



HAL
open science

Étude de la rhéologie des suspensions de fibres non-newtoniennes par imagerie et simulation numérique 3D à l'échelle des fibres.

Tanguy Laurencin

► **To cite this version:**

Tanguy Laurencin. Étude de la rhéologie des suspensions de fibres non-newtoniennes par imagerie et simulation numérique 3D à l'échelle des fibres.. Autre. Université Grenoble Alpes, 2017. Français. NNT : 2017GREAI013 . tel-01688286

HAL Id: tel-01688286

<https://theses.hal.science/tel-01688286>

Submitted on 19 Jan 2018

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.

THÈSE

Pour obtenir le grade de

DOCTEUR DE LA COMMUNAUTÉ UNIVERSITÉ GRENOBLE ALPES

Spécialité : **Matériaux, Mécanique, Génie Civil, Electrochimie**

Arrêté ministériel : 25 mai 2016

Présentée par

Tanguy LAURENCIN

Thèse dirigée par **Laurent ORGÉAS** et
codirigée par **Pierre DUMONT** et **Patrice LAURE**

préparée au sein du **Laboratoire Sols, Solides, Structures Risques 3SR**
dans **l'École Doctorale Ingénierie – Matériaux, Mécanique,
Environnement, Énergétique, Procédés, Production**

Étude de la rhéologie des suspensions de fibres non-newtoniennes par imagerie et simulation numérique 3D à l'échelle des fibres.

Thèse soutenue publiquement le **17 mars 2017**,
devant le jury composé de :

M. Laurent ORGÉAS

Directeur de recherche, Centre National de la Recherche Scientifique, Directeur de thèse

M. Pierre DUMONT

Professeur, Institut National des Sciences Appliquées de Lyon, CoDirecteur de thèse

M. Patrice LAURE

Directeur de recherche, Université Nice Sophia Antipolis, Codirecteur de thèse

M. Julien FÉREC

Maître de Conférences, Université de Bretagne Sud, Rapporteur

M. Pavel KUZHIR

Maître de Conférences, Université Nice Sophia Antipolis, Rapporteur

Mme Véronique MICHAUD

Professeur, École Polytechnique Fédérale de Lausanne, Président

Mme Sabine ROLLAND DU ROSCOAT

Maître de Conférences, Université Grenoble Alpes, Examineur

Mme Luisa SILVA

Maître de Conférences, École Centrale de Nantes, Examineur



THÈSE

Pour obtenir le grade de

DOCTEUR DE LA COMMUNAUTÉ UNIVERSITÉ GRENOBLE ALPES

Spécialité : **Matériaux, Mécanique, Génie Civil, Electrochimie**

Arrêté ministériel : 25 mai 2016

Présentée par

Tanguy LAURENCIN

Thèse dirigée par **Laurent ORGÉAS** et
codirigée par **Pierre DUMONT** et **Patrice LAURE**

préparée au sein du **Laboratoire Sols, Solides, Structures Risques 3SR**
dans **l'École Doctorale Ingénierie – Matériaux, Mécanique,
Environnement, Énergétique, Procédés, Production**

Étude de la rhéologie des suspensions de fibres non-newtoniennes par imagerie et simulation numérique 3D à l'échelle des fibres.

Thèse soutenue publiquement le **17 mars 2017**,
devant le jury composé de :

M. Laurent ORGÉAS

Directeur de recherche, Centre National de la Recherche Scientifique, Directeur de thèse

M. Pierre DUMONT

Professeur, Institut National des Sciences Appliquées de Lyon, CoDirecteur de thèse

M. Patrice LAURE

Directeur de recherche, Université Nice Sophia Antipolis, Codirecteur de thèse

M. Julien FÉREC

Maître de Conférences, Université de Bretagne Sud, Rapporteur

M. Pavel KUZHIR

Maître de Conférences, Université Nice Sophia Antipolis, Rapporteur

Mme Véronique MICHAUD

Professeur, École Polytechnique Fédérale de Lausanne, Président

Mme Sabine ROLLAND DU ROSCOAT

Maître de Conférences, Université Grenoble Alpes, Examineur

Mme Luisa SILVA

Maître de Conférences, École Centrale de Nantes, Examineur



Sommaire

Chapitre 0. Introduction générale	1
Chapitre 1. État de l'art sur les suspensions newtoniennes et non-newtoniennes de fibres courtes.....	9
1.1 Remarques sur les problématiques de mise en forme des composites à fibres courtes.....	11
1.2 Description des structures des suspensions fibreuses.....	13
1.2.1 Descripteurs associés aux fibres	13
1.2.2 Descripteurs de l'architecture des suspensions fibreuses	14
1.3 Rhéologie des suspensions fibreuses	18
1.3.1 Rhéologie de la matrice polymère.....	18
1.3.2 Suspensions à matrice newtonienne	19
1.3.3 Suspensions à matrice non-newtonienne.....	22
1.3.4 Remarques sur les techniques de caractérisation rhéologique	23
1.4 Cinématique des suspensions fibreuses.....	24
1.4.1 Cinématique d'une particule isolée	24
1.4.2 Loi d'évolution d'une population de fibres	29
1.5 Apport des techniques d'imagerie	38
1.6 Conclusion.....	39
Chapitre 2. Objectifs de la thèse.....	41
Chapitre 3. Compression de suspensions modèles diluées.....	45
3.1 Introduction	47
3.2 Materials and experimental procedure	50
3.2.1 Materials.....	50
3.2.2 Compression experiments with real-time 3D in situ X-ray imaging	51
3.2.3 Image analysis and data post-treatment.....	52
3.3 Results and discussion	52
3.4 Conclusion.....	58
Chapitre 4. Simulation de la compression de suspensions diluées	61
4.1 Introduction	63
4.2 Modelling fibre suspensions in squeeze flow	66
4.2.1 Numerical approach, modelling equations and geometry	66
4.2.2 Numerical resolution	67
4.2.3 Boundary conditions	69
4.2.4 Purely squeeze flows – Rheology like computations.....	70
4.3 Experiments	72
4.4 The dumbbell approach for a rod	72
4.5 Numerical results : motion of single fibres	75

4.5.1 Influence of the fibre geometry and the fluid rheology	75
4.5.2 Influence of boundary conditions (departure from purely slip compression)	77
4.5.3 Confinement effects	78
4.6 Experimental and numerical comparisons.....	81
4.7 Concluding remarks	85
Chapitre 5. Compression de suspensions semi-diluées	89
5.1 Introduction	91
5.2 Materials and Experimental procedure	95
5.2.1 Materials.....	95
5.2.2 Compression experiments with real-time 3D in situ X-ray imaging	96
5.3 Numerical code	98
5.3.1 Governing equations.....	98
5.3.2 Numerical resolution	99
5.3.3 Boundary conditions	100
5.3.4 Validation of the code.....	100
5.4 Results	100
5.5 Discussion	104
5.6 Conclusion.....	107
Chapitre 6. Vers l'étude du régime concentré	109
6.1 Méthodes.....	111
6.1.1 Élaboration des suspensions.....	111
6.1.2 Essais de compression et dépouillement	111
6.2 Résultats préliminaires.....	113
6.2.1 À l'échelle de l'échantillon	113
6.2.2 À l'échelle des fibres.....	116
6.3 Discussion et conclusion.....	118
Conclusion et perspectives	121
Annexe A. Matériaux et méthodes expérimentales	127
Annexe B. Analyse d'images	133
Annexe C. Rod kinematic in Newtonian fluid	137
Annexe D. Rod kinematic in power-law fluid	141
Annexe E. Influence of the fibre shape on fibre motion in power-law fluids	145
Références bibliographique.....	147

Chapitre 0. Introduction générale

Depuis une vingtaine d'années, l'utilisation des matériaux composites à matrice polymère et renforts fibreux est en plein essor pour de nombreuses applications dans plusieurs domaines comme le transport, les équipements électroniques et électrotechniques ou les sports et loisirs. Grâce à leurs propriétés physiques et mécaniques spécifiques très intéressantes, les matériaux composites sont devenus les concurrents des alliages métalliques, bien sûr des aciers mais aussi des alliages d'aluminium ou des superalliages. Dans le secteur aéronautique civil, ces matériaux sont même devenus prédominants pour la fabrication de pièces de fuselage ou de voilures. Ainsi, l'avion Airbus A350 XWB comporte près de 53% de matériaux composites à hautes performances, permettant ainsi de réduire la masse de l'avion de 20%. Préserver la résistance et les performances mécaniques des produits tout en allégeant leur masse est également une des préoccupations principales des fabricants de matériels sportifs. Leurs produits doivent résister à des conditions environnementales et à des sollicitations mécaniques sévères. Les composites à matrice polymère et renforts fibreux sont également employés pour leurs propriétés d'isolation sonore et thermique, leur résistance à la corrosion et aux agressions chimiques dans les secteurs électriques et nautiques. Dans l'industrie automobile, ils sont employés pour produire à haute cadence des pièces semi-structurelles voire structurelles. Leur emploi permet grâce au gain de masse engendré de diminuer la consommation de carburant des véhicules et ainsi de répondre aux réglementations de l'Union européenne concernant la réduction des émissions de gaz à effet de serre.

Un matériau composite est issu de l'assemblage d'au moins deux matériaux non miscibles, par exemple d'une matrice polymère avec des fibres possédant des propriétés spécifiques complémentaires. Dans les composites à matrice polymère, les matrices sont des polymères thermoplastiques ou thermodurcissables qui assurent l'unité de l'architecture fibreuse en augmentant par exemple sa ténacité. De nombreux additifs peuvent être ajoutés pour contrôler les réactions chimiques, la viscosité de la matrice au cours de la mise en forme du composite et les propriétés finales surfaciques ou volumiques de ce dernier. Les renforts fibreux sont quant à eux constitués de filaments continus ou discontinus de carbone, de verre ou de polymères (fibres Kevlar par exemple). Ils constituent les ossatures mono, bi ou tridimensionnelles des matériaux composites et permettent de transmettre les flux thermiques, électriques ou les efforts mécaniques. Les renforts continus ont des architectures diverses et peuvent se présenter sous forme d'assemblages tissés, non-tissés, tressés, tricotés, etc. constitués de filaments, de mèches de filaments ou de fibres (quelques centaines à plusieurs milliers de filaments quasi parallèles). Ils sont principalement utilisés pour des applications composites à hautes performances pour lesquelles les propriétés mécaniques sont privilégiées par rapport à la cadence de production et au prix du produit final. Les fibres ou mèches de fibres discontinues sont quant à elles utilisées pour satisfaire des cadences de production plus élevées, des coûts moindres et pour obtenir des pièces avec des formes géométriques plus complexes. Notons également que, depuis une dizaine d'années, les industriels du secteur des composites tentent de réduire l'empreinte carbone de leurs produits grâce à l'utilisation croissante de fibres naturelles

issues de plantes annuelles telles que le lin ou le chanvre, appréciées pour leurs bonnes propriétés mécaniques ou de matrices polymères issues de la biomasse.

