = \Sigma_{12}(R)(\alpha_1 + (n + 1)\alpha_2)\left(\frac{r}{R}\right)^{n-1}, \tag{10}$$

where $\Sigma_{12}(R)$ is the shear stress at the rim. After integrating Eq. (10) and assuming that at the air/suspension interface, $\Sigma_{33}(R)$ is the sum of capillary and atmospheric pressure

$$\Sigma_{33}(r = R) = P_{cap} + P_{atm} = P_{ref}. \tag{11}$$

We obtain the expression of Σ_{22}

$$\Sigma_{22}(r/R) = \Sigma_{12}(R)\left(\frac{\alpha_1 + (n + 1)\alpha_2}{n}\left(\frac{r}{R}\right)^n - \frac{\alpha_1 + \alpha_2}{n}\right) + P_{ref}, \tag{12}$$

where $p_{ref} = p_{cap} + p_{atm}$ is the reference pressure that is, as verified in [19], independent of the shear rate.

Equation (12) shows that the radial profile of the second normal stress Σ_{22} is expected to be proportional to the shear stress at the rim and to vary linearly when Σ_{22} is plotted against $(r/R)^n$. Then, from a linear combination of the slope, A , and the ordinate at the origin, B , the values of the two normal stress coefficients $\alpha_1(\phi)$ and $\alpha_2(\phi)$ can be deduced.

$$\begin{cases} \alpha_1(\phi) = -A - (1 + n)B \\ \alpha_2(\phi) = A + B. \end{cases} \tag{13}$$

Note that for a nonshear-thinning suspension ($\Sigma_{12} \propto \dot{\gamma}$, $n = 1$), Eq. (12) reduces to the formula previously reported by Dbouk *et al.* [19]

$$\Sigma_{22}(r/R) = \Sigma_{12}(R)\left((\alpha_1 + 2\alpha_2)\frac{r}{R} - (\alpha_1 + \alpha_2)\right) + P_{ref}. \tag{14}$$

III. EXPERIMENT

A. Fiber suspensions

1. Suspending liquid

The suspending liquid is a Newtonian fluid made of a mixture of pure water, Zinc Bromide (Sigma-Aldrich, France), and Ucon oil 75H90000 (Dow Chemical, France; density 1.09 g/cm^3 , viscosity 30 Pa s at 25°C). According to the ratio of these three components in the mixture, both its density and its viscosity can be controlled. The viscosity of the suspending liquid is tuned by changing the fraction of Ucon oil in such a way that the viscosity of the whole suspension is of the order of 1 Pa s , which, as explained in Sec. III B 4, allowed us to measure normal stress differences under the best conditions. To achieve this, whatever the fiber

concentration, the relative proportions of water and Ucon oil are varied in order to obtain the desired suspending liquid viscosity that can vary from 0.1 to 1 Pa s. (see Table II in Sec. III B 4). An appropriate amount of zinc Bromide is added into the mixture in order to adjust the density of the suspending liquid to that of the fibers which is either 1.09 or 1.34 g/cm³ (see Table I). Note that the viscosity of the suspending liquid does not change with the shear rate in the studied shear rate range and that, as a consequence, the shear thinning of the fiber suspensions reported in Fig. 1 does not come from the non-Newtonian behavior of the solvent but rather from nonhydrodynamic interactions between fibers.

2. Fibers and concentration regimes

Four batches of monodispersed polyamide fibers provided by Société Nouvelle Le Flockage were used in the experiments with three aspect ratios, $a_r = 10, 18,$ and $33,$ and two lengths, $L = 300$ and $500 \mu\text{m}$. The fibers are quite monodispersed. Their size distribution has been measured by optical microscopy and has been found to be of the order of $\pm 5 \mu\text{m}$ for the length and lower than $\pm 1 \mu\text{m}$ for the diameter, $\pm 1 \mu\text{m}$ corresponding to our optical measurement resolution. This estimation of the polydispersity has been conducted on about 80 fibers for each batch.

A series of fiber volume fractions was prepared in order to explore both the semidilute regime ($nL^3 > 1, nL^2d < 1$) and the concentrated regime ($nL^2d > 1$) [29]. In these two regimes, fibers are expected to interact through both hydrodynamic and contact forces [5,7]. The fiber volume concentrations ranged from 0.03 to 0.25 leading to concentration parameter, nL^2 , comprised between 1 and 6, depending on fiber aspect ratio.

Fibers can be considered as rigid since the shear stress is much smaller than the critical stress Σ_{crit} at which the fibers may be expected to buckle under shear compression. Σ_{crit} is given by [30]

$$\Sigma_{crit} \cong \frac{E_b(\ln 2a_r - 1.75)}{2a_r^4}. \quad (15)$$

E_b is the bending modulus of the fibers of the order of 3×10^9 Pa for polyamide. Table I summarizes the characteristics of the fibers (length, diameter, density) and gives the values of the fiber volume fraction that separate the different concentration regimes and the ratio of the critical buckling stress to the maximum applied shear stress, Σ_{max} .

TABLE I. Characteristics of fiber suspensions studied in our experiments. $\phi' = \pi/(4a_r^2)$ and $\phi'' = \pi/(4a_r)$ denote the characteristic volume fractions that separate the dilute regime from the semidilute and the semidilute regime from the concentrated one, respectively. Σ_{crit} is the critical shear stress at which fibers are expected to buckle and Σ_{max} the maximum applied shear stress in our experiment.

Aspect ratio	Length L (μm)	Diameter d (μm)	Density g/cm ³	Concentration $\phi' = \pi/(4a_r^2)$	Regime limits $\phi'' = \pi/(4a_r)$	$\frac{\Sigma_{crit}}{\Sigma_{max}}$
18	500 ± 5	28 ± 1	1.09	0.0024	0.044	440
18	300 ± 5	17 ± 1	1.09	0.0024	0.044	220
10	300 ± 5	30 ± 1	1.09	0.0079	0.079	1400
33	500 ± 5	15 ± 1	1.34	7.2×10^{-4}	0.024	22

3. Preparation of the suspensions

Before preparing the suspensions, fibers are washed out with distilled water and put in an ultrasonic bath for a few minutes in order to eliminate the coating on their surface. The fibers are then placed in an oven at 35 °C for 12 h in order to be dried. This washing procedure was applied to all suspensions except those whose rheology is described in the Appendix.

Then, fibers are added to the suspending liquid and the suspension is gently mixed with a spatula. The suspension is then placed in a centrifuge for a few tens of minutes and in an ultrasonic bath for a period of 2–4 h, in order to remove air bubbles. After that, they are again gently mixed in order to resuspend, if necessary, the particles without including air bubbles.

B. Measurements

1. Experimental device

The normal stress difference measurements are conducted using a controlled-stress rheometer *HAAKE MARS II* in parallel plate geometry. The suspension is placed between two parallel disks of radius $R = 5.5$ cm separated by a $h = 2.5$ mm gap. The lower disk is equipped with four flush mounted differential pressure transducers ($ATM \pm 25$ mbar, *STS*) and placed at different radial positions as shown in Fig. 2. These pressure transducers allow us to measure the radial profile of Σ_{22} and then the two normal stress coefficients, α_1 and α_2 , as explained in Sec. II B. The transducers have to be placed right at the surface of the lower disk in order to avoid whole pressure effects that would lead to extra pressure coming from flow perturbation. To this purpose, all transducers are placed slightly below the level of the surface of the lower disk (about 50–100 μm) and topped with a paraffin layer. The transducer responses are tested by measuring the hydrostatic pressure of a liquid column and also, as detailed in [19], the inertial pressure generated by the torsional flow of a Newtonian liquid, even at low Reynolds number.

2. Flow regime

In our experiment, we consider only the case of laminar flow and, for each studied suspension, we check that for the highest angular velocity, Ω , the Reynolds number, N_{Re} remains small

$$N_{Re} = \frac{\rho\Omega R h}{\eta_s} \lesssim 0.1. \quad (16)$$

Furthermore, fibers are large enough for hydrodynamic forces to dominate Brownian forces as it is determined by the Péclet Number, N_{Pe} , that is very large [31]

TABLE II. For each aspect ratio, fiber length, and concentration, the range of applied shear rate at the rim $\dot{\gamma}(R)$, the viscosity of the suspending liquid, η_f , the shear thinning index, n and the consistency divided by the suspending fluid viscosity are given. The shear thinning index and the consistency have been measured in a shear rate range that extends from the smallest shear rate at the most inner transducer (i.e., about five times lower than the smallest shear rate at the rim) to the largest shear rate at the rim.

Fiber type	ϕ	nL^2d	$\dot{\gamma}_R$ range (s^{-1})	η_f (Pa s)	n	$K/\eta_f(s^{n-1})$
$a_r = 18,$ $L = 500 \mu$	0.08	1.8	[29.3:44.1]	1.15	0.99	2.5
	0.10	2.3	[35.1:44.9]	1.15	0.96	2.7
	0.11	2.5	[34.2:45.0]	0.335	0.96	3.9
	0.12	2.75	[31.2:44.7]	0.355	0.92	4.1
	0.13	3.0	[25.3:44.0]	0.355	0.93	4.7
	0.14	3.2	[29.3:45.7]	0.355	0.90	8.1
$a_r = 18,$ $L = 300 \mu$	0.15	3.4	[27.4:44.6]	0.173	0.87	9.3
	0.10	2.3	[23.5:38.5]	0.324	0.95	4.0
	0.11	2.5	[21.5:35.2]	0.324	0.94	5.36
	0.12	2.75	[15.3:25.8]	0.324	0.90	6.9
	0.13	3.0	[16.3:35.4]	0.324	0.89	8.5
	0.14	3.2	[19.4:32.4]	0.324	0.91	10.9
$a_r = 10,$ $L = 300 \mu$	0.15	3.4	[14.8:26.3]	0.324	0.70	29.4
	0.16	3.7	[15.0:21.7]	0.324	0.76	37.6
	0.17	3.9	[27.4:44.6]	0.324	0.76	41.5
	0.10	1.3	[30.3:41.3]	1.15	0.99	2.2
	0.11	1.4	[28.2:38.2]	1.15	0.97	2.5
	0.12	1.5	[24.6:35.1]	1.15	0.95	3.4
	0.13	1.65	[24.9:36.2]	1.15	0.97	3.7
	0.15	1.9	[27.1:38.7]	0.334	0.95	4.8
	0.17	2.2	[32.8:41.5]	0.334	0.93	7
	0.19	2.4	[35.7:42.7]	0.334	0.90	10.7
$a_r = 33,$ $L = 500 \mu$	0.20	2.5	[17.9:30.9]	0.164	0.86	15.2
	0.21	2.7	[26.2:40.5]	0.334	0.89	17.8
	0.23	2.9	[16.1:25.8]	0.324	0.73	36.5
	0.25	3.2	[25.9:43.4]	0.324	0.61	71.6
	0.03	1.3	[31.8:40.7]	1.067	0.99	1.8
	0.05	2.1	[27.9:43.7]	1.067	0.99	2.1
	0.07	2.9	[25.1:33.3]	1.067	0.95	2.2
	0.085	3.6	[23.6:39.4]	1.067	0.99	2.8
	0.10	4.2	[33.2:46.0]	0.282	0.87	12.9
	0.11	4.6	[19.3:39.4]	0.282	0.82	13.1
0.12	5.0	[25.8:39.8]	0.282	0.75	19.4	
0.13	5.5	[42.9:61.5]	0.282	0.7	30.4	
0.14	5.9	[26.4:49.6]	0.282	0.64	70.0	

$$N_{Pe} = \frac{\eta_0 \dot{\gamma} \pi L^3}{3k_B T \ln(a_r)} \sim 10^9 \gg 1. \quad (17)$$

3. Experimental procedure

To begin our experiment, we carefully put the suspension on the lower disk taking care not to trap any air bubble, then we place a drop of the suspension on the upper disk and bring it down slowly toward the lower plate until a gap of 2.45 mm is reached. When the suspension has completely spread across the gap, the extra suspension is carefully cleaned up and the upper disk is raised by $50 \mu\text{m}$. After that, all the transducers are set to zero [$P_{ref} = 0$ in Eq. (12)]. Regarding the effect of slightly raising the gap width, it was observed that the suspension/air interface was more stable as well as the pressure signals. In addition, a slight increase of the gap width guaranties

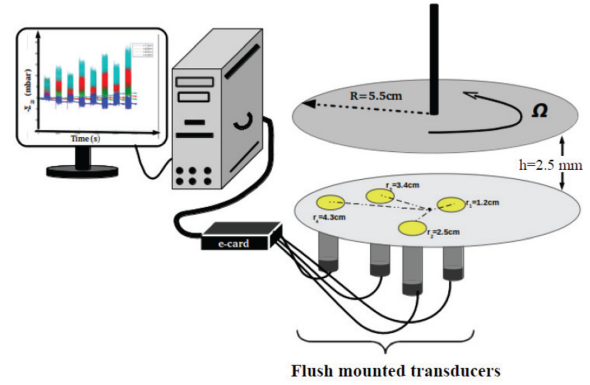


FIG. 2. Experimental device used to measure the radial profile of Σ_{22} . The lower disk is equipped with four flush pressure transducers placed at different radial positions: ($r_1 = 1.2$ cm, $r_2 = 2.5$ cm, $r_3 = 3.4$ cm, and $r_4 = 4.3$ cm).

that no suspension remains outside the gap which could eventually lead to fiber migration in this region of low shear rate.

The experimental protocol is shown in Fig. 3. We apply a series of torques Γ in the clockwise and counter-clockwise directions with a duration T_{shear} , separated by a rest period $T_{rest} = 150$ s. It is necessary to apply such a complicated protocol since, due to the large diameter of the disks, even very slight parallelism defects lead to extra pressures that can be of the same order of magnitude as the pressure we aim to measure. In our experiment, the out of roundness of the rotating disk leads to variation of the gap of about $50 \mu\text{m}$. If not corrected, this gap width variation would generate a pressure error, evaluated by [19]

$$\delta p \simeq \eta \Omega R^2 \frac{\delta h}{h^3} = \Sigma_{12} \frac{\delta h R}{h^2} \simeq 0.4 \Sigma_{12}. \quad (18)$$

Fortunately, as discussed in [18], this error cancels when pressure signal are averaged over one revolution of the upper disk in clockwise and in counter-clockwise directions. That is why it is necessary to apply the torque in both directions. By the way, this requirement to average the pressure signal over long time periods prevents us from measuring transient response of the normal stress differences that would, however, be very interesting!

Since we are doomed to only measure the steady normal stress differences, the torque has to be applied during a period, T_{shear} , long enough for the fibers to achieve a steady orientation state even at the position of the most central transducer. The characteristic orientation time for fibers is expected to be of the order of the Jeffrey period, $T_J = 2\pi/\dot{\gamma} \times (1/a_r + a_r)$

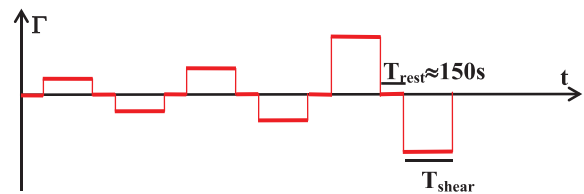


FIG. 3. A series of torques is applied during the same period T_{shear} in the clockwise and counter-clockwise directions. The suspension was left at rest during a time interval, T_{rest} , between rotations in the two opposite directions.

666

BOUNOUA, KUZHIR, AND LEMAIRE

[32]. And, since the shear rate at the most central transducer is equal to $\dot{\gamma}(r_1) = (r_1/R)\dot{\gamma}_R$ with $r_1 = 1.2$ cm and $R = 5.5$ cm, at this radial position, fibers are expected to reach their steady orientation state after a period equal to $T_J(r_1) \simeq 5 \times T_J(R)$. Thus, we use the criterion: $T_{shear} > 10\pi/\dot{\gamma}_R \times (1/a_r + a_r)$. Then, after this transient period, the pressure signals are recorded and it is checked that both the shear viscosity and the axial normal stress do not change anymore and have reached their stationary values.

4. Operating conditions

First, we have to define the shear rate range in which the measurement of the normal stress differences will be performed. According to the criterion on the minimum run time fixed in Sec. III B 3 to ensure that a stationary orientation of the fibers has been reached, the shear rate should be as large as possible. In addition, the greater the shear rate, less pronounced is the shear-thinning, meaning that adhesion forces between fibers are more and more negligible and that our suspensions are really representative of noncolloidal fiber suspensions. Nevertheless, the shear rate cannot be increased too much since the Reynolds number has to remain small as well as the inertial pressure that arises from the secondary radial flow, even at low Reynolds number. The inertial pressure scales as the square of the shear rate [33]

$$p_i = 0.15\rho h^2\dot{\gamma}_R^2 \left(\left(\frac{r_i}{R} \right)^2 - 1 \right). \quad (19)$$

Hence, the inertial pressure has to be negligible with respect to Σ_{22} that arises from normal stress differences. Considering Eq. (19) and $\Sigma_{22} \gtrsim 10$ Pa, this leads to: $\dot{\gamma}_R \lesssim 60$ s⁻¹.

Second, the accuracy of the measurements will depend on the suspensions viscosity. As explained in Sec. III A 1, the suspending liquid is a mixture of distilled water, Ucon oil, and Zinc bromide and according to the relative fractions of water and Ucon oil, its viscosity can be tuned from 10⁻³ to about 30 Pa s. The choice of the viscosity is dictated by a compromise between two contradictory requirements. On one hand, since the normal stress differences are expected to be proportional to the shear stress, the suspending liquid viscosity should be as high as possible. On the other hand, if N_2 is negative, an instability that manifests itself by an edge fracture of the sheared medium appears when the magnitude of N_2 is larger than a critical value [34] that is of the order of the capillary pressure: $N_{2c} \approx 5\gamma/h$ where γ is the surface tension of the suspension. Taking for γ a typical value of 50 mN m⁻¹, $N_{2c} \approx 100$ Pa. Thus, the viscosity of the suspending liquid should not be too large. A rather good compromise is to choose the viscosity of the suspending liquid in such a way that the viscosity of the whole suspension is of the order of 1 Pa s. This limitation in the maximum applicable shear stress is unfortunate since it implies that, for the highest fiber concentrations, the normal stress measurements have to be carried out in a shear stress range where the suspensions are shear-thinning, which complicates data analysis. For each aspect ratio, fiber length, and concentration, Table II summarizes the range of the applied shear rates at the rim, the viscosity of the suspending

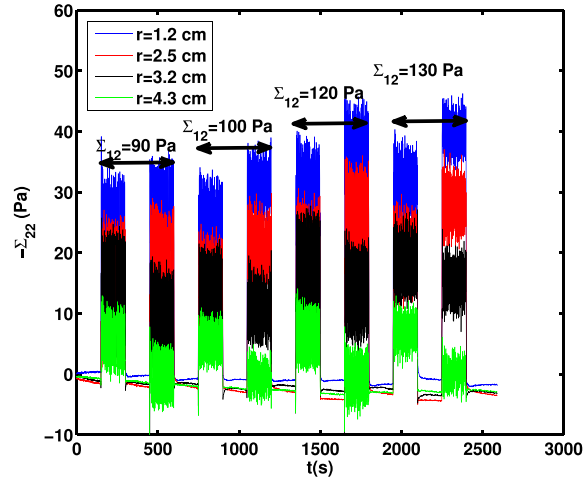


FIG. 4. An example of recorded signals provided by the transducers situated at different radial positions r_i . This measurement has been performed for a suspension with $a_r = 10$ and $nL^2d = 2.7$.

liquid, the shear thinning index, n , and the consistency. The shear thinning index and the consistency have been measured in a shear rate range that extends from the smallest shear rate at the most inner transducer (i.e., about five times lower than the smallest shear rate at the rim) to the largest shear rate at the rim and we checked that, within this range, the shear rate-shear stress relation could be adequately represented by a power law.

5. An example of Σ_{22} profile determination

Figure 4 shows an example of the recorded pressure signals that, due to parallelism defects, are quite noisy. Despite the poor quality of the pressure signals, axial normal stress Σ_{22} is obtained for different values of the applied shear stress, Σ_{12} upon averaging the pressure signal, once the steady state is reached, over several revolutions in the clockwise and counter-clockwise directions. Figure 5 shows an example of the radial variation of the measured Σ_{22} for

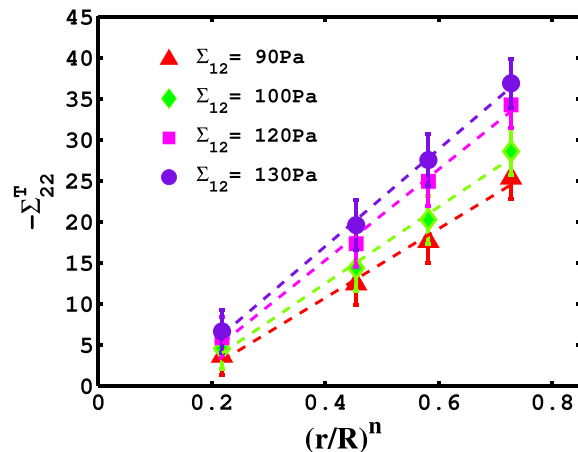


FIG. 5. Axial normal stress, Σ_{22} , against $(r/R)^n$ for a fiber suspension with $nL^2d = 2.7$ and $a_r = 10$ ($\phi = 0.21$) and for different values of the shear stress at the rim.

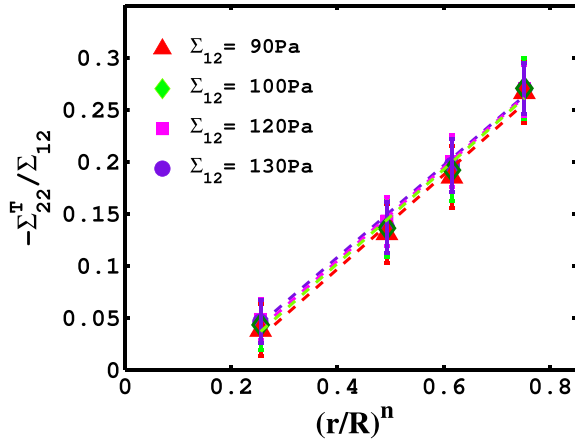


FIG. 6. Axial normal stress normalized by the shear stress at the rim $\Sigma_{22}/\Sigma_{12}(R)$ against $(r/R)^n$ for a fiber suspension with $nL^2d=2.7$ and $a_r=10$ ($\phi=0.21$). Within the error bars, all the four normalized profiles collapse, meaning that the normal stress differences are proportional to the shear stress.

$\phi=0.21$, $a_r=10$ and for four different values of the shear stresses. The error bar calculation accounts for the standard error of the recorded signal and of the inaccuracy of the pressure measurement that is evaluated to about ± 2.5 Pa.

As expected from Eq. (12), when Σ_{22} is plotted against $(r/R)^n$, the profiles are linear (see Fig. 5) and Fig. 6 indicates that, when Σ_{22} is normalized by the shear stress at the rim $\Sigma_{12}(R)$, all profiles collapse onto a single curve. In particular, this collapse, which is obtained whatever the fiber aspect ratio and concentration, means that normal stress is proportional to the shear stress. This result, first shown by Carter [10] for suspensions which do not shear-thin, is expected on a theoretical basis to occur in a purely Coulombic frictional force scenario where both shear and normal stresses are proportional to the viscous stress. And it is important to verify that it also holds in the shear thinning case where another force scaling arises. From this curve, we calculate the mean slope, A, and the mean origin ordinate, B, from which, according to Eq. (13), we deduce α_1 and α_2 . The uncertainty in A and B is evaluated

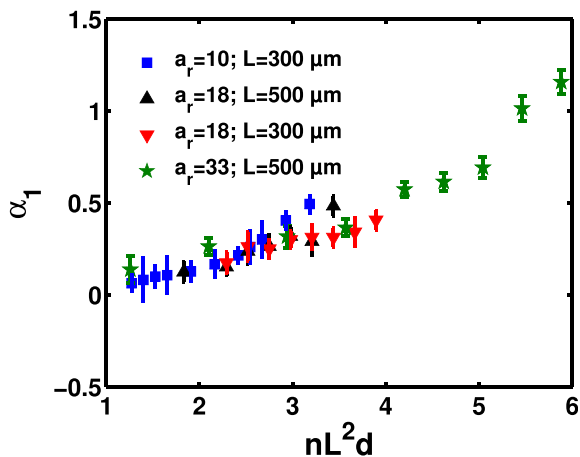


FIG. 7. First normal stress coefficient α_1 as a function of nL^2d as a function of nL^2d for three aspect ratios and two fiber lengths.

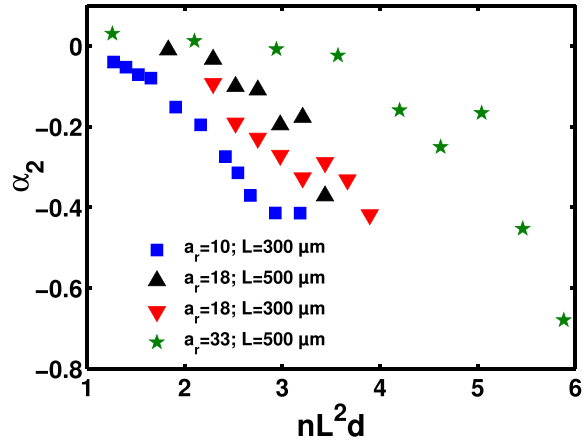


FIG. 8. Second normal stress coefficient α_2 as a function of nL^2d for three aspect ratios and two fiber lengths.

from the slope and the origin ordinate of the straight lines that pass through the extremities of the error bar data (Fig. 6).

IV. RESULTS

A. Fiber concentration dependence of α_1 and α_2

For three aspect ratios, two fiber lengths and many fiber concentrations, the first and the second normal stress differences α_1 and α_2 are extracted from the mean normalized profiles of the axial normal stress that have been obtained for a gap width, $h=2.5$ mm. This information is actually important since we will see in the next Subsection (Sec. IV B) that the magnitude of normal stress differences depends on the confinement. The results are given in Figs. 7 and 8 where α_1 and α_2 are plotted against the concentration parameter nL^2d . α_1 is found to be positive and α_2 is negative. This result ($N_1 > 0$ and $N_2 < 0$) has already been obtained by Snook *et al.* [7]. Clearly,

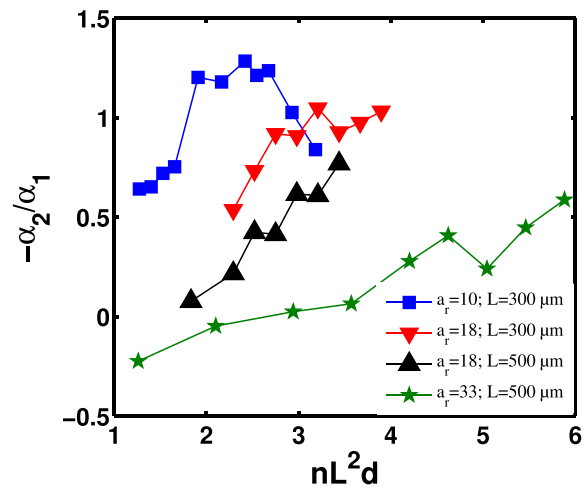


FIG. 9. Ratio $-\alpha_2/\alpha_1$ as a function of nL^2d for three aspect ratios and two fiber lengths. The gap width was fixed to 2.5 mm. α_2 is found to be much smaller than α_1 only for the highest aspect ratio ($a_r=33$) and the lowest concentrations ($nL^2d \leq 3$).

668

BOUNOUA, KUZHIR, AND LEMAIRE

both α_1 and α_2 increase in magnitude when nL^2d increases. In addition, whatever the length or the aspect ratio of the fibers, α_1 appears to be almost a function of only nL^2d , at least for not too high concentrations ($nL^2d \leq 3$), whereas for a given value of nL^2d , the magnitude of $N_2(\phi)$ decreases as the aspect ratio increases.

A quite surprising result is that α_2 is not negligible compared to α_1 in contrary to what is often assumed [16,17]. To highlight this point that will be discussed in detail in Sec. V, the ratio $-\alpha_2/\alpha_1$ is plotted against the concentration parameter nL^2d in Fig. 9. It clearly appears that the ratio $-\alpha_2/\alpha_1$ increases as the fiber aspect ratio decreases and that α_2 is much smaller than α_1 only for high aspect ratios ($r=33$ in the present study) and low concentrations.

B. Effect of the confinement

We aim to highlight that, as shown in the recent numerical work of Snook [35], normal stress differences are very

sensitive to confinement. Indeed, we carried a systematic study of the effect of the gap width on the resulting values of α_1 and α_2 . We performed experiments for two fiber aspect ratios, $a_r=10$ and $a_r=18$, for one fiber length $L=300 \mu\text{m}$, and for two fiber concentrations. For each aspect ratio, concentration, and gap width, we have determined the shear-thinning index n which reveals that the shear-thinning behavior of the fiber suspension increases when the confinement parameter, h/L , increases. Figure 10 reports the values of α_1 and α_2 for different values of the confinement parameter, h/L . It clearly appears that α_1 increases with confinement (i.e., when h/L decreases). Furthermore, comparing the results obtained for $a_r=10$ and $a_r=18$ at the same nL^2d , the effect of confinement on α_1 is more pronounced for the lower aspect ratio $a_r=10$. The same tendency is observed for α_2 , even though it is a little bit less clear. It is surprising that for gap widths as large as $8L$ or $10L$, confinement still plays a role.

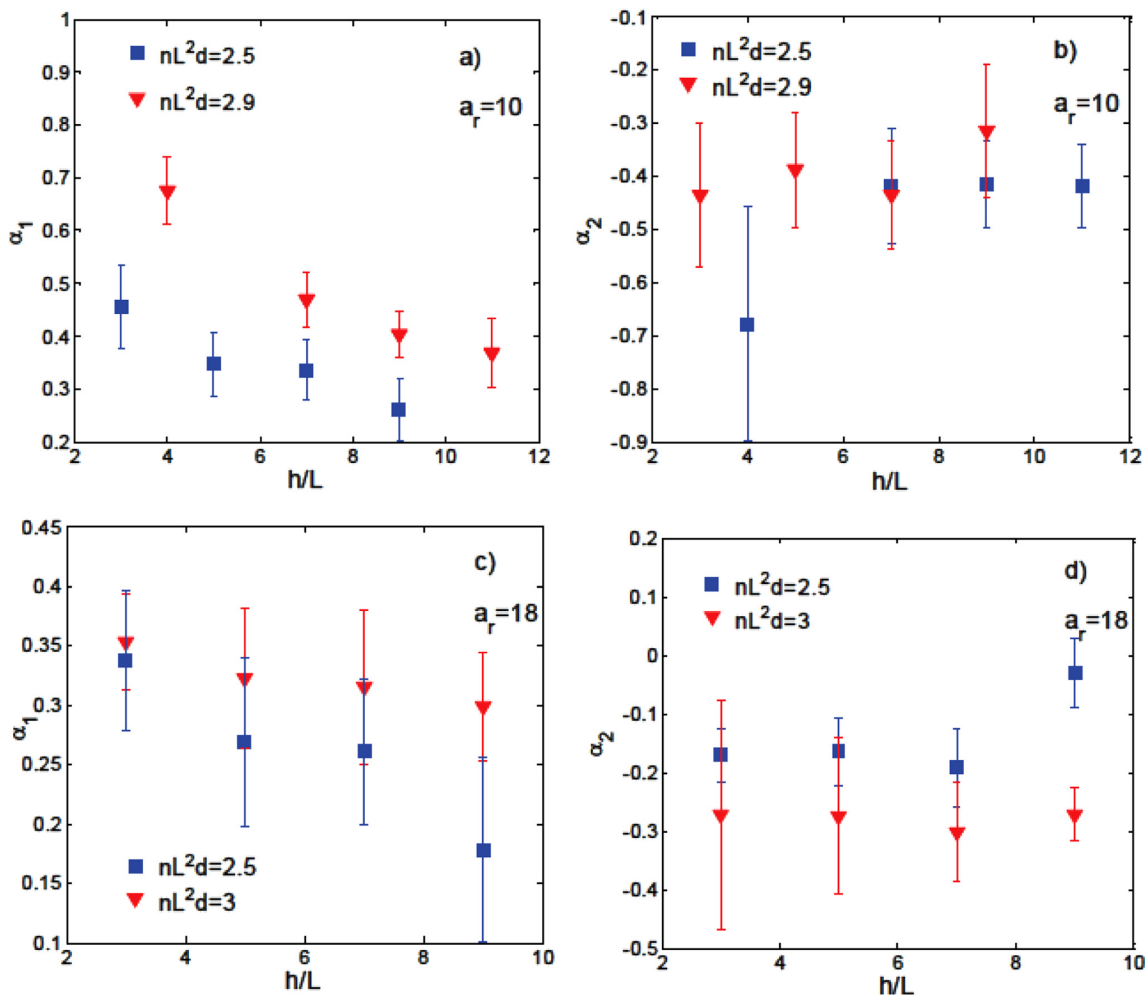


FIG. 10. Effect of the confinement h/L on the magnitude of α_1 (a) and α_2 (b) for $a_r=10$, $nL^2d=2.5$ and 2.9 . Effect of the confinement h/L on the magnitude of α_1 (c) and α_2 (d) for $a_r=18$, $nL^2d=2.5$ and 3 .