Dans ce travail, nous nous intéressons plus particulièrement aux matériaux composites à matrices polymères renforcées par des fibres discontinues. Ces composites sont essentiellement mis en forme par injection, extrusion ou bien encore compression. En principe, ces matériaux composites constitueraient des solutions matériaux pertinentes pour de très nombreuses applications si l'on était capable de contrôler précisément l'agencement de leur renfort fibreux lors des opérations de mise en forme, ce qui constitue encore la pierre d'achoppement de ces matériaux. Il est toujours difficile d'observer, de comprendre et de modéliser les changements de la microstructure fibreuse de ces matériaux induits lors de leur mise en forme. Très souvent, des phénomènes d'orientation (Figure 0.1a), de déformation ou de rupture (Figure 0.1b,c) de fibres se produisent. Ces phénomènes peuvent être accompagnés de phénomènes d'agrégation de fibres aux échelles mésoscopiques (échelle du point de vue de la mécanique des milieux continus de l'ingénieur, Fig. 2a) ou macroscopiques (échelle de la pièce à produire Fig. 2b,c).

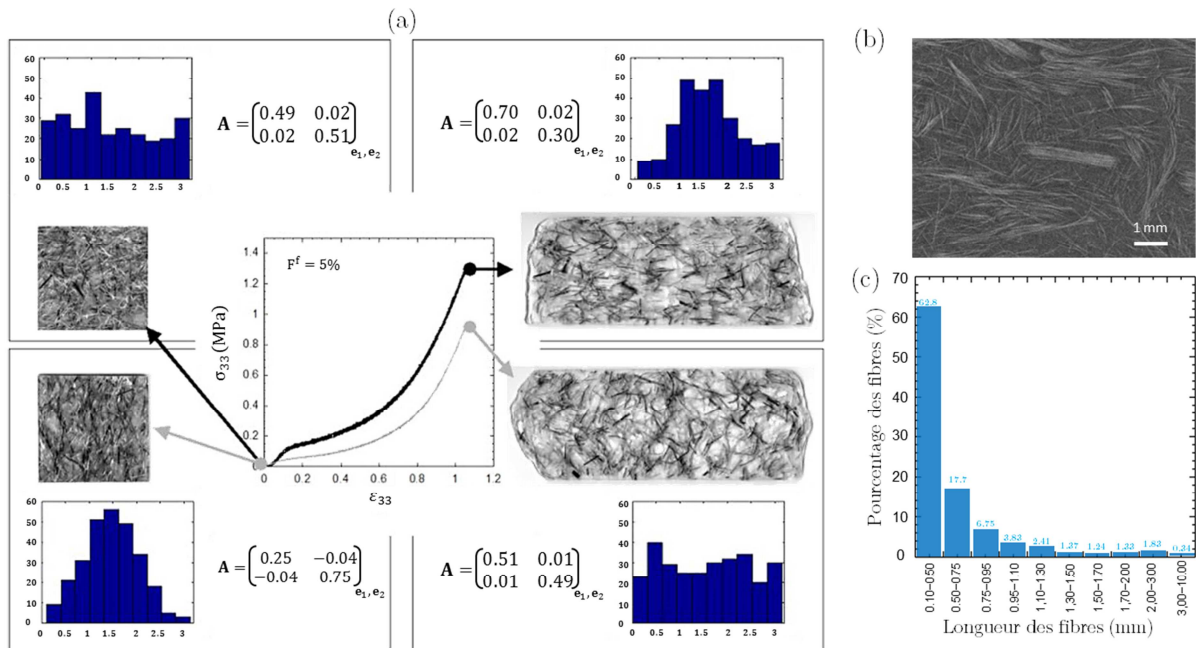


Figure 0.1 Compression d'une suspension formée d'une matrice PMMA renforcée par des mèches de fibres de verre dans un canal montrant le couplage entre la rhéologie du composite au cours de sa mise en forme et l'orientation initiale des fibres : autour des courbes contraintes-déformation sont présentées des vues des suspensions dans le plan de compression aux instants initiaux et finaux de compression ainsi que les fonctions de distribution d'orientation des fibres Ψ et des tenseurs d'orientations des fibres \mathbf{A} d'ordre 2 qui leur sont associés [dumont07b]. (b) Coupe 2D d'un échantillon comprimé de « Sheet Moulding Compounds » (SMC) obtenu par microtomographie à rayons X, montrant la forte déformation de flexion subie par les mèches de fibres au cours de la mise en forme [Le08]. (c) Distribution des longueurs des fibres d'un « Bulk Moulding Compound » (BMC) à la sortie d'une buse d'injection montrant la rupture des fibres. Initialement, les fibres possédaient une longueur de 10 mm [orgeas08].

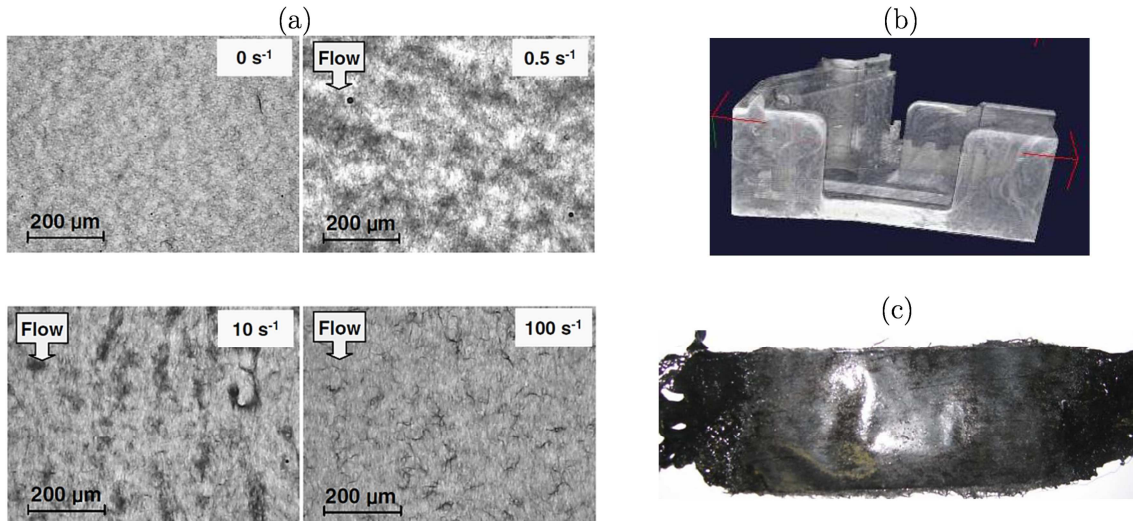


Figure 0.2 (a) Formation et désagrégation d'amas au cours du cisaillement d'une suspension de nanotubes de carbone en fonction du taux de cisaillement [ma08]. (b) Image 3D obtenue par microtomographie à rayons X d'une pièce industrielle en BMC montrant des phénomènes d'orientation et d'agrégation de renforts du composite (S. Teyssier, Schneider Electric). (c) Exemple de phénomène de ségrégation fibre-matrice apparaissant à l'issue de la compression d'une pièce de « Glass Mat Thermoplastics » (GMT) dans un canal à haute température [orgeas08ijmf].

Ces évolutions microstructurales engendrent naturellement d'importantes variations des propriétés physiques et mécaniques dans les pièces produites. La figure 3 illustre les fortes influences du taux et de l'orientation de fibres de cuivre sur les propriétés de conductivité thermique d'un composite comportant une matrice à base de PMMA.

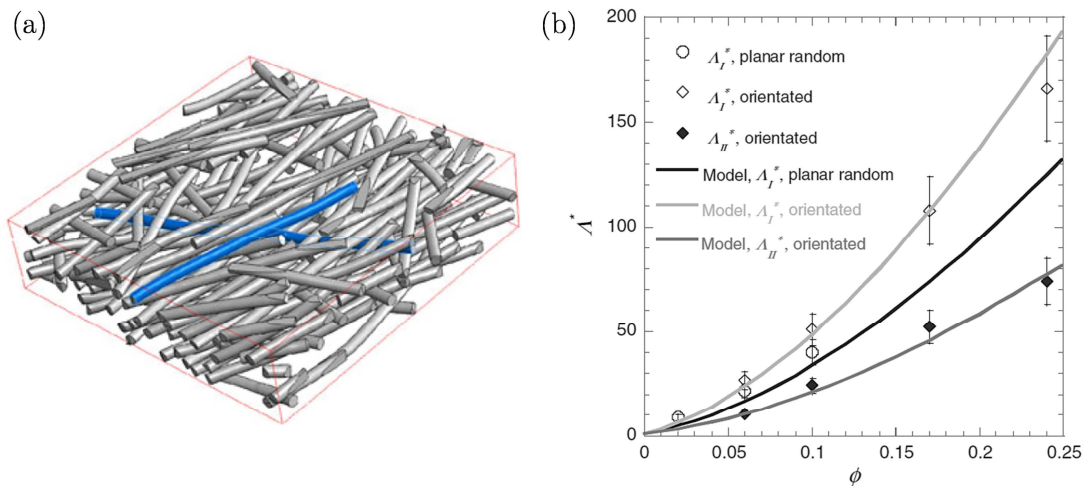


Figure 0.3 (a) Image 3D (microtomographie à rayons X) de l'architecture fibreuse d'un composite formé d'une matrice PMMA et de fibres de cuivre (fraction volumique $\phi = 0.1$, élanement $\beta = 50$, longueur $l = 10$ mm, nombre de contacts par fibre $N_c = 9$). Évolution de la conductivité effective adimensionnelle Λ^* en fonction de la fraction volumique de fibre ϕ pour des orientations planes et isotropes ou orientées de la structure fibreuse [orgeas12jms].