V. DISCUSSION

Experimental results on normal stress differences available in the literature [7,14,16,17] mostly deal with relatively low concentrated suspensions (i.e., $nL^2d \leq 3$). At last, except for Snook *et al.*, all the authors mentioned above performed experiments using parallel plate geometry and obtained the combination $N_1 - N_2$ from the measurement of the total thrust force, F_c . Figure 11 displays the variation of $(N_1 - N_2)/\eta_f \dot{\gamma}$ with nL^2d that have been obtained by different authors for fibers with aspect ratios of the same order than the ones used in the present study under roughly the same confinement conditions. A first comment on Fig. 11 is that, contrarily to what is presented in [12], there is a poor agreement between the results of Petrich *et al.* [16] and those of Ferec *et al.* [12]. Indeed, in Fig. 8 of [12], the normal stresses measured by Petrich *et al.* [16] are normalized by $\eta_f \dot{\gamma}$ while the results obtained by Ferec *et al.* [12] are normalized by Σ_{12} . Then, when correctly normalized, results displayed in Fig. 11 show a significant scatter even for comparable aspect ratios, meaning that new measurements are needed in order to clarify if these large discrepancies come from experimental error or, more likely, from involvement of other parameters such as contact forces between fibers that, according to the numerical works of Snook *et al.* [7] and Sundararajakumar and Koch [5], are expected to be a key parameter controlling normal stress differences. Note that the results of Snook that are presented here are numerical results obtained using a model which considers hydrodynamic drag forces on each particle and utilizes a short-range repulsive force to maintain the excluded volume [35]. It was not possible to display the associated experimental results [7] since they have been obtained for nonconfined flows. Indeed, Snook *et al.* determined the normal stress differences upon measuring the deformation of the free surface of the suspensions in a tilted through and in a Weissenberg rheometer that are both wide gap geometries.

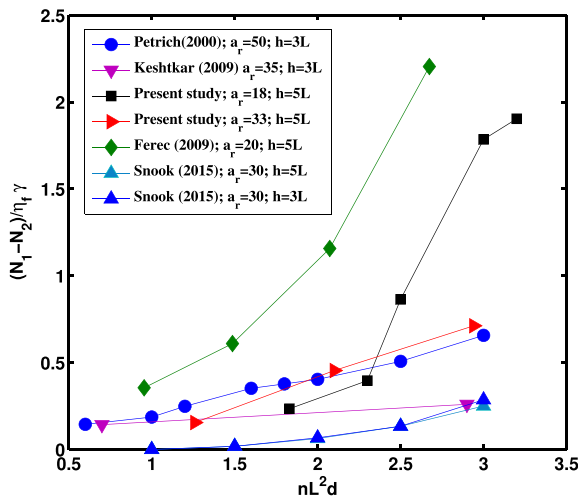


FIG. 11. $N_1 - N_2$ normalized by the shear stress in the fluid, $\eta_f \dot{\gamma}$ versus nL^2d . Comparison of our results with those obtained from the measurement of the thrust force in rotating parallel plate geometry [12,14,16] and with the numerical results of Snook [35].

The typical dimensions of the flow were 30–50 times the fiber length and the authors showed that, in such a nonconfined flow, the magnitudes of normal stress differences are much smaller than those expected in a bounded flow. More precisely, Snook compared the values of the normal stress differences obtained from either periodic or confined geometry simulations [35] and showed that the variation of the gap from $3L$ to $5L$ does not greatly change the values of N_1 and N_2 which were, however, quite different from the results obtained with a periodic geometry (infinite gap). Furthermore, the method of free surface flow deformation used by Snook *et al.* [7] only gives the ratio of N_1 and N_2 to the shear stress (i.e., α_1 and α_2) while the viscosity of the suspensions has not been measured by the authors. The values of α_1 and α_2 measured by Snook *et al.* are, as expected from the effect of the confinement, much smaller than ours. For instance, to fix ideas, for $r = 32$ and $nL^2d = 3$, they obtained $\alpha_2 = 0.01 \pm 0.01$ and (as for all aspect ratios and concentrations) $\alpha_1 \approx -2\alpha_2$ while we measured $\alpha_1 = -0.33 \pm 0.06$ and $\alpha_2 = 0.08 \pm 0.05$ for $r = 33$.

The numerical work of Snook *et al.* [7] also shows that direct mechanical contacts are responsible for an increase of α_2 and that, in such a case of direct contact between fibers, the magnitude of N_2 is not much smaller than N_1 but of the order of $N_1/2$. This is in qualitative agreement with our findings that α_2 is much smaller than α_1 only for small values of nL^2d and for high aspect ratios ($a_r = 33$ in our study). On the opposite, for $a_r = 10$ and $nL^2d > 2$, $N_2/N_1 = O(1)$ (see Fig. 9), while the numerical results of Snook [35] give the same order for the values of the ratio $-\alpha_2/\alpha_1$, they do not show the same trend, i.e., an increase of $-\alpha_2/\alpha_1$ when nL^2d increases and a_r decreases but they rather show an almost constant ratio whatever a_r and nL^2d (see Table III).

The experiments of Snook *et al.* [7] give a ratio $-\alpha_2/\alpha_1$ of approximately 0.5 for nL^2d comprised between 1.5 and 3 and aspect ratios between 12 and 32.

Thus, for the ratio N_2/N_1 , our results are in qualitative agreement with those of Snook *et al.* [7] but the respective values of α_1 and α_2 are much larger here than in [7]. As proposed by Snook *et al.* [7] and depicted in Sec. IV B, this discrepancy should be explained by the confinement that is different in Snook’s experiments and in ours. Actually, Snook *et al.* determined the normal stress differences upon measuring the deformation of the free surface of the suspensions in a tilted through and in a Weissenberg rheometer that are both wide gap geometries where the confinement is very

TABLE III. Ratio of the magnitude of α_2 to α_1 for a confinement 5:1. The ratios obtained in the present work are of the same order as those obtained numerically by Snook [35]. Nevertheless, while we observe that the ratio $-\alpha_2/\alpha_1$ increases when nL^2d increases and when the aspect ratio decreases, the numerical results of Snook [35] do not show such trends but display a ratio whose value does almost not depend neither on nL^2d nor on a_r .

Snook [35]	Present work				
	a_r	$nL^2d = 2.5$	$nL^2d = 3$	a_r	$nL^2d = 3$
11	0.91	0.87	10	1.2	1
20	0.78	0.87	18	0.61	0.42
30	0.80	0.75	33	0.05 ($nL^2d = 2.1$)	0.24

weak (the typical dimensions of the geometries are several tens larger than the fiber length). On the opposite, we carried out experiments where the typical confinement is of the order of 5:1–8:1. As reported in our experimental study (see Fig. 10) and shown by the numerical results of Snook [35], the magnitude of N_1 and N_2 increases as the ratio of the gap width to the fiber length decreases. It is worth mentioning that confinement still plays a role for gap with as large as nine times the fiber length. This point should be kept in mind when measuring normal stress differences which are expected not to depend on characteristic flow dimension only for very wide gaps.

It would have been interesting to further increase the gap in our experiment, in order to check if α_1 and α_2 tend to the values obtained by Snook *et al.* [7] without confinement. Unfortunately, we were unable to increase the gap width more than $h = 11L$ because the suspension is maintained between the disks by the capillary forces that have to be strong enough to prevent the suspension from flowing out of the gap. On the other hand, it was difficult to explore more confined situations since decreasing the gap increases pressure error due to parallelism defects [see Eq. (18)].

VI. CONCLUSION

In this work, we have presented an experimental method to determine the two normal stress differences N_1 and N_2 independently for suspensions of non-Brownian fibers dispersed in a Newtonian fluid. Both the first and second normal stress differences have been measured for a large range of aspect ratios and fiber concentrations so that semidilute and concentrated regimes have been explored. The results show that N_1 is positive and N_2 negative, and both increase in magnitude with nL^2d . Unlike what is often assumed in the literature, we measure a nonzero value of N_2 and α_2 is negligible with respect to α_1 only for large aspect ratios and low fiber concentrations. For aspect ratios smaller than or equal to 20, α_1 and α_2 are found to be of the same order of magnitude. This is in qualitative agreement with the experimental results of Snook *et al.* [7]. Nevertheless, we measured much more larger values of α_1 and α_2 than these authors. We show that confinement can explain these differences since α_1 and α_2 measurements depend on the ratio of the gap width to the fiber length even for ratios as large as 8 or 10. The comparison of our results with most previous measurements of $N_1 - N_2$ obtained from the thrust force exerted on the rotating disks in a torsional flow is rather good.

ACKNOWLEDGMENTS

The authors are grateful to Région Provence Alpes Côte d'Azur for funding one of us, to La société nouvelle de flockage for supplying the fibers, and to G. Sauder, F. Juan, F. Lippi, C. Pitiot, and J. L. Vanni for their technical support.

APPENDIX: EFFECT OF FIBER SURFACE PROPERTIES ON NORMAL STRESS DIFFERENCES

In this Appendix, we would like to present very preliminary results on the effect of fiber surface properties on the normal stress differences. Indeed, most theoretical or

numerical studies have focused on the role played by the hydrodynamic interactions (long range or lubrication forces) between fibers in the rheological behavior of fiber suspensions, but a few studies [5–7] have shown that direct mechanical contacts between fibers play a crucial role in fiber suspension rheology. In particular, direct contacts are responsible for an increase of the frequency of rotation of fibers in the shear flow as nL^2d becomes $O(1)$ that, in turn, increases both the viscosity and the normal stress differences. To verify experimentally these numerical results, it would be worth modifying the solid contacts between fibers. A possible way to do this is to modify the fiber surface. Since the fibers we used are flock fibers, they have been subjected to a finishing process and are coated. Even though very little is known about the process they underwent, according to the information given by the manufacturer, washing the fibers before adding them to the suspending liquid should modify their surface properties and, subsequently their mechanical contacts.

We have conducted experimental measurements of α_1 and α_2 for four fiber concentrations, $nL^2d = 4.2, 4.6, 5.5,$ and 5.9 ($\phi = 0.10, 0.11, 0.13,$ and 0.14) for the highest aspect ratio, $a_r = 33$. In Figs. 12 and 13, we report the comparison of the results of α_1 and α_2 obtained either with washed or unwashed fibers. The magnitude of α_1 is higher for the washed fibers than for the unwashed ones and the difference increases as nL^2d increases. On the contrary, within the error bars, α_2 is the same for washed or unwashed fiber suspensions even though the magnitude of α_2 is always slightly higher for washed than for unwashed fibers.

To interpret in a conclusive way the increase of the magnitude of the normal stress differences by enhanced contact forces, it would be worth measuring fiber-fiber interaction in both cases of washed and unwashed fibers. Petrich and Koch [36] and Chaouche and Koch [26] proposed experimental methods to measure both normal and frictional forces

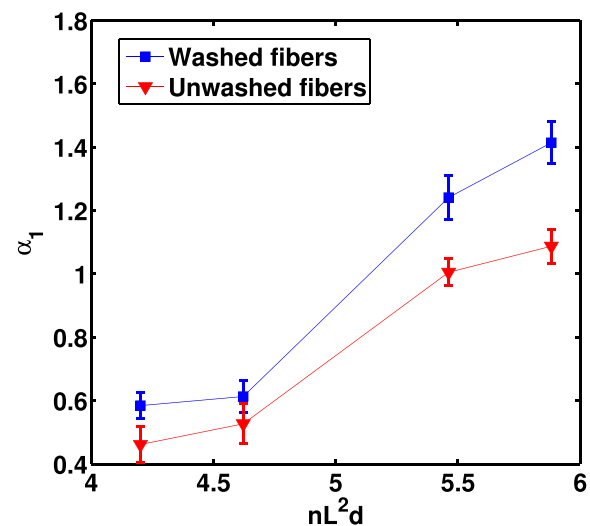


FIG. 12. First normal stress coefficients, for $a_r = 33$ measured for washed (blue squares) or unwashed (red triangles) fibers.

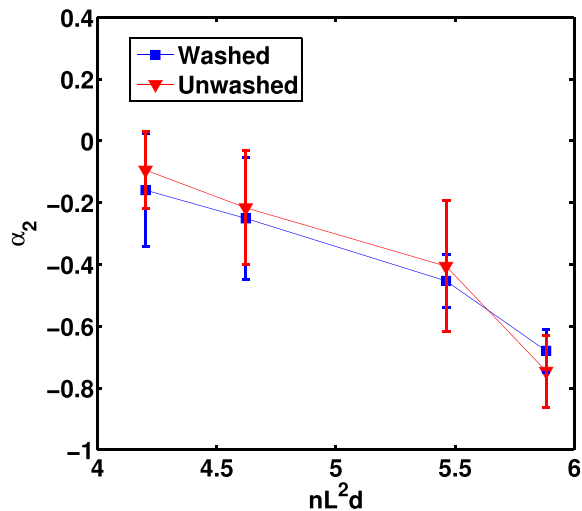


FIG. 13. Second normal stress coefficients, for $a_r = 33$ measured for washed (blue squares) or unwashed (red triangles) fibers.

between contacting fibers. These methods should be used to explore quantitatively the relationship between contact interactions and normal stress differences.

References

- [1] Batchelor, G. K., "The stress generated in a non-dilute suspension of elongated particles by pure straining motion," *J. Fluid Mech.* **46**, 813–829 (1971).
- [2] Shaqfeh, E. S. G., and G. H. Fredrickson, "The hydrodynamic stress in a suspension of rods," *Phys. Fluids A: Fluid Dyn.* **2**, 7–24 (1990).
- [3] Mackaplow, M. B., and E. S. G. Shaqfeh, "A numerical study of the rheological properties of suspensions of rigid, non-Brownian fibres," *J. Fluid Mech.* **329**, 155–186 (1996).
- [4] Fan, X., N. Phan-Thien, and R. Zheng, "A direct simulation of fibre suspensions," *J. Non-Newtonian Fluid Mech.* **74**, 113–135 (1998).
- [5] Sundararajakumar, R. R., and D. L. Koch, "Structure and properties of sheared fiber suspensions with mechanical contacts," *J. Non-Newtonian Fluid Mech.* **73**, 205–239 (1997).
- [6] Lindström, S. B., and T. Uesaka, "A numerical investigation of the rheology of sheared fiber suspensions," *Phys. Fluids* **21**, 083301 (2009).
- [7] Snook, B., L. M. Davidson, J. E. Butler, O. Pouliquen, and E. Guazzelli, "Normal stress differences in suspensions of rigid fibres," *J. Fluid Mech.* **758**, 486–507 (2014).
- [8] Folgar, F., and C. L. Tucker, "Orientation behavior of fibers in concentrated suspensions," *J. Reinf. Plast. Compos.* **3**, 98–119 (1984).
- [9] Zirnask, M. A., D. U. Hur, and D. V. Boger, "Normal stresses in fibre suspensions," *J. Non-Newtonian Fluid Mech.* **54**, 153–193 (1994).
- [10] Carter, L. F., A study of the rheology of suspensions of rod-shaped particles in a Navier-Stokes liquid, Ph.D. thesis, University of Michigan, Ann Arbor, MI, 1967.
- [11] Djalili-Moghaddam, M., and Toll, S., "A model for short-range interactions in fibre suspensions," *J. Non-Newtonian Fluid Mech.* **132**, 73–83 (2005).
- [12] Férec, J., G. Ausias, M. C. Heuzey, and P. J. Carreau, "Modeling fiber interactions in semiconcentrated fiber suspensions," *J. Rheol.* **53**, 49–72 (2009).
- [13] Natale, G., M. C. Heuzey, P. J. Carreau, G. Ausias, and J. Férec, "Rheological modeling of carbon nanotube suspensions with rod-rod interactions," *AIChE J.* **60**, 1476–1487 (2014).
- [14] Keshtkar, M., M. C. Heuzey, and P. J. Carreau, "Rheological behavior of fiber-filled model suspensions: Effect of fiber flexibility," *J. Rheol.* **53**, 631–650 (2009).
- [15] Schmid, C. F., L. H. Switzer, and D. J. Klingenberg, "Simulations of fiber flocculation: Effects of fiber properties and interfiber friction," *J. Rheol.* **44**, 781–809 (2000).
- [16] Petrich, M. P., D. L. Koch, and C. Cohen, "An experimental determination of the stress-microstructure relationship in semi-concentrated fiber suspensions," *J. Non-Newtonian Fluid Mech.* **95**, 101–133 (2000).
- [17] Sepehr, M., P. J. Carreau, M. Moan, and G. Ausias, "Rheological properties of short fiber model suspensions," *J. Rheol.* **48**, 1023–1048 (2004).
- [18] Dbouk, T., Rheology of concentrated suspensions and shear-induced migration, Ph. D. thesis, Université Nice Sophia Antipolis, Nice, France, 2011.
- [19] Dbouk, T., L. Lobry, and E. Lemaire, "Normal stresses in concentrated non-brownian suspensions," *J. Fluid Mech.* **715**, 239–272 (2013).
- [20] Zarraga, I. E., D. A. Hill, and D. T. Leighton, Jr., "The characterization of the total stress of concentrated suspensions of noncolloidal spheres in Newtonian fluids," *J. Rheol.* **44**, 185–220 (2000).
- [21] Boyer, F., O. Pouliquen, and É. Guazzelli, "Dense suspensions in rotating-rod flows: Normal stresses and particle migration," *J. Fluid Mech.* **686**, 5–25 (2011).
- [22] Couturier, E., F. Boyer, O. Pouliquen, and É. Guazzelli, "Suspensions in a tilted trough: Second normal stress difference," *J. Fluid Mech.* **686**, 26–39 (2011).
- [23] Gamonpilas, C., J. F. Morris, and M. M. Denn, "Shear and normal stress measurements in non-Brownian monodisperse and bidisperse suspensions," *J. Rheol.* **60**, 289–296 (2016).
- [24] Mongruel, A., and M. Cloitre, "Shear viscosity of suspensions of aligned non-Brownian fibres," *Rheol. Acta* **38**, 451–457 (1999).
- [25] Ganani, E., and R. L. Powell, "Suspensions of rodlike particles: Literature review and data correlations," *J. Compos. Mater.* **19**, 194–215 (1985).
- [26] Chaouche, M., and D. L. Koch, "Rheology of non-Brownian rigid fiber suspensions with adhesive contacts," *J. Rheol.* **45**, 369–382 (2001).
- [27] Goto, S., H. Nagazono, and H. Kato, "The flow behavior of fiber suspensions in Newtonian fluids and polymer solutions," *Rheol. Acta* **25**, 246–256 (1986).
- [28] Bird, R. B., R. C. Armstrong, O. Hassager, and C. F. Curtiss, *Dynamics of Polymeric Liquids* (Wiley, New York, 1977), Vol. 1.
- [29] Doi, M., and S. F. Edwards, *The Theory of Polymer Dynamics* (Oxford University, Oxford, UK, 1988), Vol. 73.
- [30] Forgacs, O. L., and S. G. Mason, "Particle motions in sheared suspensions: IX. Spin and deformation of threadlike particles," *J. Colloid Sci.* **14**, 457–472 (1959).
- [31] Brenner, H., "Rheology of a dilute suspension of axisymmetric Brownian particles," *Int. J. Multiphase Flow* **1**, 195–341 (1974).
- [32] Jeffery, G. B., "The motion of ellipsoidal particles immersed in a viscous fluid," *Proc. R. Soc. London: Ser. A* **102**, 161–179 (1922).
- [33] McCoy, D. H., and M. M. Denn, "Secondary flow in a parallel-disk viscometer," *Rheol. Acta* **10**, 408–411 (1971).
- [34] Keentok, M., and S.-C. Xue, "Edge fracture in cone-plate and parallel plate flows," *Rheol. Acta* **38**, 321–348 (1999).
- [35] Snook, B., The dynamics of the microstructure and the rheology in suspensions of rigid particles, Ph.D. thesis, University of Florida, Gainesville, FL, 2015.
- [36] Petrich, M. P., and D. L. Koch, "Interactions between contacting fibers," *Phys. Fluids* **10**, 2111–2113 (1998).

6.3 Complément de l'article

Nous présenterons dans cette section quelques compléments de l'article concernant la validation de la méthode et du dispositif expérimental pour les mesures des deux différences de contraintes normales et de la pression particulaire.

6.3.1 Validation des mesures de pressions

Avant d'entamer toutes procédures expérimentales pour la détermination des deux différences de contraintes normales, nous nous sommes d'abord assurés que les capteurs de pression mesurent correctement les pressions en question. Un moyen de tester le bon fonctionnement des capteurs est de vérifier la pression hydrostatique et la pression inertielle.

Pression hydrostatique

Pour mesurer la pression hydrostatique, nous avons placé un tube cylindrique autour du plan inférieur. De cette façon, nous disposons d'une cuve cylindrique dont le fond est équipé de capteurs de pression. Après avoir initialisé les pressions à 0, nous avons peu à peu ajouté une masse d'eau distillée ($\rho = 1g/cm^3$), faisant ainsi varier la hauteur. A chaque niveau de l'eau (h), nous avons relevé le signal enregistré par les capteurs de pression. La figure 6.1 (a) montre un exemple de la pression hydrostatique enregistrée par les différents capteurs. La figure 6.1 (b) illustre la valeur de la pression moyenne mesurée par les 8 capteurs en fonction de la hauteur h , la courbe en bleu représente le fit linéaire de la pression hydrostatique : $P(Pa) = 9.76 \cdot 10^3 \cdot h(m)$. On vérifie ainsi que tous les capteurs mesurent bien la même pression avec une dispersion de moins de 5%, et que cette pression est bien la pression hydrostatique attendue ($P(Pa) = 9.81 \cdot 10^3 \cdot h(m)$).

Pression inertielle

Dans un écoulement torsionnel, et même à faible nombre de *Reynolds*, Re_e , lorsque un fluide newtonien est cisailé, un écoulement secondaire peut apparaître à cause de la pression inertielle. Cette pression inertielle est d'autant plus importante que la vitesse de rotation du disque est grande. L'écoulement secondaire consiste en un mouvement vers l'intérieur du fluide à proximité du plan fixe et à un écoulement vers l'extérieur à proximité du disque rotatif. [MCCOY & Denn 1971] proposent une expression analytique pour la pression, p_i à proximité du disque fixe pour un fluide newtonien et un écoulement à faible nombre de *Reynolds* :

$$p_i = 0.15\rho_0\Omega^2 (r^2 - R^2) \quad (6.1)$$

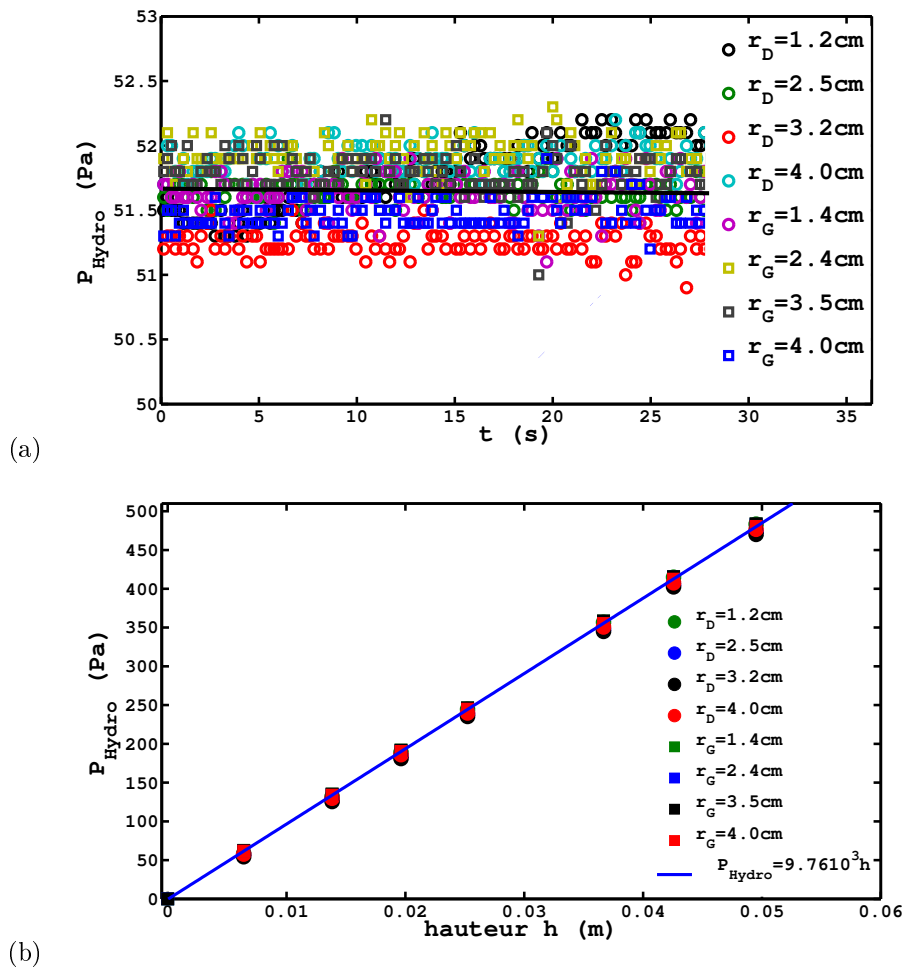


FIG. 6.1 – Test de pression hydrostatique sur les différents capteurs de pression

où ρ_0 est la densité du fluide, r est la position radiale des différents capteurs, Ω est la vitesse angulaire et R est le rayon du disque. Pour effectuer le test de mesure, nous avons utilisé un fluide newtonien composé de (70% d'eau et 30% de UCON oil de viscosité $\eta_0 = 0.138 \text{Pas}$), de densité $\rho_0 = 1.09 \cdot 10^3 \text{kg/m}^3$. Les mesures de pression sont reportées sur la figure 6.2 qui montre un très bon accord des mesures expérimentales (les symboles en cercles (capteurs directs) et les symboles carrés (capteurs à grilles)) avec le profil de pression théorique (équation 6.1). Nous concluons que notre dispositif expérimental permet de mesurer les pressions convenablement. Notons, que pour les expériences de mesures des deux différences de contraintes normales, la vitesse angulaire du disque supérieur Ω est toujours inférieure à 2rads^{-1} . De ce fait, la pression inertielle peut être négligée.

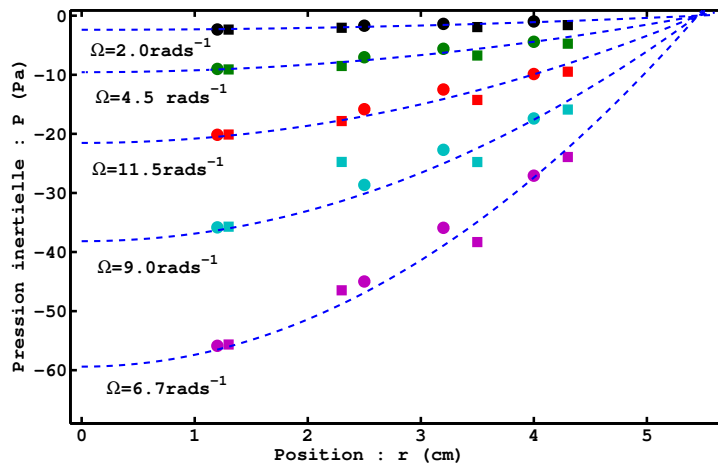


FIG. 6.2 – Mesure de pression inertielle enregistrée par les capteurs de pression. Capteurs directs (symboles cercles). Capteurs à grille (symboles carrés). Les capteurs reproduisent correctement la prédiction du profil théorique de la pression inertielle.

6.3.2 Validation de la procédure expérimentale

Afin de valider la procédure expérimentale, nous avons confronté les mesures directes des forces exercées sur le disque supérieur, F , qui sont mesurées par le rhéomètre avec les mesures du profil Σ_{22} . Nous avons pour cela considéré une suspension de fibres suffisamment concentrée ($a_r = 10$, $\phi = 0.21$), afin d'obtenir un signal assez élevé des forces directes F . La figure 6.3 montre le signal enregistré quand des créneaux de contraintes appliquées selon le même protocole décrit dans l'article (section 3). On constate une dérive du signal de force au cours du temps. Il est important de noter que cette dérive n'est pas due à un artefact de mesure dû à la suspension, mais à un problème lié au capteur de force du rhéomètre. En effet, la même dérive est observée quand un fluide newtonien est cisailé et provient d'une augmentation de la température au voisinage du capteur de force dont

la réponse dérive par conséquent. Pour éliminer cette dérive, nous avons soustrait le signal qui correspond au temps de pause T_{rest} :

$$F = F_i - \frac{(F_0(i) + F_0(i + 1))}{2} \quad (6.2)$$

où F_i est le signal de la force mesurée pour un créneau de contraintes appliquées, $F_0(i)$ et $F_0(i + 1)$ correspondent aux signaux de forces obtenus pendant les temps de pause avant et après le créneau de contrainte, tandis que la force totale F est calculée par une moyenne sur le temps correspondant à la même durée pour les mesures de Σ_{22} (voir l'article section 4 : Operating conditions) et pour laquelle la viscosité atteint l'état stationnaire. Par ailleurs, nous avons mesuré simultanément le signal de Σ_{22} enregistré par les capteurs de pression, nous avons alors calculé la force directe à partir de l'intégration du profil de Σ_{22} sur toute la surface du disque. La figure 6.4 illustre la force directe en fonction du taux de cisaillement et une comparaison des mesures de force directe avec l'intégration de Σ_{22} . Il est satisfaisant de voir que notre dispositif donne les mêmes valeurs que par la mesure directe. Cette comparaison valide nos résultats sur les deux différences de contraintes normales.

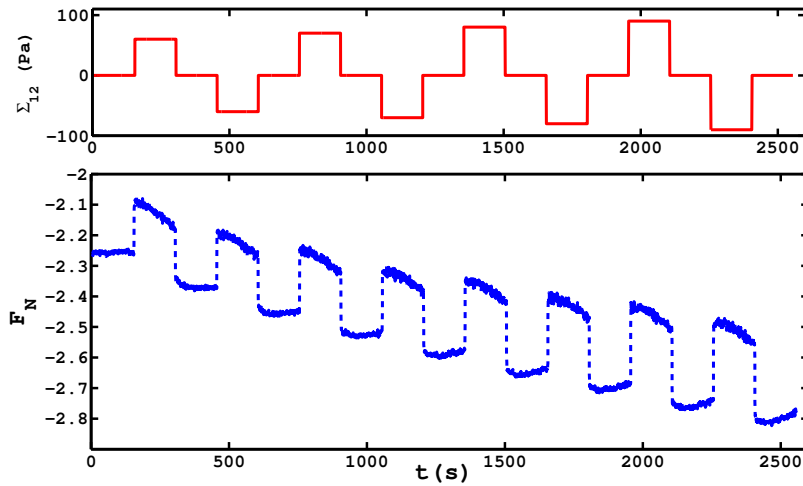


FIG. 6.3 – Signal enregistré sur les mesures de forces directes exercées sur le disque supérieur de la géométrie F (lignes bleues) au cours du temps. Le protocole expérimental représenté sur la figure plus haut (ligne rouge). Exemple d'une suspension de fibres $a_r = 10, \phi = 0.21$

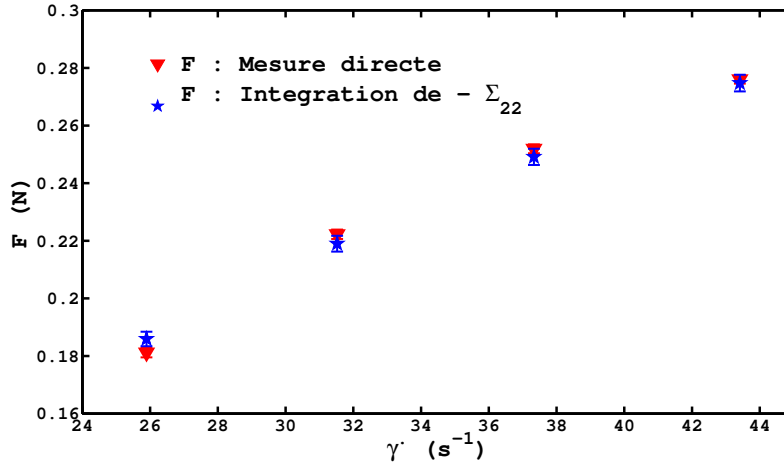


FIG. 6.4 – Comparaison entre les mesures directes de la force exercée sur le disque supérieur de la géométrie avec la force totale obtenue par intégration du profil de Σ_{22} sur le disque. Les deux mesures donnent des valeurs comparables. Exemple d'une suspension de fibres $a_r = 10$, $\phi = 0.21$.

6.4 Contraintes normales particulières et migration

Dans cette section, nous présenterons pour la première fois des résultats sur les mesures des contraintes normales particulières dans les suspensions de fibres concentrées non browniennes.

Nous proposons de déterminer les contraintes normales particulières en mesurant d'une part les contraintes normales totales dans la suspension et, d'autre part, la pression dans le fluide suspendant. Les contraintes normales d'origine particulière sont alors obtenues en soustrayant la pression dans le fluide aux contraintes normales totales.

Ces résultats sont préliminaires et donnent cependant un ordre de grandeur des contraintes particulières qui dans le cadre du modèle **SBM** "Suspensions Balance Model", [Morris & Boulay 1999], [Nott *et al.* 2011] sont responsables de la migration induite par un écoulement.

Nous présenterons en premier lieu, la méthode utilisée pour la détermination des contraintes normales particulières et nous présenterons le dispositif et le protocole expérimental, ensuite, nous donnerons quelques exemples de mesures du profil radial de la pression dans fluide suspendant, et nous présenterons enfin nos résultats sur les contraintes normales particulières et la migration.

6.4.1 Dispositif expérimental

Pour déterminer les contraintes normales d'origine particulière, nous utilisons le même dispositif que celui décrit dans la section précédente. Aux quatre capteurs de pression directe, nous ajoutons quatre autres capteurs à grille qui permettent de mesurer la pression dans le liquide interstitiel. Ces

capteurs sont constitués d'une grille placée au niveau du plan inférieur immobile, tel qu'illustré sur la figure 6.5 ; à l'arrière de la grille, un tube est fixé et connecté à un capteur de pression identique aux capteurs de pression directe (ATM 625 mbar, STS).

Le tube est rempli d'une solution aqueuse de $NaBr_2$ de même densité que celle de la suspension placée au dessus des grilles afin d'éviter des écoulement provoqués par la gravité. Nous prenons soin, lors du remplissage du tube, de ne pas piéger à l'intérieur des bulles d'air, dont la présence conduirait à des erreurs sur la pression mesurée.