L'origine de ces défauts ou microstructures non maîtrisées est double.

- Elle vient d'abord de la rhéologie complexe des composites à fibres courtes au cours de leur mise en forme. Dans ces étapes, les composites peuvent être assimilés à des suspensions de fibres. Dans la plupart des cas, les matrices polymères, qui jouent le rôle de fluides suspensifs, ont un comportement rhéologique fortement non-newtonien (Figure. 0.4a), rendant les mécanismes d'interaction entre le fluide et les fibres très complexes. En outre, les fractions volumiques et l'élanement des fibres sont tels que les régimes de concentration de ces suspensions sont dits semi-dilués ou concentrés (Figure. 0.4b). Dans ces régimes, des interactions micromécaniques entre fibres se produisent au niveau de leurs contacts. Ces interactions sont complexes et ont des origines variées qui dépendent de la taille, la géométrie ainsi que de la nature des fibres et des propriétés physico-chimiques des fluides suspensifs. Elles peuvent être de type stérique, visqueux, viscoplastique ou colloïdal... Si elle s'est largement accrue au cours de ces dernières années, nous verrons dans le chapitre suivant que la littérature portant sur la caractérisation et la modélisation de la rhéologie de ces systèmes fibreux reste relativement limitée au regard des nombreux travaux portant sur les suspensions fibreuses diluées et newtoniennes. Les principales raisons à cela sont liées aux difficultés de bien (i) caractériser les microstructures fibreuses, l'écoulement et les interactions mécaniques entre fibres et entre les fibres et les fluides suspensifs, (ii) modéliser analytiquement ou simuler numériquement les écoulements aux échelles des fibres pour réaliser des changements d'échelles « micro-macro » pertinents. Nous verrons que ces difficultés peuvent aujourd'hui être en partie surmontées, en particulier, en utilisant à l'échelle des fibres l'imagerie 3D (Figure 0.3a) en temps réel et des simulations numériques 3D.

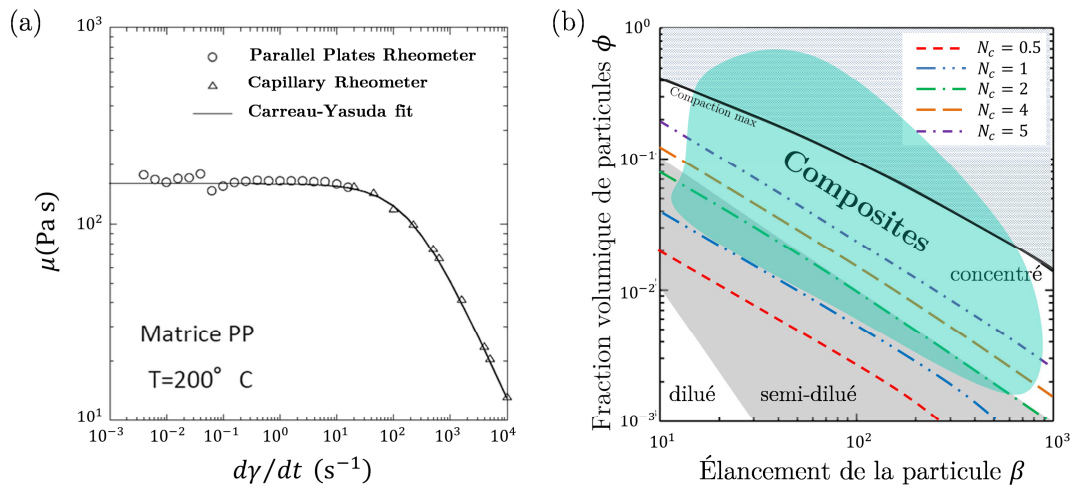


Figure 0.4 Rhéologie d'une matrice de polypropylène à une température de 200°C, dont l'évolution de la viscosité μ en fonction du taux de cisaillement peut être modélisée par une loi de type Carreau-Yasuda [orgeas08ijmf]. (b) Présentation des régimes de concentration des suspensions ainsi que du nombre de contacts par particule N_c en fonction de l'élanement β et de la fraction volumique de particules ϕ [ferec14]. La zone teintée en vert représente le domaine d'utilisation des composites fibreux et à matrice polymérique et la courbe noire symbolise la fraction volumique maximale qu'il est possible d'atteindre pour des particules parfaitement rigides [mueller11].

- Elle provient également du fait que dans beaucoup de situations de mise en forme, ces matériaux composites sont amenés à s'écouler dans des zones relativement « étroites », c'est-à-dire des zones dont la taille caractéristique est du même ordre de grandeur que la longueur des fibres (Figure 0.5). Dans ces zones où l'écoulement est dit confiné (avec une faible séparation d'échelles entre la taille du domaine « macroscopique » et celle des hétérogénéités du milieu considéré), les mécanismes de déformation sont souvent bien différents que dans les autres régions. Dans ces conditions, la question même de l'existence même d'un milieu continu équivalent peut être posée. Nous verrons dans le chapitre suivant que les travaux de la littérature portant sur ces situations d'écoulement, pourtant très répandues industriellement, sont encore très rares. Comme dans le point précédent, l'utilisation de l'imagerie 3D ou de simulations numériques 3D aux échelles des fibres semble être aujourd'hui une méthode envisageable et appropriée permettant de s'attaquer à ces situations d'écoulement complexes et de formuler des modèles analytiques macroscopiques.

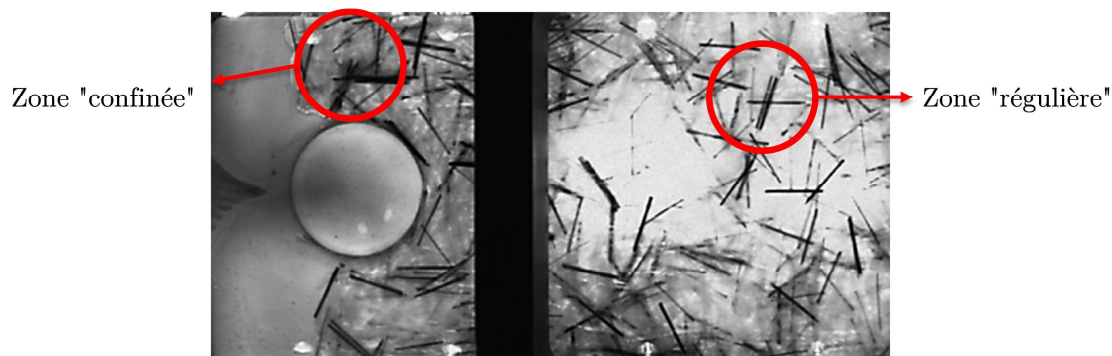


Figure 0.5 Écoulement d'une suspension de mèches de fibres de verre immergées dans un gel de paraffine mou et transparent lors de sa compression dans un canal avec un obstacle cylindrique. Seulement 10% des mèches sont peintes en noires.

Au regard de ce bref constat, dans cette thèse, nous avons voulu apporter des éléments de compréhension et de modélisation nouveaux sur les mécanismes de déformation se produisant à l'échelle des fibres dans des suspensions de fibres dont les microstructures et le comportement rhéologique non-newtonien sont très proches de celles des matériaux composites industriels à fibres courtes en écoulement dans des zones confinées. Pour cela, nous avons opté pour une méthodologie alliant à la fois des observations 3D et *in situ* des microstructures fibreuses, et des simulations numériques à l'échelle des fibres de ces écoulements. Pour le premier point, nous avons d'abord élaboré des systèmes fibreux modèles à matrice non-newtonienne couvrant une très grande plage de concentrations, du régime dilué au régime concentré. Ces suspensions ont été déformées en compression dans un rhéomètre implanté dans un microtomographe à rayons X synchrotron, permettant, pour la première fois, d'obtenir des images 3D et en temps réel des microstructures des suspensions en cours d'écoulement. Nous avons également développé des algorithmes d'analyse d'images originaux pour identifier et surtout suivre, par corrélation semi-discrète les lignes moyennes des fibres ainsi que les fibres et leurs possibles contacts en cours d'écoulement. Pour le second point, nous avons effectué des simulations numériques de type « High Performance Computations » (HPC). Pour cela, un code de calculs par éléments finis original a été utilisé. Celui-ci est basé sur une approche

eulérienne de l'écoulement, une description des interfaces par « level sets » et des procédures de remaillage dédiées.

Ainsi, ce mémoire est organisé de la manière suivante. Dans le chapitre 1, nous dressons un état de l'art non-exhaustif sur la caractérisation et la modélisation de la rhéologie des suspensions de fibres et des évolutions de leur microstructure. Cet aperçu bibliographique nous permet de recadrer plus précisément les objectifs de ce travail. Dans le chapitre 2, nous montrons les possibilités et l'intérêt offerts par l'imagerie 3D, *in situ* et en temps réel pour décrire la cinématique de fibres (i) en suspension dans un fluide suspensif rhéofluidifiant, (ii) dans des suspensions en régime dilué et confiné. Ce chapitre a fait l'objet d'un article paru dans *Composites Science and Technology*. Dans le chapitre 3, ces expériences constituent le support pour, dans un premier temps, valider les simulations numériques par éléments finis. Cet outil numérique est ensuite utilisé pour analyser plus précisément le rôle du caractère non-newtonien du fluide suspensif, du confinement et des conditions de bords à la paroi du rhéomètre sur l'écoulement des suspensions. De là, un modèle simple et analytique est proposé pour décrire la cinématique des fibres, en étendant les travaux récents de Perez *et al.* [perez16]. Ce chapitre constitue un article actuellement soumis dans le *Journal of Non-Newtonian Fluid Mechanics*. Dans le chapitre 4, l'imagerie 3D et les simulations par éléments finis sont utilisées pour étudier finement les écoulements de suspensions fibreuses non-newtoniennes dans le régime semi-dilué et confiné. Les résultats expérimentaux et numériques sont confrontés aux rares modèles dédiés de la littérature et font l'objet d'un article en préparation. Dans le sixième chapitre, nous montrons des résultats expérimentaux préliminaires obtenus pour des suspensions de fibres concentrées. Enfin, le dernier chapitre synthétise les résultats principaux issus de ce travail et quelques perspectives générales sont présentées.