Les grilles empêchent ainsi les fibres de passer dans les tubes mais permettent de mesurer la pression dans le fluide interstitiel. Les grilles que nous avons utilisées ont un diamètre de $1mm$ et sont constituées de mailles carrées de $40 \mu m$ de côté.

Le placement des grilles au même niveau que le plan est particulièrement important pour éviter des perturbations de l'écoulement entre les deux disques ce qui conduirait à des erreurs sur la pression mesurée.

Afin d'assurer un placement correct, la grille est emboutie entre deux petits cylindres dont la différence de rayons est légèrement supérieure à l'épaisseur de la grille. Les deux cylindres coaxiaux sont alors insérés dans un autre cylindre plus gros, qui est vissé sur le plan inférieur du rhéomètre, de telle façon que la grille affleure le niveau du plan. Les grilles sont alors placées à différentes positions radiales $r_g=[1.4; 2.4; 3.5; 4.4] \text{ cm}$. Les capteurs directs, ainsi que les capteurs à grille, sont placés aux même niveau que le plan inférieur de la géométrie.

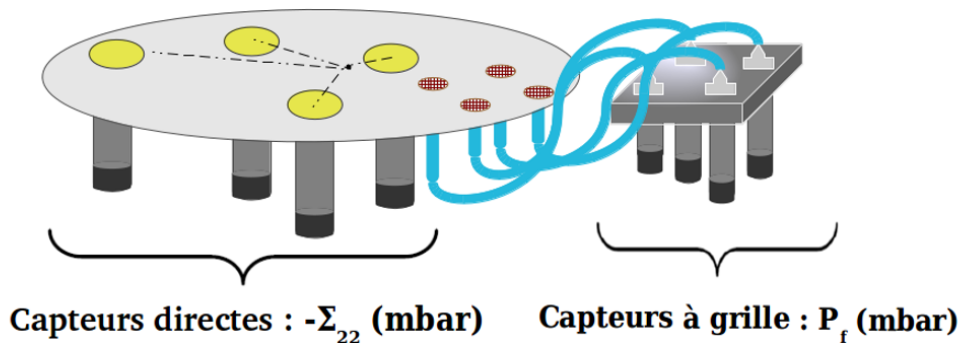


FIG. 6.5 – Dispositif expérimental pour les mesures de pression, quatre capteurs directs qui mesurent la contrainte totale dans la direction du gradient de vitesse, Σ_{22}^T de la suspension et quatre capteurs à grille qui mesurent la pression dans le fluide interstitiel, p^f .

6.4.2 Détermination des contraintes normales particulières Σ^p

Le dispositif expérimental décrit ci-dessus permet de déterminer simultanément la contrainte normale totale dans la suspension, Σ_{22}^T , et la contrainte normale dans le fluide suspendant, $\bar{\Sigma}^f = -p^f \bar{I}$, où p^f est la pression dans le fluide suspendant. Nous sommes alors en mesure de déterminer la contrainte normale particulière, $\bar{\Sigma}^p$, en nous basant sur les hypothèses suivantes :

- La contrainte normale totale dans la suspension est la somme des contributions de la contrainte du fluide suspendant et des fibres :

$$\bar{\Sigma}^T = \bar{\Sigma}^f + \bar{\Sigma}^p \quad (6.3)$$

- Dans l'écoulement de cisaillement simple, les composantes diagonales du tenseur de taux de déformation \bar{e} sont nulles. De ce fait, les composantes des contraintes normales dans le fluide suspendant ne comportent pas de terme visqueux et sont par conséquent isotropes.

$$\Sigma_{11}^f = \Sigma_{22}^f = \Sigma_{33}^f = -p^f \quad (6.4)$$

- La pression du fluide mesurée derrière la grille est égale à la moyenne de la pression mesurée dans le fluide suspendant. Ainsi, la pression mesurée par les capteurs à grille, quand on lui a soustrait la pression hydrostatique créée par la colonne de fluide dans les tuyaux, correspond à la pression du fluide interstitiel.

Ces hypothèses nous permettent de déterminer les contraintes normales particulières à partir des équations (6.3) et (6.4) comme suit :

$$\bar{\Sigma}^p = \bar{\Sigma}^T - \bar{\Sigma}^f = \bar{\Sigma}^T + p^f \bar{I} \quad (6.5)$$

Nous allons à présent décrire la démarche adoptée pour déterminer expérimentalement les contraintes normales particulières, Σ_{11}^p , Σ_{22}^p , Σ_{33}^p . Rappelons que pour les mesures des différences de contraintes normales totales, la méthode consiste à déterminer le profil radial de Σ_{22}^T de la suspension à partir de la résolution de l'équation du bilan de forces (équation (1.29)) :

$$\vec{\nabla} \bar{\Sigma}^T = \vec{\nabla} \cdot \bar{\Sigma}^p + \vec{\nabla} \cdot \bar{\Sigma}^f = \vec{0}, \quad (6.6)$$

ce qui donne à partir de l'équation (6.3) :

$$\vec{\nabla} \cdot \bar{\Sigma}^p = -\vec{\nabla} \cdot \bar{\Sigma}^f = \vec{\nabla} p^f \bar{I} \quad (6.7)$$

Cette équation montre que la divergence des contraintes normales particulières est égale au gradient de la pression fluide. En écrivant l'équation (6.7) dans les coordonnées cylindriques, nous obtenons l'expression du gradient de la pression du fluide $\frac{\partial p^f}{\partial r}$ en terme des deux composantes des contraintes normales particulières Σ_{11}^p et Σ_{33}^p :

$$\frac{\partial p^f}{\partial r} = \frac{\partial \Sigma_{33}^p}{\partial r} + \frac{\Sigma_{33}^p - \Sigma_{11}^p}{r} \quad (6.8)$$

D'autre part, nous adoptons la notation de [Morris & Boulay 1999] qui introduisent l'anisotropie des contraintes normales particulières en les définissant de la manière suivante :

$$\Sigma_{ii}^p = \beta^N(\phi) \lambda_i \Sigma_{12}(R) \quad (6.9)$$

où $\beta^N(\phi)$ est le rapport de la viscosité normale sur la viscosité tangentielle ou, plus précisément le rapport $\frac{\Sigma_{11}^p}{\Sigma_{12}(R)}$. Ainsi, par définition $\lambda_1 = 1$. En remplaçant l'expression de Σ_{11}^p et Σ_{33}^p par l'équation (6.9), le gradient de la pression dans le fluide s'écrit :

$$\frac{\partial p^f}{\partial r/R} = \beta^N(\phi) \Sigma_{12}(R) ((n+1)\lambda_3 - 1) \left(\frac{r}{R}\right)^{n-1} \quad (6.10)$$

Avec $\Sigma_{12}(R)$ est la contrainte tangentielle au bord. En intégrant l'équation (6.10), on obtient le profil radial de $p^f(r/R)$ normalisé par la contrainte tangentielle, $\Sigma_{12}(R)$:

$$\frac{p^f(r/R)}{\Sigma_{12}(R)} = \beta^N(\phi) \left(\frac{(n+1)\lambda_3 - 1}{n}\right) \left(\frac{r}{R}\right)^n + cst \quad (6.11)$$

On s'attend alors à un profil linéaire de la pression fluide, $\frac{p^f(r/R)}{\Sigma_{12}(R)}$, lorsque celle-ci est tracée en fonction de $\left(\frac{r}{R}\right)^n$ dont la pente A^f et l'ordonnée à l'origine B^f sont égales à :

$$\begin{cases} A^f = \beta^N(\phi) \left(\frac{(n+1)\lambda_3 - 1}{n}\right) \\ B^f = cst = P^f \left(\frac{r}{R} = 0\right) \end{cases} \quad (6.12)$$

Notons que, puisque les contraintes normales particulières, Σ^p , ainsi que les différences de contraintes normales, N_1 et N_2 sont proportionnelles aux contraintes tangentielles, celles-ci doivent être nulles au centre du disque ($r = 0$), étant donné que $\Sigma_{12}(r = 0) = 0$. De ce fait, la contrainte normale du fluide au centre du disque $\frac{\Sigma_{22}^f(r/R=0)}{\Sigma_{12}(R)}$, est égale à l'ordonnée à l'origine B obtenue du profil

radial de la contrainte totale $\frac{\Sigma_{22}^T(r/R=0)}{\Sigma_{12}(R)}$ (voir équation (12), section (6.2)), ce qui donne :

$$\frac{\Sigma_{22}^T(r/R=0)}{\Sigma_{12}(R)} = \frac{\Sigma_{22}^f(r/R=0)}{\Sigma_{12}(R)} = -B^f = -P^f \left(\frac{r}{R} = 0 \right) \quad (6.13)$$

Le profil radial de la pression dans le fluide suspendant s'écrit alors :

$$\frac{p^f(r/R)}{\Sigma_{12}(R)} = \beta^N(\phi) \left(\frac{(n+1)\lambda_3 - 1}{n} \right) \left(\frac{r}{R} \right)^n + \frac{\alpha_1 + \alpha_2}{n} \quad (6.14)$$

où, α_1 et α_2 sont les deux coefficients de la première et la deuxième différence de contraintes normales (équation (5), section (6.2)).

A partir de la pente A^f et des deux différences de contraintes normales, α_1 et α_2 :

$$\left\{ \begin{array}{l} A^f = \beta^N(\phi) \left(\frac{(n+1)\lambda_3 - 1}{n} \right) \\ \alpha_1 = \frac{\Sigma_{11}^T - \Sigma_{22}^T}{\Sigma_{12}(R)} = \beta^N(\phi)(1 - \lambda_2) \\ \alpha_2 = \frac{\Sigma_{22}^T - \Sigma_{33}^T}{\Sigma_{12}(R)} = \beta^N(\phi)(\lambda_2 - \lambda_3) \\ \alpha_1 + \alpha_2 = \beta^N(\phi)(1 - \lambda_3) \end{array} \right. \quad (6.15)$$

et, en combinant les différentes expressions dans l'équation (6.15), nous sommes en mesure de déterminer toutes les grandeurs physiques introduites par le modèle de [Morris & Boulay 1999] dans l'équation (6.9) :

$$\left\{ \begin{array}{l} \lambda_3 = \frac{R^f n + 1}{(R^f n + (n+1))} \quad , \text{ avec } R^f = \frac{A^f}{\alpha_1 + \alpha_2} \\ \beta^N(\phi) = \frac{\alpha_1 + \alpha_2}{(1 - \lambda_3)} \\ \lambda_2 = 1 - \frac{\alpha_1}{\beta^N(\phi)} \end{array} \right. \quad (6.16)$$

Ainsi, à partir des équations (6.9 et 6.16), nous sommes en mesure de déterminer les 3 contraintes normales particulières, Σ_{11}^p , Σ_{22}^p et Σ_{33}^p . Par la suite, nous allons procéder aux mesures expérimentales de ces grandeurs.

6.4.3 Protocole expérimental

Pour chaque suspension de rapport d'aspect et de concentration donnés, un créneau de contrainte est appliqué dans un sens puis dans l'autre tel qu'illustré sur la figure 6.6. La durée du créneau est choisie de façon telle que les fibres situées au niveau du capteur le plus proche du centre aient le temps d'accomplir plusieurs révolutions. Lorsque la pression et la viscosité atteignent l'état stationnaire, le signal de pression mesuré par chacun des capteurs est moyenné sur plusieurs révolutions du disque supérieur dans un sens et dans l'autre.

Rappelons que cette procédure est rendue nécessaire par des défauts de parallélisme qui, si on ne s'en affranchissait pas, conduiraient à des erreurs sur les mesures de pression (voir équation (18) section (6.2)).

Une fois les mesures effectuées sur une valeur de la contrainte, l'entrefer est ré-ouvert, la suspension est homogénéisée à nouveau à l'aide d'une spatule, et mélangée délicatement afin d'éviter d'inclure des bulles d'air. L'entrefer est alors refermé et nous procédons à une nouvelle mesure pour une contrainte différente.

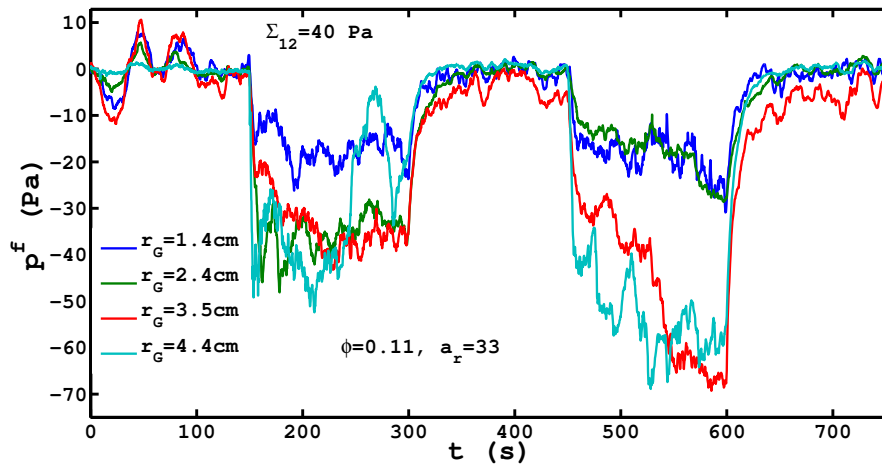


FIG. 6.6 – Exemple du signal enregistré par les capteurs à grille situés à différentes positions radiales : $r_g = [1.4; 2.4; 3.5; 4.4]$ cm pour les mesures de pression fluide. Les mesures sont effectuées pour une contrainte appliquée $\Sigma_{12}(R) = 40 Pa$ pour une suspension de fibres de rapport d'aspect $a_r = 33$ et de concentration $\phi = 0.11$.

6.4.4 Exemples de profil radial de p^f

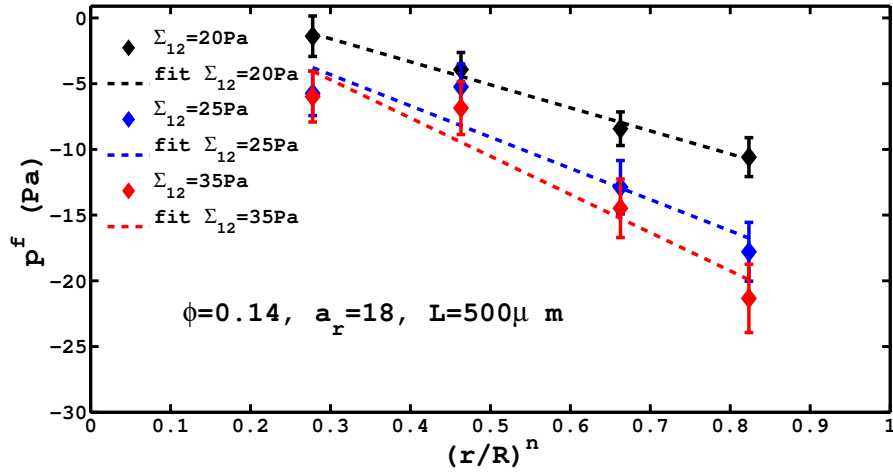
La figure 6.7 (a) illustre un exemple du profil radial de la pression fluide, $p^f(r/R)$ mesurée par les différents capteurs à grille, pour une suspension de fibres ($\phi = 0.14, a_r = 18$) et différentes

contraintes appliquées. La figure montre clairement que la pression du fluide suspendant n'est pas constante dans l'entrefer, et présente un profil linéaire lorsque celle-ci est tracée en fonction de $(r/R)^n$.

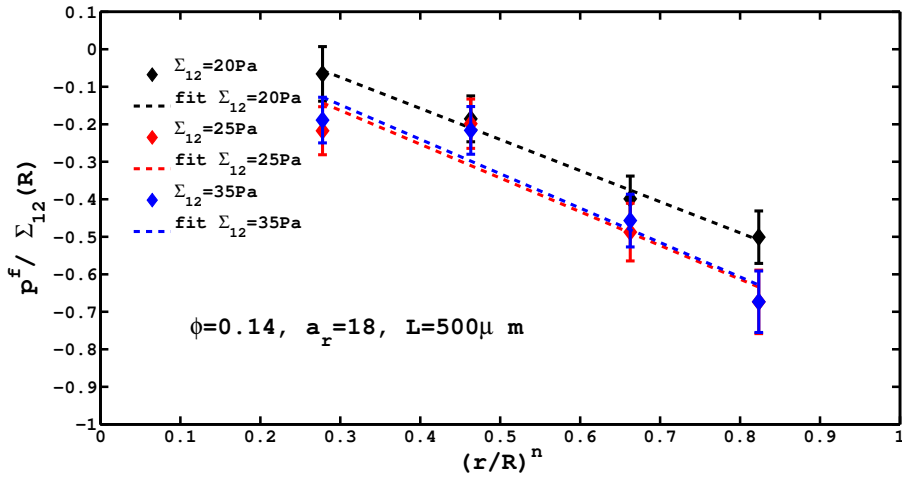
De plus, la figure indique que la pression du fluide décroît lorsqu'on s'éloigne du centre. En d'autres termes, il existe un gradient de pression de fluide vers l'intérieur, ce qui implique la présence d'un flux de fluide vers l'extérieur, et donc un flux des fibres vers le centre pour le contrebalancer. Les fibres migrent donc vers le centre (les régions moins cisillées). Notons que ce résultat est différent de ce qui a été observé dans les suspensions de sphères en écoulement torsionnel plusieurs auteurs rapportent une migration faible ou quasi absente des particules [Dbouk 2011], [Merhi *et al.* 2005], [Chow *et al.* 1994].

La figure 6.7 (b) montre le même profil normalisé par $\Sigma_{12}(R)$. Les courbes collapent aux erreurs expérimentales près. Pour chacun des capteurs, nous considérons alors le profil obtenu à partir de la moyenne des pressions normalisées par les contraintes appliquées. A partir de ce profil, nous déduisons la pente A_{exp}^f , et de l'ordonnée à l'origine B_{exp}^f expérimentales pour ensuite déterminer les contraintes normales particulières, Σ_{ii}^p (équation 6.9).

Il est important de souligner que cette expérimentation présente d'assez grandes difficultés. Malgré toutes les précautions que nous avons apportées aux mesures, il apparaît dans certains cas, que nous n'obtenions pas un profil linéaire de la pression fluide, sans doute, en raison d'apparition de bulles d'air dans les tubes au cours de l'expérience. Cependant, cela ne remet pas en cause la validité ni la reproductibilité des mesures. Ainsi, dans le cas où des problèmes surviennent comme par exemple pour la suspension ($\phi = 0.11$, $a_r = 33$) où le profil de pression n'est pas linéaire (voir les figures 6.8 (a) et (b)). Nous n'avons considéré pour le calcul de la pente A^f et la pression fluide B^f que les capteurs qui semblaient donner une valeur raisonnable de pression. Ainsi, pour chacune des suspensions étudiées, nous avons dû examiner chaque mesure pour déterminer le profil moyen de p^f et éventuellement écarter des points de mesure de pression quand il semblaient incorrects. Il serait ainsi utile de disposer d'un plus grand nombre de capteurs à grille afin de minimiser les erreurs expérimentales.



(a)



(b)

FIG. 6.7 – Exemple du profil radial de la pression fluide p^f pour une suspension de fibres ($\phi = 0.14, a_r = 18$). (a) variation de la pression fluide en fonction de $(r/R)^n$. (b) La pression fluide p^f normalisée par la contrainte tangentielle $\Sigma_{12}(R)$. La figure indique que la pression fluide n'est pas constante dans l'entrefer.

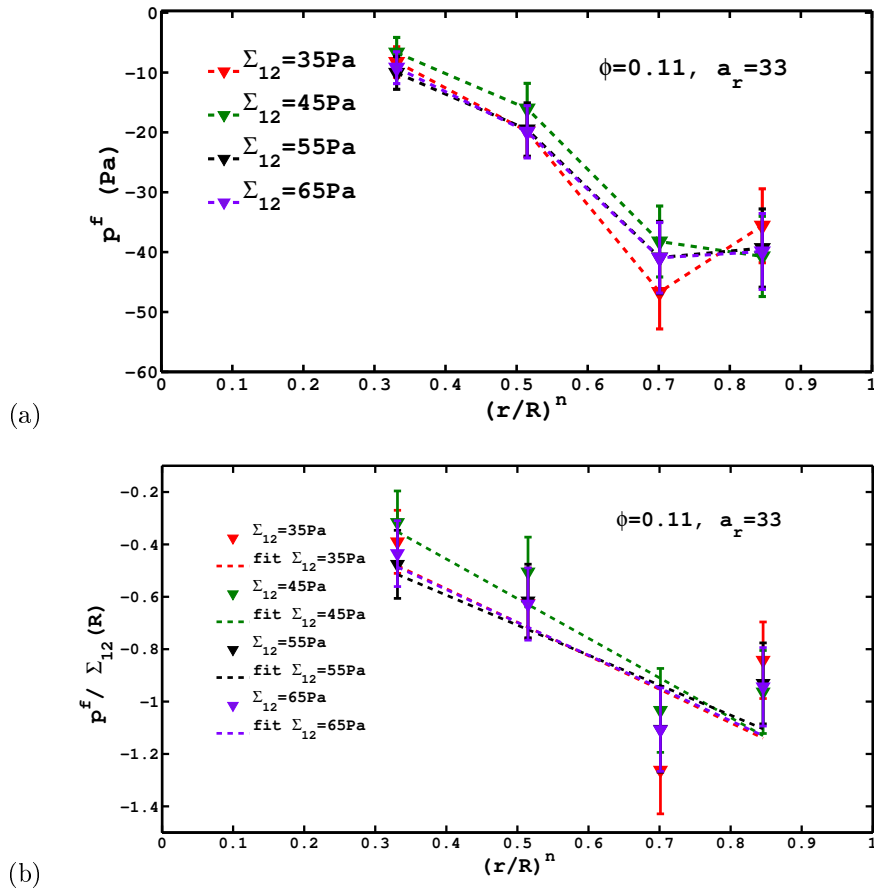


FIG. 6.8 – Exemple du profil radial de la pression fluide p^f pour une suspension de fibres ($\phi = 0.11, a_r = 33$). (a) variation de la pression fluide en fonction de $(r/R)^n$. (b) La pression fluide p^f normalisée par la contrainte tangentielle $\Sigma_{12}(R)$.

6.5 Résultats et discussions

6.5.1 Résultats sur les contraintes normales particulières

La figure 6.9 montre une comparaison des ordonnées à l'origine du profil radial de la contrainte normale totale, $\Sigma_{22}^T(r=0)$ et la pression fluide $p^f(r=0)$ normalisées par la contrainte tangentielle $\Sigma_{12}(R)$. Comme cela est attendu (équation (6.13)), à l'origine, les contraintes normales particulières, $\Sigma_{22}^p(r=0)$ étant nulles, la contrainte totale dans la suspensions $\Sigma_{22}^T(r=0)$ est égale à l'opposé de la pression fluide, $-p^f(r=0)$. Les contraintes normales particulières Σ_{11}^p , Σ_{22}^p et Σ_{33}^p

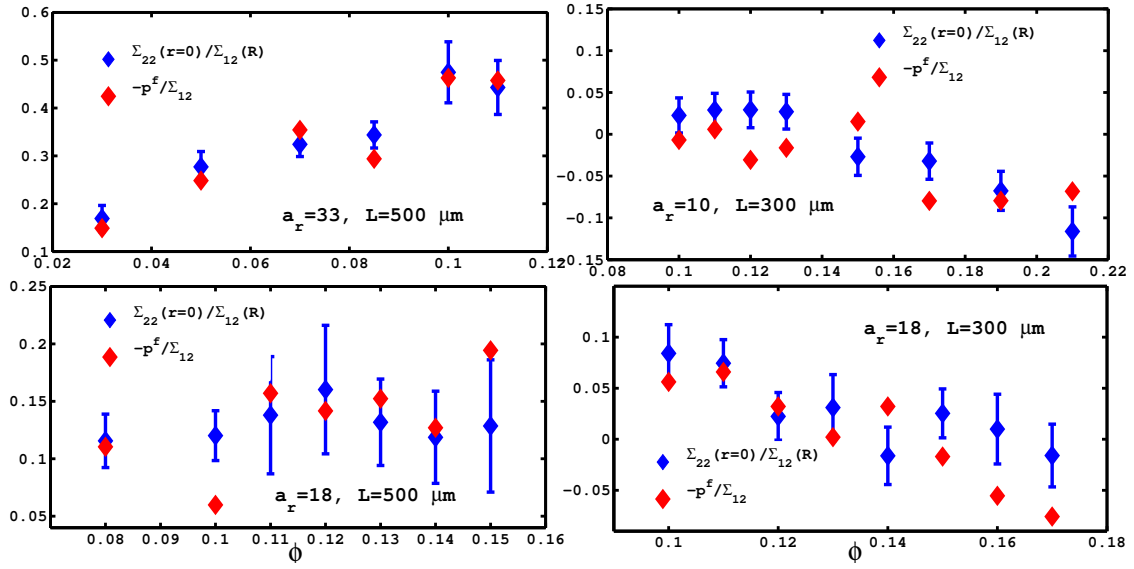


FIG. 6.9 – Comparaison de la pression fluide à l'origine $p^f(r=0)$ et la contrainte normale totale à l'origine $\Sigma_{22}^T(r=0)$ normalisées par la contrainte tangentielle $\Sigma_{12}(R)$ en fonction de la concentration ϕ mesurées pour des suspensions de fibres de différentes concentrations et rapports d'aspect.

normalisées par $\Sigma_{12}(R)$ sont déterminées à partir de la pente A_{exp}^f de la pression fluide p^f et des deux différences de contraintes normales α_1 et α_2 (voir équations (6.9) et (6.16)). La variation des trois contraintes particulières normalisées par la contrainte de cisaillement en fonction de nL^2d est représentée sur la figure 6.10. On remarque en particulier que, quelque soit le rapport d'aspect, les rapports $\frac{\Sigma_{ii}}{\Sigma_{12}}$ décrivent approximativement la même courbe quand ils sont tracés en fonction de nL^2d .

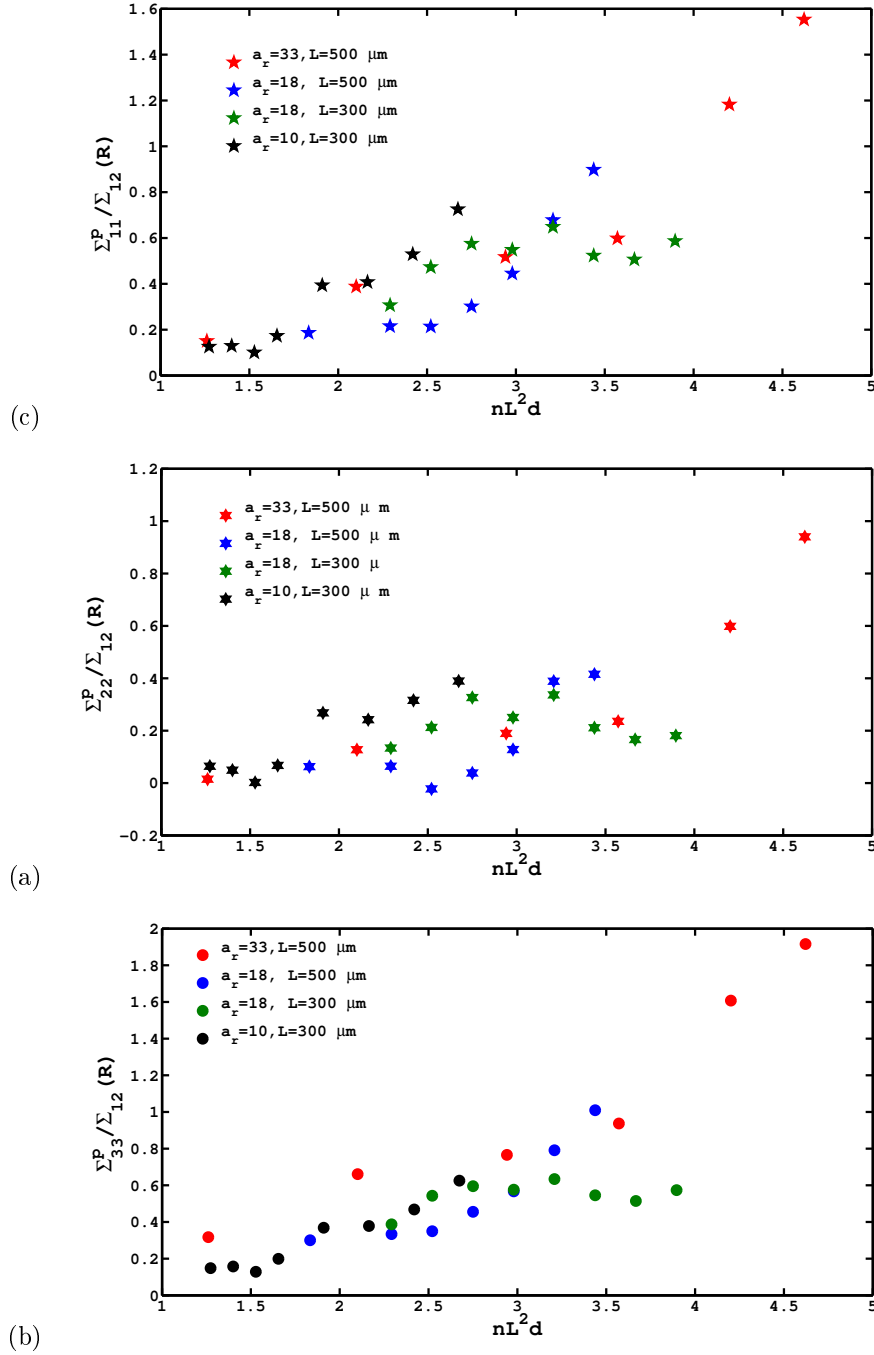


FIG. 6.10 – Contraintes normales particulières normalisées par la contrainte tangentielle. (a) Première contrainte normale particulière $\frac{\Sigma_{22}^p}{\Sigma_{12}(R)}$ (b) Deuxième contrainte normale particulière $\frac{\Sigma_{22}^p}{\Sigma_{12}(R)}$. (c) troisième contrainte normales particulières $\frac{\Sigma_{33}^p}{\Sigma_{12}(R)}$.

6.5.2 Migration dans les suspensions de fibres

Dans la section précédente, nous avons présenté une détermination des 3 contraintes normales particulières, Σ_{11}^p , Σ_{22}^p et Σ_{33}^p . Il est important de connaître ces contraintes si on s'intéresse à la migration induite par un écoulement. La migration induite par un écoulement a été étudiée en détail dans les suspensions de sphères, même si de nombreuses questions restent ouvertes. Pour expliquer et prédire la migration qui se produit parfois quand une suspension est soumise à un taux de cisaillement inhomogène, il existe deux grandes classes de modèles. Les premiers décrivent la migration comme un processus diffusif induit par les collisions des particules les unes avec les autres. Ces modèles présentent une image très physique de la migration, cependant, les coefficients de diffusion présents dans les modèles ne peuvent être déterminés qu'en ajustant des données expérimentales de migration sans qu'il y ait la possibilité de les déterminer autrement.

La deuxième classe de modèles présente l'avantage essentiel que toutes les grandeurs intervenant dans le modèle peuvent être déterminées par des expériences directes. Parmi ces grandeurs, figurent les 3 contraintes normales particulières. L'idée de ces modèles est très simple, et consiste à écrire que le profil de fraction volumique s'établit de façon à maintenir la pression particulaire constante dans la suspension en écoulement. Cette approche développée par [Jenkins & McTigue 1990] fut ensuite testée par [Nott & Brady 1994] pour décrire la migration dans un tube cylindrique. Le modèle fut alors généralisé, en intégrant une éventuelle anisotropie des contraintes normales particulières, $\bar{\Sigma}^p$, par [Morris & Boulay 1999] pour rendre compte de la migration dans d'autres géométries, en particulier des géométries avec des lignes d'écoulement courbes. Décrivons rapidement ce modèle dans le cas d'une suspension de particules sphériques.

Nous définissons la vitesse moyenne locale de la suspension :

$$\phi \langle \vec{u} \rangle = \phi \langle \vec{u} \rangle_p + (1 - \phi) \langle \vec{u} \rangle_f \quad (6.17)$$

Où \vec{u}_p et \vec{u}_f sont les vitesses moyennes locales respectives des particules et du fluide suspendant.

La suspension est incompressible :

$$\vec{\nabla} \cdot \langle \vec{u} \rangle = 0 \quad (6.18)$$

et l'inertie est négligeable :

$$\vec{\nabla} \cdot \bar{\Sigma} = 0 \quad (6.19)$$

où $\bar{\Sigma}$ est le tenseur des contraintes qui est décomposé en deux parties : une contrainte fluide $\bar{\Sigma}^f$ et une contrainte particulaire, $\bar{\Sigma}^p$.

La conservation du nombre de particules implique :

$$\frac{\partial \phi}{\partial t} + \vec{\nabla} \cdot (\phi \vec{u}_p) = 0 \quad (6.20)$$

ou encore :

$$\frac{\partial \phi}{\partial t} + \langle \vec{u} \rangle \cdot \vec{\nabla} \cdot (\phi) = -\vec{\nabla} \cdot \vec{J} \quad (6.21)$$

où $\vec{J} = \phi(\vec{u}_p - \langle \vec{u} \rangle)$ représente le flux de migration.