Chapitre 1. État de l'art sur les suspensions newtoniennes et non-newtoniennes de fibres courtes

Sommaire

1.1 Remarques sur les problématiques de mise en forme des composites à fibres courtes.	11
1.2 Description des structures des suspensions fibreuses.....	13
1.2.1 Descripteurs associés aux fibres	13
1.2.2 Descripteurs de l'architecture des suspensions fibreuses.....	14
1.3 Rhéologie des suspensions fibreuses	18
1.3.1 Rhéologie de la matrice polymère	18
1.3.2 Suspensions à matrice newtonienne	19
1.3.3 Suspensions à matrice non-newtonienne	22
1.3.4 Remarques sur les techniques de caractérisation rhéologique.....	23
1.4 Cinématique des suspensions fibreuses.....	24
1.4.1 Cinématique d'une particule isolée	24
1.4.2 Loi d'évolution d'une population de fibres.....	29
1.5 Apport des techniques d'imagerie	38
1.6 Conclusion.....	39

1.1 Remarques sur les problématiques de mise en forme des composites à fibres courtes

Dans cette partie, nous donnons quelques éléments génériques sur les problématiques de mise en forme des matériaux composites (en particulier ceux comportant des fibres courtes qui font l'objet de ce travail) en complément de ceux donnés dans l'Introduction générale.

Remarques sur les matrices utilisées dans les matériaux composites - D'un point de vue général, la nature et la viscosité de la matrice polymère des matériaux composites jouent un rôle important lors des étapes de fabrication des matériaux composites. À froid, les polymères thermodurcissables sont généralement utilisés à l'état liquide. Leur faible viscosité assure une bonne imprégnation ou dispersion du renfort fibreux. Ils durcissent sous l'effet d'une activation chimique (agent réticulant) et thermique permettant la création de réseaux tridimensionnels par la formation de liaisons entre les chaînes macromoléculaires. Cette réaction est appelée la réticulation du polymère. À froid, les thermoplastiques sont quant à eux solides. Il est ainsi nécessaire de les chauffer avant la mise en forme du composite afin de diminuer leur viscosité et d'obtenir une meilleure imprégnation ou dispersion du renfort fibreux. Notons que les thermodurcissables possèdent une viscosité 50 à 500 fois grande que celle de l'eau tandis que la viscosité des thermoplastiques peut être un million de fois plus grande. Les propriétés mécaniques des thermoplastiques sont largement dépendantes de la phase de refroidissement du polymère qui peut comporter pour les polymères thermoplastiques semi-cristallins à la fois des phases amorphes (sans structure régulière) et des phases cristallines qui se développent par réarrangement des chaînes moléculaires lors du refroidissement lent de la matière. Le taux de cristallinité de ces matériaux dépend de la pression et de la température appliquées lors du procédé ainsi que de leur masse moléculaire.

De nombreux additifs, adjuvants et charges sont en général ajoutés aux polymères utilisés dans les composites ce qui permet d'adapter leurs propriétés physiques, rhéologiques et mécaniques (densité, propriétés optiques, résistance au feu, coloration, conductivité, contrainte à la rupture) aux types d'applications visées. Par ailleurs, ces additifs permettent également un meilleur contrôle du procédé de mise en forme. Pour les thermoplastiques, on peut citer parmi les additifs classiquement utilisés les plastifiants qui sont des éléments de faible masse moléculaire que l'on ajoute au mélange afin de diminuer la viscosité de la matrice. Des inhibiteurs de durcissement peuvent être ajoutés aux thermodurcissables afin d'initier et contrôler la cinétique de réticulation du polymère. Pour compenser les retraits dus à la réticulation des polymères thermodurcissables et les phénomènes de dilatation et de retrait thermique à l'origine du voilage et du gauchissement des pièces, des agents anti-retrait sont en général ajoutés. Lors de la mise en forme et du démoulage, des lubrifiants et agents de démoulage facilitent l'écoulement des matrices thermoplastiques et thermodurcissables. Les thermodurcissables ou les thermoplastiques sont souvent chargés avec des particules minérales. L'effet de ces différents additifs sur les matrices polymères utilisées dans les composites est qu'elles doivent être le plus souvent considérées comme des **fluides non-newtoniens** dont la viscosité est fortement tributaire de la température et de la vitesse de déformation, cette non-linéarité du comportement rhéologique pouvant bien sûr être également intrinsèque aux matrices polymères pures. **La prise en compte du caractère non-newtonien des**

matrices polymères dans l'étude du comportement rhéologique des matériaux composites à fibres courtes fera l'objet d'une attention particulière dans ce travail.

Remarques sur les procédés de mise en forme des composites - Les procédés de mise en forme des matériaux composites peuvent être classés en trois catégories.

La première catégorie regroupe la mise en forme de préimprégnés à fibres continues ou à fibres discontinues longues et unidirectionnelles. Parmi les procédés mettant en œuvre cette approche, on trouve par exemple les procédés de thermo-estampage de matériaux préimprégnés à matrice thermoplastique comportant des renforts tissés.

La deuxième catégorie rassemble les procédés d'imprégnation de renforts continus structurés et secs. Cette famille de procédés est souvent désignée par procédés « Liquid Composite Moulding » ou LCM. Dans la plupart de ces procédés sont utilisées des matrices thermodurcissables à faible viscosité. L'objectif est de garantir une bonne imprégnation du réseau fibreux poreux par la matrice polymère et de bien contrôler la réticulation de cette dernière. Dans cette famille, on trouve les procédés tels que le « Vacuum Assisted Resin Transfer Moulding » ou VARTM, où le polymère imprègne le renfort par l'application d'une pression inférieure à la pression atmosphérique, le « Resin Transfer Moulding » ou RTM, où l'imprégnation est réalisée par l'application d'une pression supérieure à la pression atmosphérique. Ces procédés permettent la création de pièces de grandes dimensions (un à quelques mètres) et à haute performance mécanique et à faible porosité.

La troisième catégorie implique des composites renforcés par des fibres courtes où la suspension, c'est-à-dire le mélange des fibres et de matrice polymère à l'état fluide ou fondu (thermodurcissable ou thermoplastique) s'écoule sous pression au travers d'une filière ou dans un moule. **Les travaux développés dans ce travail intéressent plus particulièrement cette famille de procédés.** Les procédés de mise en forme appartenant à cette catégorie sont les procédés d'extrusion, d'injection, de compression de pré-imprégnés à renfort discontinus tels que les « Sheet Moulding Compounds » (SMC) ou les « Glass Mat Thermoplastics » (GMT).

- Le procédé d'injection est le procédé le plus utilisé et permet de produire des pièces complexes avec un volume de production élevée pour des fractions massiques en fibres de l'ordre de 30% à 40%. Le principe revient à injecter sous pression des granules de polymère thermoplastique fondu renforcées par des fibres dans un moule fermé généralement froid, ce qui entraîne ainsi la solidification de la suspension. Les propriétés finales de la pièce composite reposent sur les paramètres des matériaux utilisés comme la rhéologie de la matrice, la concentration et l'orientation des fibres. Ces dernières dépendent également des paramètres du procédé régissant l'écoulement de la suspension comme la température du polymère et du moule, la vitesse et pression d'injection, et des paramètres géométriques à savoir la taille et forme du moule, les localisations des entrées des matières dans le moule et des sorties d'air (évents). L'utilisation de cette méthode limite cependant la longueur des fibres injectées dans une gamme comprise entre 5 μm à 500 μm . Cette méthode est utilisée pour fabriquer des pièces d'habillage automobiles, des sièges d'avions, des boîtiers électriques, etc.
- Le principe de l'extrusion est similaire à celui de l'injection. Cependant, à la place d'un moule fermé la suspension passe au travers d'une filière qui génère la section de la pièce extrudée (tube, tuyau, profilé, etc.). L'avantage de ce procédé est de conférer d'excellents états de surfaces aux pièces ainsi produites.

- Afin de limiter les déformations de la suspension au cours de la mise en forme du composite et d'augmenter la taille des fibres ainsi que leur concentration, les industriels utilisent également le procédé de compression de pré-imprégnés à base de fibres ou de mèches courtes. Les pré-imprégnés sont composés de renforts fibreux (discontinus) imprégnés par une matrice pré-réticulée ou mûrie si celle-ci est thermodurcissable ou en général simplement fondue ou sous forme de poudre ou de fils « comêlés » si elle est thermoplastique. Cette étape de pré-imprégnation garantit aux pièces moulées une très bonne qualité d'imprégnation. Dans le cas des SMC, pré-imprégnés à matrice thermodurcissable, le procédé de compression consiste à placer le pré-imprégné dans un moule ouvert et chauffé. Au cours de la fermeture du moule, le pré-imprégné s'écoule et prend sa forme finale. Pour les GMT, pré-imprégnés à matrice thermoplastique, le moulage nécessite une étape préalable de chauffage du pré-imprégné conférant une grande fluidité à la matrice thermoplastique. Le reste du procédé de moulage est assez similaire à celui utilisé pour les SMC, une différence notable étant qu'un moule froid est utilisé ce qui permet d'entraîner sous pression le refroidissement de la matrice sous sa température de transition vitreuse avant le démoulage de la pièce composite. Les pièces produites avec ces pré-imprégnés sont utilisées comme pièces de carrosserie dans l'industrie automobile ou comme boîtiers dans l'industrie électrique.

Les propriétés mécaniques de la pièce finale sont largement dépendantes de la forme, de l'élançement, de la distribution et de l'orientation des fibres au sein de la pièce [Adv94, TV96, FM03, DGD+05, LDO+08, ODV+12], ces paramètres dépendant des conditions de mise en forme. Ainsi, la compréhension de rhéologie des suspensions de fibres concentrées voire hyperconcentrées que forment ces matériaux polymères chargés par des fibres courtes est une étape primordiale pour la production de pièces de qualité aux performances mécaniques élevées.