En équilibrant les forces interparticulaires, $\vec{\nabla} \cdot \bar{\Sigma}^p$ et les forces hydrodynamiques, $6\pi\eta_0 a^2 f^{-1}(\phi)(\vec{u}_p - \langle \vec{u} \rangle)$, on obtient :

$$\vec{J} = \frac{2a^2}{9\eta_0} f(\phi) \cdot \vec{\nabla} \cdot \bar{\Sigma}^p \quad (6.22)$$

$f(\phi)$ est la fonction freinage dont l'expression s'inspire en général des études réalisées en sédimentation, et s'écrit comme le rapport de la vitesse de sédimentation d'une particule dans une suspension sur sa vitesse dans le fluide suspendant seul :

$$f(\phi) = \frac{u_p^{sed}(\phi)}{u_p^{sed}(0)} = (1 - \phi)^n, \text{ avec } n \approx 4 \quad (6.23)$$

L'évolution temporelle du profil de concentration en particules est alors donnée par :

$$\frac{\partial \phi}{\partial t} + \langle \vec{u} \rangle \cdot \vec{\nabla} \phi = -\frac{2a^2}{9\eta_0} f(\phi) \cdot \vec{\nabla} \cdot \bar{\Sigma}^p \quad (6.24)$$

Il faut noter que la définition précise du tenseur $\bar{\Sigma}^p$ qui intervient dans la migration est encore un sujet de questionnement. En effet, alors que Moris et Boulay proposent que c'est le tenseur particulaire total qu'il faut considérer, les études de Lhuillier en 2009 [Lhuillier 2009] puis de Nott et al. en 2011, [Nott *et al.* 2011] tendent à montrer que ce n'est pas la contrainte particulaire totale qui intervient dans le flux de migration, mais seulement la part de la contrainte liée aux interactions de contact entre particules, $\bar{\Sigma}^{ik}$.

Il est également difficile de donner une signification précise à ce que nous mesurons en soustrayant la pression dans le fluide interstitiel aux contraintes normales totales. Cette question est difficile et puisqu'elle n'est pas complètement au coeur de ce travail de thèse, nous ne sommes pas en mesure d'y répondre et la laissons aux soins de théoriciens qui seraient intéressés par ce travail.

Morris et Boulay, dans leur modèle, écrivent le tenseur de contraintes particulières de la façon suivante :

$$\bar{\Sigma}^p = -\eta_0 \dot{\gamma} \bar{Q}(\phi) + 2\eta_0 \eta_p \bar{e} \quad (6.25)$$

avec $\dot{\gamma} = \sqrt{\bar{e}} : \bar{e}$ et η_p la contribution particulière à la viscosité de cisaillement.

$\bar{Q}(\phi)$ possède l'expression suivante qui, en outre, impose (de façon arbitraire) que les contraintes normales particulières varient de la même façon en fonction de la fraction volumique de particules dans les directions de la vitesse (1), du gradient de vitesse (2) et de la vortacité (3) :

$$\bar{Q}(\phi) = \eta_r(\phi)\beta^n(\phi) \begin{pmatrix} 1 & 0 & 0 \\ 0 & \lambda_2 & 0 \\ 0 & 0 & \lambda_3 \end{pmatrix} \quad (6.26)$$

Expérimentalement, ce tenseur a déjà été déterminé par [Dbouk *et al.* 2013] pour des suspensions de particules sphériques. [Dbouk *et al.* 2013] ont montré que λ_3 était constant avec ϕ et avait une valeur proche de 1/2 tandis que λ_2 était une fonction lentement croissante en ϕ .

Pour les suspensions de fibres, nous observons malgré la grande dispersion des résultats que λ_2 est à peu près constant et a une valeur voisine de 0.5 (i.e. $\Sigma_{22}^p \approx 0.5 \Sigma_{11}^p$) quelque soit le rapport d'aspect et la concentration (figure 6.11 (a)). λ_3 , quant à lui, décroît à peu près linéairement avec nL^2d et est toujours supérieur à 0.5, ce qui signifie que la contrainte normale particulière dans la direction de la vortacité est plus grande que dans la direction de la vitesse mais, que l'anisotropie des contraintes normales particulières dans les directions 1 et 3 tend à diminuer quand la concentration augmente (figure 6.11 (b)). Par ailleurs, il semble, que pour un paramètre de concentration nL^2d donné, la différence entre Σ_{33}^p et Σ_{11}^p est d'autant plus grande que le rapport d'aspect des fibres est grand.

Enfin, la valeur de λ_3 supérieure à 0.5 signifie que les fibres migrent vers le centre de l'écoulement torsionnel, ce qui s'observe directement quand on regarde le profil radial de pression fluide (figure 6.7). En effet, on y voit un gradient de pression dirigé vers l'intérieur, ce qui signifie que le fluide est en mouvement vers l'extérieur et que, par conséquent, pour assurer la conservation du volume total de la suspension, les fibres migrent vers l'intérieur. Il s'agit ici de la première mise en évidence expérimentale, de la migration de fibres dans une suspension en écoulement. Cette observation justifie par ailleurs le protocole que nous avons adopté pour mesurer les contraintes normales, et qu'en particulier la suspension ait été ré-homogénéisée entre chacune des valeurs de contrainte appliquée. Cette procédure permet de supposer que les fibres n'ont pas encore eu le temps de migrer de façon significative, et que les différentes grandeurs rhéologiques mesurées ont été obtenues pour une suspension à peu près homogène.

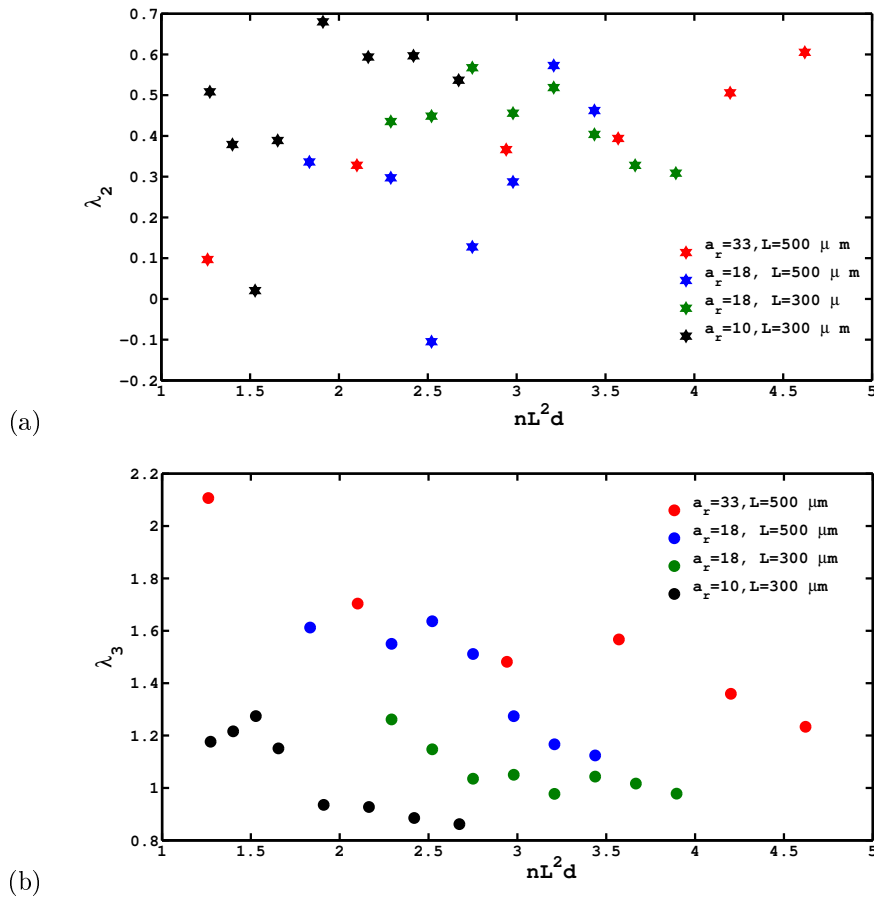


FIG. 6.11 – Résultats de mesures expérimentales grandeurs physiques définies dans le modèle de [Morris & Boulay 1999] en fonction de nL^2d . (a) Paramètre anisotropie λ_2 . (b) Paramètre anisotropie λ_3 .

6.5.3 Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons reporté pour la première fois des mesures indépendantes des deux différences de contraintes normales N_1 et N_2 en écoulement torsionnel, ainsi que les 3 contraintes normales particulières, Σ_{11}^p , Σ_{22}^p et Σ_{33}^p . Ces mesures ont été effectuées pour des suspensions de fibres non-browniennes, pour une large gamme de concentration et trois rapports d'aspect. Nous avons présenté notre méthode expérimentale, qui consiste à mesurer le profil radial de la contrainte totale de la suspension dans la direction du gradient de vitesse Σ_{22}^T grâce à des capteurs de pression directs. A partir de la pente et de l'ordonnée à l'origine de $\Sigma_{22}(r^n)$, nous avons déduit α_1 et α_2 ($\frac{N_1}{\Sigma_{12}(R)}$ et $\frac{N_2}{\Sigma_{12}(R)}$). Nous avons montré que N_1 est positif alors que N_2 est négatif et n'est très inférieur à N_1 que pour les grands rapports d'aspect, contrairement à ce qui est habituellement supposé. N_1 et N_2 augmentent tous les deux avec nL^2d .

Grâce aux capteurs à grille, nous avons pu mesurer la pression dans le fluide. En la soustrayant aux contraintes normales totales, nous accédons à la mesure de Σ_{22}^p . Les contraintes normales d'origine particulière Σ_{11}^p , Σ_{22}^p et Σ_{33}^p sont obtenues par la mesure de la pente A_{exp}^f du profil de la pression fluide et de α_1 et α_2 . Les résultats montrent que les 3 contraintes normales particulières augmentent avec nL^2d . Nous avons, également, mis en évidence le phénomène de migration dans les suspensions de fibres non-browniennes. En effet, nous avons mesuré un gradient de pression dans le fluide interstitiel dirigé vers le centre qui indique que le fluide est en mouvement vers l'extérieur et donc que les fibres migrent vers les régions centrales. Cette observation est en accord avec la valeur de $\lambda_3 > 0.5$ que nous avons mesurée.

Enfin, notons que cette étude est réalisée pour la première fois dans des suspensions de fibres, et que les résultats que nous avons obtenus restent à confirmer par des mesures directes des profils de concentration dans un écoulement torsionnel plan-plan.

Conclusions et perceptives

L'objectif de ce travail de thèse était d'apporter une contribution dans la compréhension du comportement rhéologique des suspensions de fibres, non seulement d'un point expérimental mais aussi d'un point de vue théorique.

D'un point de vue expérimental, notre étude s'est concentrée sur la mesure de trois grandeurs rhéologiques importantes, qui sont la viscosité et les deux différences de contraintes normales dans les suspensions de fibres. Notre objectif était en particulier d'explorer des régimes mal connus de concentrations importantes.

Les mesures de viscosité ont fait l'objet du **chapitre 3 et 4**. Au **chapitre 3**, nous avons effectué des mesures de viscosité en régime stationnaire, en utilisant un dispositif expérimental qui consiste à cisailer une suspension placée sous un disque en rotation et contenue dans une cuve cylindrique. Ce montage permet d'explorer des entrefers bien plus grands que ceux qui sont permis quand le liquide est maintenu par capillarité. Nous avons montré, d'une part, que la viscosité d'une suspension, même mesurée au plateau newtonien est sensible à l'effet du confinement, d'autre part, que l'effet du confinement augmente le caractère rhéofluidifiant des suspensions. Nous avons interprété ce résultat par l'existence d'interactions fibres-parois, qui influent sur l'orientation des fibres. Nous avons également été capables de nous affranchir des effets de parois de la géométrie et ainsi de proposer une mesure de la viscosité "réelle" des suspensions, sans effet de confinement.

Au **chapitre 4**, nous avons reporté nos résultats de mesures sur la réponse transitoire de la viscosité lors d'une inversion de cisaillement. Quand le sens de l'écoulement est inversé, la viscosité chute brutalement, passe par un minimum, croît alors de nouveau, passe par un maximum et décroît pour tendre vers sa valeur stationnaire. Le minimum de viscosité a été associé à l'élasticité du réseau formé par les fibres de la suspension tandis que le maximum a été relié à un basculement de fibres qui doivent retrouver l'orientation stationnaire qui correspond au nouveau sens de l'écoulement. Lors des transitoires, nous avons également étudié l'effet du confinement. Nous avons montré que le confinement a le même effet sur l'orientation des fibres juste après l'inversion de cisaillement, au moment où les fibres basculent pour retrouver leur nouvelle orientation d'équilibre que sur leur orientation stationnaire. Nous avons montré que les phénomènes de basculement et d'orientation des fibres dépendent uniquement de la déformation accumulée depuis l'inversion du sens du cisaillement. Enfin, une approche macroscopique nous a permis de décrire l'état d'orientation des fibres quand la viscosité passe par son maximum lors d'un transitoire. Cet état d'orientation est représenté par la composante du tenseur d'orientation $\langle p_1^2 p_2^2 \rangle_{max}$ qui est proportionnel à la composante tenseur d'orientation à l'état stationnaire $\langle p_1^2 p_2^2 \rangle_{flat}$, lorsque la concentration en

fibres est suffisamment grande.

Enfin, les mesures des différences de contraintes normales ont fait l'objet du **chapitre 6**. Ces mesures, qui ont apporté des résultats originaux, ont été réalisées grâce à un dispositif expérimental élaboré dans notre équipe qui consiste en un réseau de capteurs de pression qui mesurent la pression totale de la suspension et la pression dans le fluide suspendant. Nous avons été en mesure de déterminer expérimentalement la première et la deuxième différence de contrainte normale, N_1 et N_2 , indépendamment, pour une très large gamme de concentration. Ce dispositif nous a également permis d'évaluer pour la première fois la pression particulière dans une suspension de fibres. Nous avons ainsi prouvé expérimentalement que contrairement à ce qui est admis dans la littérature, N_2 est non nul et de signe négatif. Les mesures de pression particulière ont mis en évidence l'existence de phénomène de migration des fibres vers les régions centrales de l'écoulement.

D'un point de vue théorique, le **chapitre 5** était consacré à l'élaboration de deux modèles théoriques qui tentent d'expliquer la rhéofluidification dans les suspensions de fibres par une compétition entre les forces adhésives entre fibres et les forces hydrodynamiques. Le premier modèle que nous avons élaboré considère des contacts glissants entre fibres tandis que le second l'enrichit en considérant une possible floculation des fibres. Ces modèles sont alors discutés à la lumière des résultats expérimentaux. La conclusion essentielle de la comparaison entre les résultats expérimentaux et théoriques est l'importance du rôle joué par les forces adhésives dans la rhéologie des suspensions de fibres.

Perspectives

Le travail expérimental effectué lors de cette thèse a permis d'apporter des résultats originaux sur les mesures des fonctions matérielles η_s , N_1 et N_2 pour des gammes de concentration jamais explorées. Nous avons mis en évidence l'importance de l'orientation des fibres dans le comportement rhéologique des suspensions, la présence de phénomènes d'agrégation et de migration des fibres, et l'influence du confinement sur la microstructure.

Les résultats de mesures des différences de contraintes normales pourraient être utilisés pour la construction de modèles théoriques ou numériques capables d'en expliquer l'origine, et de rendre compte de la valeur non nulle de N_2 . Les mesures préliminaires de contraintes normales particulières pourraient contribuer à l'élaboration d'un modèle de migration dans les suspensions de fibres. D'un point de vue microscopique, il serait intéressant de compléter cette étude par des expériences de visualisation des fibres sous écoulement. Ces expériences permettraient d'une part de faire des mesures locales de viscosité par *PIV* (*Particle image velocymetry*) et/ou *PTV* : *Particle tracking*

velocymetry, complètement indépendantes des effets de parois et de migration et d'autre part d'avoir accès aux distributions d'orientation des fibres de façon à les relier aux grandeurs rhéologiques.

Bibliographie

- [Advani & Tucker III 1990] Suresh G Advani et Charles L Tucker III. *Closure approximations for three-dimensional structure tensors*. Journal of Rheology (1978-present), vol. 34, no. 3, pages 367–386, 1990.
- [Anczurowski & Mason 1967] E Anczurowski et SG Mason. *The kinetics of flowing dispersions : II. Equilibrium orientations of rods and discs (theoretical)*. Journal of Colloid and Interface Science, vol. 23, no. 4, pages 522–532, 1967.
- [Batchelor 1970] GK Batchelor. *Slender-body theory for particles of arbitrary cross-section in Stokes flow*. Journal of Fluid Mechanics, vol. 44, no. 03, pages 419–440, 1970.
- [Batchelor 1971] GK Batchelor. *The stress generated in a non-dilute suspension of elongated particles by pure straining motion*. Journal of Fluid Mechanics, vol. 46, no. 04, pages 813–829, 1971.
- [Bay 1991] Randy Scott Bay. *Fiber orientation in injection-molded composites : A comparison of theory and experiment*. PhD thesis, University of Illinois at Urbana-Champaign, 1991.
- [Bibbo 1987] MA Bibbo. *Rheology of semi-concentrated fibre suspensions*. Ph.d. thesis, Massachusetts Institute of Technology, 1987.
- [Bird *et al.* 1977] Robert Byron Bird, Robert Calvin Armstrong, Ole Hassager et Charles F Curtiss. *Dynamics of polymeric liquids, volume 1*. Wiley New York, 1977.
- [Blakeney 1966] William R Blakeney. *The viscosity of suspensions of straight, rigid rods*. Journal of Colloid and Interface Science, vol. 22, no. 4, pages 324–330, 1966.
- [Blanc 2012] Frédéric Blanc. *Rhéologie et microstructure des suspensions concentrées non-browniennes*. PhD thesis, Citeseer, 2012.
- [Boyer *et al.* 2011] François Boyer, Olivier Pouliquen et Élisabeth Guazzelli. *Dense suspensions in rotating-rod flows : normal stresses and particle migration*. Journal of Fluid Mechanics, vol. 686, pages 5–25, 2011.
- [Brenner 1974] Howard Brenner. *Rheology of a dilute suspension of axisymmetric Brownian particles*. International journal of multiphase flow, vol. 1, no. 2, pages 195–341, 1974.
- [Carter & Goddard 1967] LF Carter et JD Goddard. *A rheological study of glass fibers in a Newtonian fluid*. NASA Report No. N67-30073, 1967.
- [Carter 1967] L. F. Carter. *A Study of the Rheology of Suspensions of Rod-Shaped Particles in a Navier–Stokes Liquid*. Ph.d. thesis, University of Michigan, Ann Arbor, 1967.

- [Chaouche & Koch 2001] Mohend Chaouche et Donald L Koch. *Rheology of non-Brownian rigid fiber suspensions with adhesive contacts*. Journal of Rheology, vol. 45, no. 2, pages 369–382, 2001.
- [Chow *et al.* 1994] Andrea W Chow, Steven W Sinton, Joseph H Iwamiya et Thomas S Stephens. *Shear-induced particle migration in Couette and parallel-plate viscometers : NMR imaging and stress measurements*. Physics of Fluids (1994-present), vol. 6, no. 8, pages 2561–2576, 1994.
- [Cintra Jr & Tucker III 1995] Joaquim S Cintra Jr et Charles L Tucker III. *Orthotropic closure approximations for flow-induced fiber orientation*. Journal of Rheology (1978-present), vol. 39, no. 6, pages 1095–1122, 1995.
- [Cox 1970] RG Cox. *The motion of long slender bodies in a viscous fluid part 1. general theory*. Journal of Fluid mechanics, vol. 44, no. 04, pages 791–810, 1970.
- [Cox 1971] RG Cox. *The motion of long slender bodies in a viscous fluid. Part 2. Shear flow*. Journal of Fluid Mechanics, vol. 45, no. 04, pages 625–657, 1971.
- [Dbouk *et al.* 2013] Talib Dbouk, Laurent Lobry et Elisabeth Lemaire. *Normal stresses in concentrated non-Brownian suspensions*. Journal of Fluid Mechanics, vol. 715, pages 239–272, 2013.
- [Dbouk 2011] Talib Dbouk. *Rheology of concentrated suspensions and shear-induced migration*. Theses, Université Nice Sophia Antipolis, Décembre 2011.
- [Dinh & Armstrong 1984] Steven M Dinh et Robert C Armstrong. *A rheological equation of state for semiconcentrated fiber suspensions*. Journal of Rheology (1978-present), vol. 28, no. 3, pages 207–227, 1984.
- [Djalili-Moghaddam & Toll 2005] Mina Djalili-Moghaddam et Staffan Toll. *A model for short-range interactions in fibre suspensions*. Journal of non-newtonian fluid mechanics, vol. 132, no. 1, pages 73–83, 2005.
- [Doi & Edwards 1988] Masao Doi et Sam F Edwards. *The theory of polymer dynamics*, volume 73. oxford university press, 1988.
- [Ericksen 1959] JL Ericksen. *Anisotropic fluids*. Archive for Rational Mechanics and Analysis, vol. 4, no. 1, pages 231–237, 1959.
- [Fan *et al.* 1998] Xijun Fan, N Phan-Thien et Rong Zheng. *A direct simulation of fibre suspensions*. Journal of Non-Newtonian Fluid Mechanics, vol. 74, no. 1, pages 113–135, 1998.
- [Férec *et al.* 2009] J Férec, Gilles Ausias, MC Heuzey et PJ Carreau. *Modeling fiber interactions in semiconcentrated fiber suspensions*. Journal of Rheology, vol. 53, no. 1, pages 49–72, 2009.

- [Folgar & Tucker 1984] Fransisco Folgar et Charles L Tucker. *Orientation behavior of fibers in concentrated suspensions*. Journal of Reinforced Plastics and Composites, vol. 3, no. 2, pages 98–119, 1984.
- [Forgacs & Mason 1959] OL Forgacs et SG Mason. *Particle motions in sheared suspensions : X. Orbits of flexible threadlike particles*. Journal of Colloid Science, vol. 14, no. 5, pages 473–491, 1959.
- [Frattini & Fuller 1986] Paul L Frattini et Gerald G Fuller. *Rheo-optical studies of the effect of weak Brownian rotations in sheared suspensions*. Journal of Fluid Mechanics, vol. 168, pages 119–150, 1986.
- [Gadala-Maria & Acrivos 1980] F Gadala-Maria et Andreas Acrivos. *Shear-Induced Structure in a Concentrated Suspension of Solid Spheres*. Journal of Rheology (1978-present), vol. 24, no. 6, pages 799–814, 1980.
- [Ganani & Powell 1985] E Ganani et RL Powell. *Suspensions of rodlike particles : literature review and data correlations*. Journal of composite materials, vol. 19, no. 3, pages 194–215, 1985.
- [Ganani & Powell 1986] Ehud Ganani et Robert L Powell. *Rheological Properties of Rodlike Particles in a Newtonian and a Non-Newtonian Fluid*. Journal of Rheology, vol. 30, no. 5, pages 995–1013, 1986.
- [Guyon *et al.* 1999] Etienne Guyon, Jean-Pierre Hulin, Luc Petit et Pierre Gilles de Gennes. *Hydrodynamique physique*. EDP sciences Les Ulis, France, 1999.
- [Happel & Brenner 2012] John Happel et Howard Brenner. *Low reynolds number hydrodynamics : with special applications to particulate media, volume 1*. Springer Science & Business Media, 2012.
- [Hinch & Leal 1972] EJ Hinch et LG Leal. *The effect of Brownian motion on the rheological properties of a suspension of non-spherical particles*. Journal of Fluid Mechanics, vol. 52, no. 04, pages 683–712, 1972.
- [Jack & Smith 2005] DA Jack et DE Smith. *An invariant based fitted closure of the sixth-order orientation tensor for modeling short-fiber suspensions*. Journal of Rheology (1978-present), vol. 49, no. 5, pages 1091–1115, 2005.
- [Jeffery 1922] George B Jeffery. *The motion of ellipsoidal particles immersed in a viscous fluid*. Proceedings of the Royal Society of London. Series A, vol. 102, no. 715, pages 161–179, 1922.
- [Jenkins & McTigue 1990] James T Jenkins et David F McTigue. *Transport processes in concentrated suspensions : the role of particle fluctuations*. In *Two phase flows and waves*, pages 70–79. Springer, 1990.

- [Kamal & Mutel 1989] MR Kamal et AT Mutel. *The prediction of flow and orientation behavior of short fiber reinforced melts in simple flow systems*. Polymer composites, vol. 10, no. 5, pages 337–343, 1989.
- [Keentok & Xue 1999] Matti Keentok et Shi-Cheng Xue. *Edge fracture in cone-plate and parallel plate flows*. Rheologica acta, vol. 38, no. 4, pages 321–348, 1999.
- [Keshtkar *et al.* 2009] M Keshtkar, MC Heuzey et PJ Carreau. *Rheological behavior of fiber-filled model suspensions : effect of fiber flexibility*. Journal of Rheology, vol. 53, no. 3, pages 631–650, 2009.
- [Kitano *et al.* 1980] T Kitano, T Kataoka, T Nishimura et T Sakai. *Relative viscosities of polymer melts filled with inorganic fillers*. Rheologica Acta, vol. 19, no. 6, pages 764–769, 1980.
- [Kitano *et al.* 1981] T Kitano, T Kataoka et T Shirota. *An empirical equation of the relative viscosity of polymer melts filled with various inorganic fillers*. Rheologica Acta, vol. 20, no. 2, pages 207–209, 1981.
- [Koch 1995] Donald L Koch. *A model for orientational diffusion in fiber suspensions*. Physics of Fluids (1994-present), vol. 7, no. 8, pages 2086–2088, 1995.
- [Kuo & Tanner 1974] Y Kuo et RI Tanner. *On the use of open-channel flows to measure the second normal stress difference*. Rheologica Acta, vol. 13, no. 3, pages 443–456, 1974.
- [Larson 2001] Ronald G Larson. The structure and rheology of complex fluids, volume 33. 2001.
- [Laun 1984] HM Laun. *Orientation effects and rheology of short glass fiber-reinforced thermoplastics*. Colloid and Polymer Science, vol. 262, no. 4, pages 257–269, 1984.
- [Leal & Hinch 1971] LG Leal et EJ Hinch. *The effect of weak Brownian rotations on particles in shear flow*. Journal of Fluid Mechanics, vol. 46, no. 04, pages 685–703, 1971.
- [Lhuillier 2009] Daniel Lhuillier. *Migration of rigid particles in non-Brownian viscous suspensions*. Physics of Fluids (1994-present), vol. 21, no. 2, page 023302, 2009.
- [Lindström & Uesaka 2007] Stefan B Lindström et Tetsu Uesaka. *Simulation of the motion of flexible fibers in viscous fluid flow*. Physics of Fluids (1994-present), vol. 19, no. 11, page 113307, 2007.
- [Lindström & Uesaka 2009] Stefan B Lindström et Tetsu Uesaka. *A numerical investigation of the rheology of sheared fiber suspensions*. Physics of Fluids (1994-present), vol. 21, no. 8, page 083301, 2009.
- [Mackaplow & Shaqfeh 1996] Michael B Mackaplow et Eric SG Shaqfeh. *A numerical study of the rheological properties of suspensions of rigid, non-Brownian fibres*. Journal of Fluid Mechanics, vol. 329, pages 155–186, 1996.

- [Merhi *et al.* 2005] Dima Merhi, Elisabeth Lemaire, Georges Bossis et Fadl Moukalled. *Particle migration in a concentrated suspension flowing between rotating parallel plates : Investigation of diffusion flux coefficients*. Journal of Rheology (1978-present), vol. 49, no. 6, pages 1429–1448, 2005.
- [Mongruel & Cloitre 1999] A Mongruel et M Cloitre. *Shear viscosity of suspensions of aligned non-Brownian fibres*. Rheologica acta, vol. 38, no. 5, pages 451–457, 1999.
- [Morris & Boulay 1999] Jeffrey F Morris et Fabienne Boulay. *Curvilinear flows of noncolloidal suspensions : The role of normal stresses*. Journal of Rheology (1978-present), vol. 43, no. 5, pages 1213–1237, 1999.
- [Nott & Brady 1994] Prabhu R Nott et John F Brady. *Pressure-driven flow of suspensions : simulation and theory*. Journal of Fluid Mechanics, vol. 275, pages 157–199, 1994.
- [Nott *et al.* 2011] Prabhu R Nott, Elisabeth Guazzelli et Olivier Pouliquen. *The suspension balance model revisited*. Physics of Fluids (1994-present), vol. 23, no. 4, page 043304, 2011.
- [Onsager 1949] Lars Onsager. *The effects of shape on the interaction of colloidal particles*. Annals of the New York Academy of Sciences, vol. 51, no. 4, pages 627–659, 1949.
- [Petrich *et al.* 2000] Michael P Petrich, Donald L Koch et Claude Cohen. *An experimental determination of the stress–microstructure relationship in semi-concentrated fiber suspensions*. Journal of non-newtonian fluid mechanics, vol. 95, no. 2, pages 101–133, 2000.
- [Phan-Thien & Graham 1991] N Phan-Thien et AL Graham. *A new constitutive model for fibre suspensions : flow past a sphere*. Rheologica acta, vol. 30, no. 1, pages 44–57, 1991.
- [Phan-Thien 1995] Nhan Phan-Thien. *Constitutive equation for concentrated suspensions in Newtonian liquids*. Journal of Rheology (1978-present), vol. 39, no. 4, pages 679–695, 1995.
- [Pozrikidis 1992] Constantine Pozrikidis. *Boundary integral and singularity methods for linearized viscous flow*. Cambridge University Press, 1992.
- [Rahnama *et al.* 1995] Mani Rahnama, Donald L Koch et Eric SG Shaqfeh. *The effect of hydrodynamic interactions on the orientation distribution in a fiber suspension subject to simple shear flow*. Physics of Fluids (1994-present), vol. 7, no. 3, pages 487–506, 1995.
- [Ranganathan & Advani 1991] Sridhar Ranganathan et SG Advani. *Fiber–fiber interactions in homogeneous flows of nondilute suspensions*. Journal of Rheology (1978-present), vol. 35, no. 8, pages 1499–1522, 1991.
- [Sandstrom & Tucker 1993] Chad R Sandstrom et Charles L Tucker. *A theory for concentrated fiber suspensions with strong fiber-fiber interactions*. In Makromolekulare Chemie. Macromolecular Symposia, volume 68, pages 291–300. Wiley Online Library, 1993.

- [Schmid *et al.* 2000] Christian F Schmid, Leonard H Switzer et Daniel J Klingenberg. *Simulations of fiber flocculation : Effects of fiber properties and interfiber friction*. Journal of Rheology (1978-present), vol. 44, no. 4, pages 781–809, 2000.
- [Sepéhr *et al.* 2004] Maryam Sepéhr, Pierre J Carreau, Michel Moan et Gilles Ausias. *Rheological properties of short fiber model suspensions*. Journal of Rheology, vol. 48, no. 5, pages 1023–1048, 2004.
- [Servais *et al.* 1999] Colin Servais, Jan-Anders E Månson et Staffan Toll. *Fiber–fiber interaction in concentrated suspensions : Disperse fibers*. Journal of Rheology (1978-present), vol. 43, no. 4, pages 991–1004, 1999.
- [Shaqfeh & Fredrickson 1990] Eric SG Shaqfeh et Glenn H Fredrickson. *The hydrodynamic stress in a suspension of rods*. Physics of Fluids A : Fluid Dynamics (1989-1993), vol. 2, no. 1, pages 7–24, 1990.
- [Singh & Nott 2003] Anugrah Singh et Prabhu R Nott. *Experimental measurements of the normal stresses in sheared Stokesian suspensions*. Journal of Fluid Mechanics, vol. 490, pages 293–320, 2003.
- [Snook *et al.* 2014] Braden Snook, Levi M Davidson, Jason E Butler, Olivier Pouliquen et Elisabeth Guazzelli. *Normal stress differences in suspensions of rigid fibres*. Journal of Fluid Mechanics, vol. 758, pages 486–507, 2014.
- [Snook 2015] Braden Snook. *The dynamics of the microstructure and the rheology in suspensions of rigid particles*. PhD thesis, University of Florida, 2015.
- [Solomon & Spicer 2010] Michael J Solomon et Patrick T Spicer. *Microstructural regimes of colloidal rod suspensions, gels, and glasses*. Soft Matter, vol. 6, no. 7, pages 1391–1400, 2010.
- [Stover *et al.* 1992] Carl A Stover, Donald L Koch et Claude Cohen. *Observations of fibre orientation in simple shear flow of semi-dilute suspensions*. Journal of Fluid Mechanics, vol. 238, pages 277–296, 1992.
- [Sundararajakumar & Koch 1997] RR Sundararajakumar et Donald L Koch. *Structure and properties of sheared fiber suspensions with mechanical contacts*. Journal of Non-Newtonian Fluid Mechanics, vol. 73, no. 3, pages 205–239, 1997.
- [Tillmark & Alfredsson 1992] Nils Tillmark et P Henrik Alfredsson. *Experiments on transition in plane Couette flow*. Journal of Fluid Mechanics, vol. 235, pages 89–102, 1992.
- [Toll 1993] Staffan Toll. *Note : On the tube model for fiber suspensions*. Journal of Rheology (1978-present), vol. 37, no. 1, pages 123–125, 1993.

- [Tucker 1991] Charles L Tucker. *Flow regimes for fiber suspensions in narrow gaps*. Journal of Non-Newtonian fluid mechanics, vol. 39, no. 3, pages 239–268, 1991.
- [Van der Schoot & Odijk 1992] Paul Van der Schoot et Theo Odijk. *Statistical theory and structure factor of a semidilute solution of rodlike macromolecules interacting by van der Waals forces*. The Journal of chemical physics, vol. 97, no. 1, pages 515–524, 1992.
- [Yamamoto & Matsuoka 1995] Satoru Yamamoto et Takaaki Matsuoka. *Dynamic simulation of fiber suspensions in shear flow*. The Journal of chemical physics, vol. 102, no. 5, pages 2254–2260, 1995.
- [Yamane *et al.* 1995] Yuichi Yamane, Yukio Kaneda et Masao Doi. *The effect of interaction of rodlike particles in semi-dilute suspensions under shear flow*. Journal of the Physical Society of Japan, vol. 64, no. 9, pages 3265–3274, 1995.
- [Zirnsak *et al.* 1994] MA Zirnsak, DU Hur et DV Boger. *Normal stresses in fibre suspensions*. Journal of non-newtonian fluid mechanics, vol. 54, pages 153–193, 1994.