1.2 Description des structures des suspensions fibreuses

Dans cette section sont présentés les outils mathématiques classiquement utilisés dans la littérature pour décrire la structure d'une suspension fibreuse à différentes échelles. Dans de nombreuses études, les fibres sont vues comme des bâtonnets ayant la forme de cylindres de révolution qui sont souvent considérés comme rigides. Cependant, les premiers travaux théoriques de Jeffery [Jef22] sur le mouvement de particules en suspension ont porté sur des ellipsoïdes en suspension dans des fluides newtoniens.

1.2.1 Descripteurs associés aux fibres

Dans une suspension, une particule axisymétrique (ellipsoïde ou cylindre de révolution) peut être caractérisée par sa géométrie, son orientation et sa position dans l'espace.

Géométrie des fibres - La forme de ces particules est caractérisée par leur élançement β défini comme le rapport entre la longueur l de la fibre selon son axe de symétrie principal et la longueur des deux autres axes d [Jef22] :

$$\beta = \frac{l}{d} \quad (\text{Eq. 1.1})$$

Orientation des fibres - L'orientation d'une particule axisymétrique est souvent décrite par un vecteur d'orientation \mathbf{p} porté par l'axe principal de la fibre, comme représenté sur la Figure 1.1. Dans le repère cartésien orthonormé direct $(\mathbf{0}, \mathbf{e}_1, \mathbf{e}_2, \mathbf{e}_3)$, l'orientation peut également être décrite grâce aux angles θ et φ qui sont simplement reliés au vecteur \mathbf{p} par les relations :

$$\mathbf{p} = \sin\theta \cos\varphi \mathbf{e}_1 + \sin\theta \sin\varphi \mathbf{e}_2 + \cos\theta \mathbf{e}_3 \quad (\text{Eq. 1.2})$$

Ces angles sont définis dans les intervalles $\theta \in [0, \pi]$ et $\varphi \in [0, 2\pi]$. Le choix de la direction du vecteur \mathbf{p} est arbitraire étant donné que la particule est axisymétrique. Pour un ensemble de fibres, la description de l'orientation doit rester inchangée si l'on inverse les directions des fibres ($\mathbf{p} \rightarrow -\mathbf{p}$).

Position des fibres - Dans une suspension fibreuse, la position des fibres est le plus souvent simplement reliée à la position du centre de gravité \mathbf{x}_G .

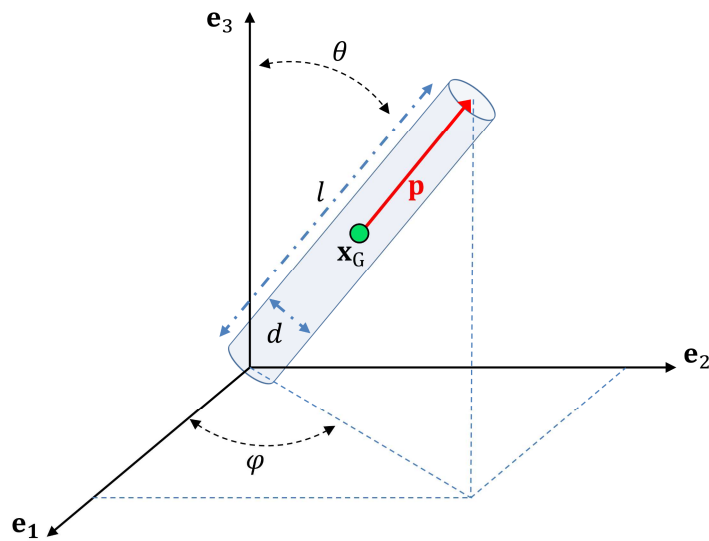


Figure 1.1 Définition du système de coordonnées ainsi que du vecteur tangent \mathbf{p} d'une fibre cylindrique de révolution, des angles θ et φ associés et de son centre de gravité \mathbf{x}_G .

1.2.2 Descripteurs de l'architecture des suspensions fibreuses

Fraction volumique de fibres – La concentration en fibres d'une suspension peut être quantifiée par la fraction volumique de fibres ϕ . Le nombre de fibres par unité de volume n présentes dans la suspension peut également être utilisé pour décrire cette concentration. Dans le cas de fibres cylindriques de révolution, la fraction volumique ϕ et le nombre de fibres par unité de volume n peuvent être reliés par la relation suivante :

$$\phi = n\pi \frac{d^2 l}{4} \quad (\text{Eq. 1.3})$$

Trois régimes de concentration sont classiquement définis pour les suspensions fibreuses [DE78]. Ces trois régimes de concentration définissent la nature des interactions qui se produisent entre les fibres qui composent les suspensions lorsqu'elles sont au repos ou en écoulement.

Dans le premier régime dit dilué, les interactions de contact et les interactions hydrodynamiques entre fibres sont négligeables. Dans ce cas, la distance entre fibres est

suffisamment grande pour que les perturbations du champ de vitesse et de contraintes autour d'une fibre ne se propagent pas aux fibres voisines lors de l'écoulement de la suspension. Dans ce régime, la fraction volumique et le nombre de particules sont majorées selon :

$$\phi \ll 1/\beta^2 \text{ et } n \ll 1/l^3 \quad (\text{Eq. 1.4})$$

Lorsque la concentration en fibres augmente avec $1/\beta^2 \ll \phi \ll 1/\beta$ et $1/l^3 \ll n \ll 1/dl^2$, les propriétés de la suspension sont fortement affectées par la présence des fibres. Ainsi, lors de l'écoulement de la suspension, les fibres subissent des interactions hydrodynamiques à longue distance causées par des perturbations du champs de vitesse du fluide dues à la présence de fibres voisines. La distance inter-fibre est inférieure à la longueur offrant la possibilité de contacts entre fibres. Ce régime de concentration est appelé le régime semi-dilué.

Si la concentration de la suspension augmente encore, $\phi \gtrsim 1/\beta$ et $n \gtrsim 1/dl^2$, la distance entre les fibres est de l'ordre du diamètre d des fibres. Dans ce cas, les fibres sont quasiment toujours en contact avec une à plusieurs fibres à la fois et subissent des interactions hydrodynamiques à longue distance (*cf.* régime semi-dilué) et à courte distance de type hydrodynamique ou frottement sec. Ce régime de concentration est appelé le régime concentré.

Description de l'orientation fibreuse au sein des suspensions - Un moyen de décrire l'orientation d'une population de fibres au sein d'une suspension est d'utiliser une description probabiliste de la distribution d'orientation des fibres. Si l'on considère au temps t un point M de coordonnées \mathbf{x} au sein de la suspension, la densité d'orientation fibreuse est définie par la fonction de distribution d'orientation $\psi(t, \theta, \varphi)$ ou $\psi(t, \mathbf{p})$. La probabilité P qu'une fibre présente une orientation comprise dans les intervalles $[\theta, \theta + d\theta]$ et $[\varphi, \varphi + d\varphi]$ est définie par la relation suivante :

$$P(\theta \in [\theta, \theta + d\theta], \varphi \in [\varphi, \varphi + d\varphi]) = \psi(\mathbf{x}, t, \theta, \varphi) \sin\theta d\theta d\varphi \quad (\text{Eq. 1.5})$$

Comme une fibre d'orientation \mathbf{p} ou $\pi - \theta$ $\varphi + \pi$ ne peut pas être différenciée d'une fibre d'orientation $-\mathbf{p}$, la fonction ψ est π -périodique :

$$\psi(\mathbf{x}, t, \theta, \varphi) = \psi(\mathbf{x}, t, \pi - \theta, \varphi + \pi) \quad (\text{Eq. 1.6})$$

De plus, l'intégrale de cette fonction dans l'espace d'orientation est unitaire :

$$\int \psi(\mathbf{x}, t, \mathbf{p}) d\mathbf{p} = \int_0^{2\pi} \int_0^\pi \psi(\mathbf{x}, t, \theta, \varphi) \sin\theta d\theta d\varphi = 1 \quad (\text{Eq. 1.7})$$

La fonction de distribution offre une description complète de l'état d'orientation des fibres à une position et un temps donnés, mais la détermination de cette fonction et de son évolution au cours de l'écoulement d'une suspension est cependant lourde et coûteuse. Pour contrer cette difficulté, Advani et Tucker [AT87] ont proposé l'introduction de tenseurs d'orientation formés du produit dyadique du vecteur d'orientation \mathbf{p} avec lui-même, pondéré par la fonction de densité d'orientation et intégré sur l'espace d'orientation. Par exemple, le tenseur d'orientation d'ordre deux est défini comme suit :

$$\mathbf{A} = A_{ij} = \int_0^{2\pi} \int_0^\pi p_i p_j \psi(\mathbf{x}, t, \theta, \varphi) \sin\theta d\theta d\varphi \quad (\text{Eq. 1.8})$$

et le tenseur d'orientation d'ordre quatre selon :

$$\mathbb{A} = A_{ijkl} = \int_0^{2\pi} \int_0^\pi p_i p_j p_k p_l \psi(\mathbf{x}, t, \theta, \varphi) \sin\theta d\theta d\varphi \quad (\text{Eq. 1.9})$$

Les tenseurs d'ordres impairs étant nuls. Les tenseurs d'ordre deux et quatre sont par ailleurs symétriques. La condition de normalisation (Eq. 1.7) impose que la trace du tenseur d'ordre deux est unitaire. Il est également possible de montrer que les tenseurs d'ordres plus élevés contiennent toutes les informations des tenseurs d'ordres inférieurs, par exemple :

$$A_{ijkk} = A_{ij} \quad , \quad A_{ijklmm} = A_{ijkl} \quad (\text{Eq. 1.10})$$

La fonction de distribution est également reliée aux tenseurs d'orientations développés à l'ordre infini par le développement en série suivant :

$$\psi(\mathbf{x}, t, \theta, \varphi) = \psi(\mathbf{x}, t, \pi - \theta, \varphi + \pi) \quad (\text{Eq. 1.11})$$

$$\psi(\mathbf{p}) = \frac{1}{4\pi} + \frac{15}{8\pi} b_{ij} f_{ij}(\mathbf{p}) + \frac{315}{32\pi} b_{ijkl} f_{ijkl}(\mathbf{p}) + \dots \quad (\text{Eq. 1.12})$$

Cette équation équivaut à exprimer la fonction de distribution d'orientation par les fonctions tensorielles de base du vecteur \mathbf{p} formulées ainsi :

$$\begin{aligned} f_{ij}(\mathbf{p}) &= p_i p_j - \frac{1}{3} \delta_{ij} \\ f_{ijkl}(\mathbf{p}) &= p_i p_j p_k p_l - \frac{1}{7} (\delta_{ij} p_k p_l + \delta_{ik} p_j p_l + \delta_{il} p_j p_k + \delta_{jk} p_i p_l + \delta_{jl} p_i p_k + \delta_{kl} p_i p_j) \\ &\quad + \frac{1}{35} (\delta_{ij} \delta_{kl} + \delta_{ik} \delta_{jl} + \delta_{il} \delta_{jk}) \end{aligned} \quad (\text{Eq. 1.13})$$

avec δ_{ij} le tenseur unité. Les parties déviatoires des tenseurs d'orientations sont notées comme suit :

$$\begin{aligned} b_{ij} &= \langle p_i p_j \rangle - \frac{1}{3} \delta_{ij} \\ b_{ijkl} &= \langle p_i p_j p_k p_l \rangle - \frac{1}{7} (\delta_{ij} a_{kl} + \delta_{ik} a_{jl} + \delta_{il} a_{jk} + \delta_{jk} a_{il} + \delta_{jl} a_{ik} + \delta_{kl} a_{ij}) \\ &\quad + \frac{1}{35} (\delta_{ij} \delta_{kl} + \delta_{ik} \delta_{jl} + \delta_{il} \delta_{jk}) \end{aligned} \quad (\text{Eq. 1.14})$$

Nombre de contacts fibre-fibre par fibre – Pour un volume et une longueur de fibre arbitraire, Toll [Tol93] a montré qu'il est possible de relier le nombre de contacts moyen par fibre \bar{z} avec la fonction de distribution d'orientation ψ et la fraction volumique de fibres :

$$\bar{z} = 4\phi \left(\frac{2}{\pi} \beta f + g + 1 \right) \quad (\text{Eq. 1.15})$$

avec β l'élanement de la fibre, et f et g des fonctions dépendant de la fonction de distribution d'orientation selon :

$$f = \int_{\mathbf{p}^\alpha} \int_{\mathbf{p}^\beta} |\mathbf{p}^\alpha \times \mathbf{p}^\beta| \psi_{\mathbf{p}^\alpha} \psi_{\mathbf{p}^\beta} d\mathbf{p}^\beta d\mathbf{p}^\alpha \quad (\text{Eq. 1.16})$$

$$g = \int_{\mathbf{p}^\alpha} \int_{\mathbf{p}^\beta} |\mathbf{p}^\alpha \cdot \mathbf{p}^\beta| \psi_{\mathbf{p}^\alpha} \psi_{\mathbf{p}^\beta} d\mathbf{p}^\beta d\mathbf{p}^\alpha$$

Ce modèle est valable pour des suspensions où les fibres sont « monodisperses », rigides, droites et uniformément réparties au sein de la suspension. Pour des fibres élançées, le nombre de contacts moyen par fibre se réduit à l'expression suivante :

$$\bar{z} = \frac{8}{\pi} \beta f \quad (\text{Eq. 1.17})$$

Orientation des contacts fibre-fibre - Afin de caractériser les contacts mécaniques apparaissant entre les fibres en particulier dans les suspensions de fibres concentrées, des tenseurs d'interactions \mathbf{B}_2 et \mathbf{B}_4 ont été introduits [FAHC09, LOG+11, GODR12]. Ils sont définis comme le produit $\mathbf{p}^\alpha \mathbf{p}^\sigma$ des vecteurs tangents \mathbf{p} des fibres α et σ pondérés par le potentiel d'Onsager $|\mathbf{p}^\alpha \times \mathbf{p}^\sigma|$. L'ensemble est ensuite intégré deux fois dans toutes les directions d'orientation [DMT05] :

$$\mathbf{B}_2 = \int_{\mathbf{p}^\alpha} \int_{\mathbf{p}^\sigma} \mathbf{p}^\alpha \otimes \mathbf{p}^\sigma |\mathbf{p}^\alpha \times \mathbf{p}^\sigma| \psi_{\mathbf{p}^\alpha} \psi_{\mathbf{p}^\sigma} d\mathbf{p}^\sigma d\mathbf{p}^\alpha$$

$$\mathbf{B}_4 = \int_{\mathbf{p}^\alpha} \int_{\mathbf{p}^\sigma} \mathbf{p}^\alpha \otimes \mathbf{p}^\alpha \otimes \mathbf{p}^\sigma \otimes \mathbf{p}^\sigma |\mathbf{p}^\alpha \times \mathbf{p}^\sigma| \psi_{\mathbf{p}^\alpha} \psi_{\mathbf{p}^\sigma} d\mathbf{p}^\sigma d\mathbf{p}^\alpha$$
(Eq. 1.18)

Comme les tenseurs d'orientations des fibres, ces derniers sont symétriques. Leur utilisation permet également de différencier une orientation 3D aléatoire de fibres d'une orientation triaxiale ou de différencier une orientation plane aléatoire d'une orientation biaxiale. Notons que la fonction f apparaissant dans l'équation du nombre de contacts de Toll (Eqs. 1.15,17) et s'écrit $f = \text{trace}(\mathbf{B}_2)$. Par ce biais le nombre de contacts est directement relié à ce tenseur d'interaction.

Amas et agrégats - Dans les suspensions concentrées de fibres courtes, il est courant de constater que les fibres forment des agrégats ou des amas. Ceux-ci ont notamment été observés dans des suspensions de nanotubes de carbone [MCAM08] ou pour des composites renforcés par des fibres courtes mis en forme par compression [Spa90] ainsi que par injection [RA90]. Très peu d'auteurs se sont intéressés à la cinétique d'amas dans des suspensions de fibres courtes. Le faible nombre d'observations expérimentales, probablement liée aux difficultés de caractérisation 3D d'une structure fibreuse par les méthodes classiques, reste un obstacle au développement de modèle de cinétique d'agrégats. Récemment, des approches à deux échelles ont été développées pour modéliser d'une part la cinétique de l'agrégat et d'autre part l'évolution des fibres constituant l'agrégat. Ces amas peuvent grandir ou se désagréger au cours de l'écoulement [Chi13, ACCF+15].

1.3 Rhéologie des suspensions fibreuses

1.3.1 Rhéologie de la matrice polymère

Nous détaillons ici les principaux modèles de fluide utilisés pour développer la rhéologie de suspensions fibreuses. Pour un fluide du premier ordre, incompressible et purement visqueux, le tenseur des contraintes macroscopiques $\boldsymbol{\sigma}$ s'exprime sous la forme suivante :

$$\boldsymbol{\sigma} = -p\boldsymbol{\delta} + 2\eta_f\mathbf{D} \quad (\text{Eq. 1.19})$$

avec p la pression moyennée dans le fluide et \mathbf{D} le tenseur taux de déformation $D_{ij} = \frac{1}{2} \left(\frac{\partial \langle v_i \rangle}{\partial x_j} + \frac{\partial \langle v_j \rangle}{\partial x_i} \right)$. Pour les fluides newtoniens, la viscosité η_f est indépendante de la vitesse de déformation du fluide tandis qu'elle en dépend non linéairement par exemple pour les fluides en loi puissance :

$$\eta_f = K\dot{\gamma}^{n-1} \quad (\text{Eq. 1.20})$$

avec K la consistance du fluide, n la sensibilité et $\dot{\gamma}$ la vitesse de déformation généralisée du fluide $\dot{\gamma} = \sqrt{2\mathbf{D}:\mathbf{D}}$.

Pour les fluides viscoélastiques, le tenseur des contraintes est enrichi du terme $\boldsymbol{\tau}^p$ représentant l'apport de la viscoélasticité du fluide :

$$\boldsymbol{\sigma} = -p\boldsymbol{\delta} + 2\eta_s\mathbf{D} + \boldsymbol{\tau}^p \quad (\text{Eq. 1.21})$$

où η_s est la viscosité du solvant newtonien. De nombreux modèles de fluide du premier ordre ont été développés pour prendre en compte la viscoélasticité du fluide (Maxwell, Kelvin-Voigt, etc.). Au second ordre, peuvent être cités le modèle de Rivlin-Ericksen et le modèle de Giesekus dont la contribution viscoélastique au tenseur des contraintes $\boldsymbol{\tau}$ dépend également de la dérivée d'Oldroyd $\frac{\mathcal{D}}{\mathcal{D}t}$ du tenseur taux de déformation \mathbf{D} . Pour le modèle de Rivlin-Ericksen, le tenseur $\boldsymbol{\tau}^p$ prend la forme suivante :

$$\boldsymbol{\tau}^p = t_r\mathbf{D} \cdot \mathbf{D} + \frac{\phi_2}{\phi_3}\mathbf{D} + \frac{\mathcal{D}}{\mathcal{D}t}\mathbf{D} \quad (\text{Eq. 1.22})$$

où t_r est le temps de relaxation du fluide, ϕ_2 et ϕ_3 sont les coefficients des contraintes normales de cisaillement (« zero shear stress coefficients »). La dérivée d'Oldroyd (« upper-convected time derivative ») est définie par l'équation suivante :

$$\frac{\mathcal{D}}{\mathcal{D}t}\mathbf{D} = \frac{\partial \boldsymbol{\tau}}{\partial t} + \mathbf{v} \cdot \nabla \mathbf{D} - (\nabla \mathbf{v})^t \cdot \mathbf{D} - \mathbf{D} \cdot \nabla \mathbf{v} \quad (\text{Eq. 1.23})$$

Le modèle de Giesekus [Bru77, GD14] est également largement utilisé pour prédire les propriétés rhéologiques de nombreux fluides non-newtoniens à la fois viscoélastique et rhéofluidifiant :

$$t_r \frac{\mathcal{D}}{\mathcal{D}t} \boldsymbol{\tau}^p + \frac{\alpha t_r}{\mu_p} \boldsymbol{\tau}^p \cdot \boldsymbol{\tau}^p + \boldsymbol{\tau}^p = 2\eta_f \mathbf{D} \quad (\text{Eq. 1.24})$$

où α est un paramètre constitutif.

Pour des polymères à longues chaînes, certains auteurs [A-KGrm94b, Aza96] utilisent des modèles basés sur le modèle FENE (Finitely Extensible Nonlinear Elastic).

1.3.2 Suspensions à matrice newtonienne

Le problème central de la rhéologie des suspensions fibreuse est d'être capable de relier la mesure moyennée du tenseur des contraintes macroscopiques $\langle \boldsymbol{\sigma} \rangle$ avec les propriétés de la structure fibreuse (distribution et orientation de fibres) et la cinétique de l'écoulement (champ de vitesse du fluide). Les fondements théoriques sur le sujet ont été introduits par Batchelor [Bat70a] qui a démontré l'expression suivante :

$$\langle \sigma_{ij} \rangle = \frac{1}{V} \int_V (\sigma_{ij} - \rho v'_i v'_j) dV \quad (\text{Eq. 1.25})$$

où V est un volume représentatif de la suspension et v'_i sont les composantes de fluctuation du champ de vitesse $\mathbf{v}_i = \langle \mathbf{v}_i \rangle + \mathbf{v}'_i$ et ρ la densité de la suspension. Le second terme de l'intégrale représente les effets inertiels associés aux fluctuations du mouvement moyen. Lorsque ces derniers sont négligeables (régime de Stokes, nombre de Reynolds pour les fibres $\ll 1$), l'expression du tenseur des contraintes macroscopiques $\langle \boldsymbol{\sigma} \rangle$ se réduit à la somme de la contribution du fluide suspensif $\langle \boldsymbol{\sigma}^f \rangle$ et de la contribution due à la présence des particules $\langle \boldsymbol{\sigma}^p \rangle$:

$$\langle \sigma_{ij} \rangle = \langle \sigma_{ij}^f \rangle + \langle \sigma_{ij}^p \rangle = \frac{1}{V} \int_{V-v_p} (\sigma_{ij}) dV + \frac{1}{V} \int_{v_p} (\sigma_{ij}) dV \quad (\text{Eq. 1.26})$$

avec V_p le volume total des particules.

Pour un fluide newtonien incompressible de viscosité η_f , la contribution du fluide $\langle \boldsymbol{\sigma}_{ij}^f \rangle$ au tenseur des contraintes de la suspension s'écrit :

$$\langle \sigma_{ij}^f \rangle = -\langle p \rangle \delta_{ij} + 2\eta_f D_{ij} \quad (\text{Eq. 1.27})$$

avec p la pression moyennée dans le fluide.

La contribution due à la présence des particules ou des fibres $\langle \boldsymbol{\sigma}_{ij}^p \rangle$ s'écrit quant à elle selon l'expression suivante :

$$\langle \sigma_{ij}^p \rangle = \frac{1}{V} \int_{A_p} (\sigma_{ik} x_j n_k - \eta (v_i n_j + v_j n_i)) dA \quad (\text{Eq. 1.28})$$

où A_p est la surface totale des particules et n_i les composantes du vecteur normal \mathbf{n} à cette surface. L'évaluation de cette intégrale est cependant très complexe puisqu'il est nécessaire de connaître le champ de contrainte et la vitesse dans le fluide à la surface de chaque particule du volume V .

Parallèlement, Ericksen [Eri60] a établi un modèle phénoménologique permettant de décrire le champ de contraintes dans des suspensions orthotropes de révolution dont l'anisotropie est représentée en tout point par un vecteur unitaire \mathbf{n} :

$$\boldsymbol{\sigma}^{Eric} = -p \boldsymbol{\delta} + 2\mu_0 \mathbf{D} + \mu_1 \mathbf{n} \otimes \mathbf{n} + \mu_2 \mathbf{D} : (\mathbf{n} \otimes \mathbf{n} \otimes \mathbf{n} \otimes \mathbf{n}) + 2\mu_3 (\mathbf{n} \otimes (\mathbf{D} \cdot \mathbf{n}) + (\mathbf{D} \cdot \mathbf{n}) \otimes \mathbf{n}) \quad (\text{Eq. 1.29})$$

Dans cette expression, p est une pression arbitraire liée à l'incompressibilité de la suspension et les coefficients μ_i ($i = 0:3$) dépendent de la géométrie des particules. Sur la base des travaux

de Jeffery [Jef22], Hinch et Leal [HL73] puis Lipscomb et al. [LDHB88] ont ainsi traduit l'état de contrainte au voisinage d'ellipsoïdes pour des suspensions orthotropes de révolution en utilisant la loi phénoménologique d'Ericksen à partir de laquelle ils ont traduit la contribution des particules au tenseur des contraintes de la suspension par l'expression suivante :

$$\langle \sigma^p \rangle = \phi \langle \sigma^{Eric} \rangle = \phi \oint \sigma^{Eric} \psi(\mathbf{x}, t, \mathbf{p}) d\mathbf{p} \quad (\text{Eq. 1.30})$$

Après intégration, cette dernière expression s'écrit en fonction des tenseurs d'orientation \mathbf{A} et \mathbf{A} suivant la relation:

$$\langle \sigma^{Eric} \rangle = -p_0 \boldsymbol{\delta} + 2\mu_0 \mathbf{D} + \mu_1 \left(\mathbf{A} - \frac{1}{3} \boldsymbol{\delta} \right) + \mu_2 \mathbf{A} : \mathbf{D} + 2\mu_3 (\mathbf{A} \cdot \mathbf{D} + \mathbf{D} \cdot \mathbf{A}) \quad (\text{Eq. 1.31})$$

Pour une suspension diluée de sphères, ce modèle permet de retrouver les résultats d'Einstein [Ein06] et de Jeffery [Jef22] prévoyant une contribution des particules au tenseur de contraintes de la suspension prenant la forme suivante :

$$\langle \sigma^p \rangle = 5\eta_f \phi \mathbf{D} \quad (\text{Eq. 1.32})$$

Le terme $\mu_1 \left(\mathbf{A} - \frac{1}{3} \boldsymbol{\delta} \right)$ est nul lorsque la diffusivité rotationnelle est négligeable. L'équation traduisant l'état de contraintes dans la suspension peut être réécrite sous la forme suivante :

$$\langle \sigma \rangle = -p \boldsymbol{\delta} + \eta_f \mathbf{D} + \boldsymbol{\tau}^p \quad \text{avec} \quad \boldsymbol{\tau}^p = \eta_f \phi (a \mathbf{D} + b \mathbf{A} : \mathbf{D} + c (\mathbf{A} \cdot \mathbf{D} + \mathbf{D} \cdot \mathbf{A})) \quad (\text{Eq. 1.33})$$

où a , b et c sont des facteurs liés à la géométrie des particules.

Hinch et Leal [HL72] ont déterminé les expressions des facteurs géométriques dans le cas de suspensions diluées de fibres ellipsoïdales à fort élanement :

$$a = 2 \quad b = \frac{\beta^2}{2(\ln(2\beta) - 1.5)} \quad c = \frac{6 \ln(2\beta) - 11}{\beta^2} \quad (\text{Eq. 1.34})$$

Lipscomb *et al.* ont quant à eux obtenu ces facteurs pour des suspensions diluées de cylindres élanés :

$$a = 2 \quad b = \frac{\beta^2}{2(\ln(2\beta))} \quad c = 0 \quad (\text{Eq. 1.35})$$

Dans le cas de suspensions semi-diluées de fibres cylindriques, Phan-Thien et Graham [PTG91] ont développé un modèle rhéologique basé sur les observations expérimentales de Milliken *et al.* [MGG+89] et Kitano *et al.* [KKS89]. Pour des particules élanées, les auteurs ont choisi de ne pas conserver les termes $a \mathbf{D}$ et $c (\mathbf{A} \cdot \mathbf{D} + \mathbf{D} \cdot \mathbf{A})$ qui sont considérés comme négligeables devant le terme $b \mathbf{A} : \mathbf{D}$. L'expression du terme b prend ainsi la forme suivante :

$$b = \frac{\phi \beta^2 (2 - \phi / \phi^{max})}{4(\ln(2\beta) - 3/2)(1 - \phi / \phi^{max})^2} \quad (\text{Eq. 1.36})$$

où le paramètre ϕ^{max} représente la fraction volumique maximale de fibres au sein de la suspension, pour $5 < \beta < 30$ et $\phi^{max} = 0.53 - 0.013\beta$.

Les expressions des termes a , b et c ont également été obtenues à partir de la théorie des corps élanés qui est utilisée pour obtenir des solutions approchées des écoulements de Stokes au

voisinage de particules élancées. Sur la base de cette théorie, Batchelor [Bat71] a proposé un modèle de suspension semi-diluée de fibres élancées et alignées dans la direction de l'écoulement élongationnel. Il a ainsi modélisé l'interaction hydrodynamique entre fibres par une approche de type « cell model » qui consiste à supposer que la perturbation du fluide due à la présence de la fibre décroît autour celle-ci jusqu'à une certaine longueur h qui est de l'ordre de l'espacement moyen entre fibres. Cette décroissance traduit la présence des fibres voisines qui écrantent la propagation des perturbations hydrodynamiques dues à la présence des fibres. Batchelor [Bat71] montre ainsi que $\mathbf{a} = \mathbf{c} = \mathbf{0}$ et que le terme \mathbf{b} s'exprime comme suit :

$$\mathbf{b}^{Bat} = \frac{\pi n l^3}{6 \ln(2\beta)} f(\epsilon) \text{ avec } f(\epsilon) = \frac{1 + 0.64\epsilon}{1 - 1.5\epsilon} + 1.659\epsilon^2 \text{ et } \epsilon = (\ln(2\beta))^{-1} \quad (\text{Eq. 1.37})$$

Pour des suspensions de fibres rigides, Shaqfeh et Fredrickson [SF90] ont développé des approches théoriques très sophistiquées qui permettent de prendre en compte les multiples interactions hydrodynamiques dues à la présence des fibres au sein des suspensions ce qui a permis de corriger les expressions précédentes du terme \mathbf{b} , qui prend pour une suspension de fibres alignées la forme suivante :

$$\mathbf{b} = \mathbf{b}^{Bat} + 8.583 \times 10^{-3} \frac{(\pi n l^3)^2}{\ln^3(2\beta)} \quad (\text{Eq. 1.38})$$

et pour une suspension isotrope :

$$\mathbf{b} = \mathbf{b}^{Bat} + 9.25 \times 10^{-3} \frac{(\pi n l^3)^2}{\ln^3(2\beta)} \quad (\text{Eq. 1.39})$$

À partir de la théorie de Batchelor, Dinh et Armstrong [DA84] ont développé un modèle pour décrire la contribution des fibres au tenseur des contraintes de suspensions semi-diluées. Le modèle décrit le mouvement des particules comme suivant les prédictions du modèle de Jeffery (voir ci-dessous) et pour des particules infiniment élancées le facteur \mathbf{b} , qui prend la forme suivante :

$$\mathbf{b} = \frac{\pi l^3 n^3}{12 \ln(2h/d)} \quad (\text{Eq. 1.40})$$

avec h la distance moyenne entre deux fibres qui est équivalente à $h = (nl^2)^{-1}$ pour une orientation aléatoire des fibres et $h = (nl)^{-1/2}$ pour des fibres alignées. La simplicité de ce modèle fait qu'il est l'un des plus utilisés pour décrire la contribution des fibres au tenseur des contraintes de suspensions fibreuses.

Pour des suspensions concentrées de type industriel dont la fraction volumique de fibres est comprise entre 0.005 et 0.5, l'élancement de fibres entre 10 à 100, le nombre de contacts par fibre est généralement supérieur à 2 [ODV+12, GODR12]. L'influence du nombre de contacts moyen par fibre sur les propriétés physiques et mécaniques des suspensions a été mise en évidence par de nombreux auteurs [OT94, TV96, VOF+8a, ODV+12]. Si pour des suspensions diluées à semi-diluées, la contribution $\langle \boldsymbol{\sigma}^p \rangle$ au tenseur des contraintes est dominée par les interactions hydrodynamiques dues à la présence des fibres, pour des suspensions concentrées, les interactions mécaniques entre fibres constituent la majeure partie de la contribution $\langle \boldsymbol{\sigma}^p \rangle$, ce qui montre les limitations des modèles rhéologiques cités précédemment pour traiter les cas de

problèmes d'écoulement de suspensions industrielles [MS96, PKC00]. Le modèle de contacts de Toll est fréquemment utilisé pour dénombrer les interactions fibre-fibre se produisant au sein des suspensions concentrées de fibres ou de mèches [GODR12, ODV+12]. Les interactions mécaniques entre fibres qui résultent de ces contacts ont été prises en compte dans les modèles de prédiction de la contrainte macroscopique $\boldsymbol{\sigma}$ dans quelques études [SK97, FPTZ98, SMT99, SLM99, DMT05, FAHC09, DLOF09]. Dans ces études, l'apport de la partie fibreuse $\boldsymbol{\sigma}^p$ au tenseur des contraintes se décompose généralement en une contribution hydrodynamique due aux interactions fibre-matrice $\boldsymbol{\sigma}^{p/f}$ et en une contribution due aux interactions mécaniques entre fibres $\boldsymbol{\sigma}^{p/p}$:

$$\boldsymbol{\sigma} = -p\boldsymbol{\delta} + 2\eta_f\mathbf{D} + \boldsymbol{\sigma}^{p/f} + \boldsymbol{\sigma}^{p/p} \quad (\text{Eq. 1.41})$$

Pour des suspensions de fibres droites élancées, ces deux contributions peuvent s'écrire sous les formes suivantes :

$$\boldsymbol{\sigma}^{p/f} \approx \frac{1}{V} \sum_{\mathcal{F}} \int_{I_\alpha} s_\alpha \mathbf{p}^\alpha \otimes \mathbf{f}^{\alpha/f} ds_b \quad (\text{Eq. 1.42})$$

$$\boldsymbol{\sigma}^p \approx \frac{1}{V} \sum_{\mathcal{C}} \mathbf{G}^\alpha \mathbf{G}^o \otimes \mathbf{f}^{\alpha/o} = \bar{z} \frac{1}{N_c} \sum_{\mathcal{C}} \mathbf{G}^\alpha \mathbf{G}^o \otimes \mathbf{f}^{\alpha/o} \quad (\text{Eq. 1.43})$$

avec \mathcal{C} l'ensemble des N_c contacts entre fibres dans le volume élémentaire V de la suspension considéré, I_α l'interface entre le fluide suspensif et la fibre α dont le vecteur tangent est noté \mathbf{p}^α , son centre de masse \mathbf{G}^α et son abscisse curviligne s_α . Les termes $\mathbf{f}^{\alpha/f}$ et $\mathbf{f}^{\alpha/o}$ représentent respectivement la force hydrodynamique par unité de longueur entre la fibre α et le fluide le long de l'abscisse curviligne s_α et la force de contact entre la fibre α et la fibre o .

1.3.3 Suspensions à matrice non-newtonienne

À notre connaissance, peu de modèles de la littérature prennent en compte le comportement non-linéaire de la matrice polymère. À partir de l'approche de Batchelor [Bat71] (« cell model » cité plus haut) sur des particules alignées dans une matrice newtonienne, les premiers travaux concernant ces suspensions ont été initiés par Goddard [God78] pour un fluide rhéofluidifiant en loi puissance. À la suite des travaux de Batchelor et Goddard, Souloumiac et Vincent [SV98] ont utilisé une méthode de type « cell model » pour décrire la contribution des fibres au tenseur des contraintes d'une suspension de fibres dans un fluide en loi puissance. La Figure 1.2 donne un schéma représentant l'approche mise en œuvre par ces auteurs. La fibre cylindrique de rayon R est comprise dans une cellule de rayon h . La vitesse relative \mathbf{V}_r du fluide par rapport à la fibre est supposée non perturbée par la présence de la fibre à partir de la distance $z = h$. Le gradient de vitesse du fluide $\nabla \mathbf{u}$ est supposé constant le long de la fibre (s étant une coordonnée curviligne prise le long de l'axe principal de la fibre avec pour origine son centre).

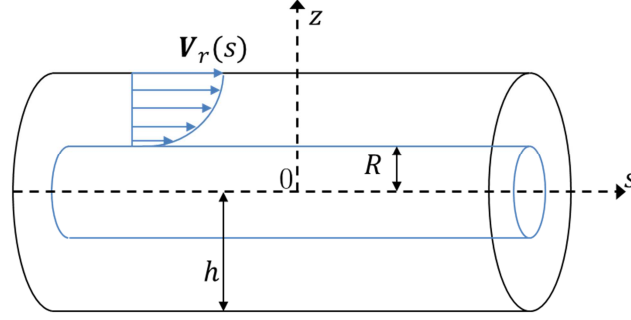


Figure 1.2 Géométrie de la cellule entourant la fibre. Reproduit d'après Souloumiac et Vincent [SV98].

Le modèle de Souloumiac et Vincent repose sur l'hypothèse que les interactions hydrodynamiques entre fibres sont faibles. Le tenseur des contraintes s'écrit alors sous la forme suivante :

$$\boldsymbol{\sigma} = -p\boldsymbol{\delta} + K|\dot{\gamma}|^{n-1}\mathbf{D} + \frac{2K\phi\beta^{n+1}}{n+2} \left(\frac{1-n}{n[1-(R/h)^{(1-n)/n}]} \right)^n \times \dots \quad (\text{Eq. 1.44})$$

$$\int_{\mathbf{p}} \psi(\mathbf{p}, t) |\nabla \mathbf{u} : \mathbf{p} \otimes \mathbf{p}|^{n-1} (\nabla \mathbf{u} : \mathbf{p} \otimes \mathbf{p}) \mathbf{p} \otimes \mathbf{p} d\mathbf{p}$$

où n est la sensibilité à la vitesse de déformation de la matrice et K sa consistance. Si n tend vers 1, l'équation se réduit à l'expression de Dinh et Armstrong (Eq. 1.40). Ce résultat est d'autre part en accord avec les travaux de Goddard qui trouve également que la contrainte est proportionnelle à β^{n+1} .

Quelques travaux [A-KGrm94a, Aza96, RAKG97, RAKG01] concernant la modélisation des propriétés rhéologiques des suspensions dans des matrices viscoélastiques ont montré que dans ce cas le tenseur des contraintes se décompose selon :

$$\boldsymbol{\sigma} = \boldsymbol{\sigma}^f + \boldsymbol{\sigma}^p = \boldsymbol{\sigma}^{sol} + \boldsymbol{\tau}^p + \boldsymbol{\tau}^f \quad (\text{Eq. 1.45})$$

Dans cette expression, la contribution du fluide au tenseur des contraintes de la suspension est vue comme la somme des apports dus au solvant $\boldsymbol{\sigma}^{sol} = -\langle p \rangle \boldsymbol{\delta} + 2\eta_s \mathbf{D}$ et au polymère $\boldsymbol{\tau}^p$. La contribution $\boldsymbol{\tau}^p$ est liée à la loi constitutive du fluide considéré (voir Section 1.3.1). L'expression de $\boldsymbol{\tau}^f$ reprend la forme présentée dans l'Eq. 1.28 seule la viscosité du mélange (solvant + polymère) est exprimée comme la somme $\eta_f = \eta_s + \eta_p$ afin de prendre en compte la contribution non-newtonienne du fluide au tenseur des contraintes.

1.3.4 Remarques sur les techniques de caractérisation rhéologique

La caractérisation expérimentale des propriétés rhéologiques des composites à fibres courtes [DOLF03, Cou05, Pic11, MPD+15] induit divers problèmes spécifiques. Certaines précautions doivent être prises en compte afin d'obtenir des données rhéologiques fiables. Le premier critère concerne la séparation d'échelle entre la taille caractéristique des hétérogénéités l_h de la suspension et des dimensions de l'appareil de mesure avec un paramètre de séparation d'échelle ϵ qui doit être suffisamment petit de sorte que [Aur91] :

$$\epsilon = \frac{l_h}{l_m} \ll 1 \quad (\text{Eq. 1.46})$$

où l_m est lié à la géométrie l'appareil de mesure. Classiquement, pour des expériences de caractérisation utilisant des rhéomètres cône-plan ou plan-plan, l_m est choisie comme étant la taille de l'entrefer. Pour des suspensions homogènes, l_h est de l'ordre de la longueur des fibres. Cependant pour des suspensions très concentrées, les fibres sont inévitablement réparties de manière non homogène et les hétérogénéités sont de l'ordre de la taille des agrégats. De plus, au cours de la mesure les contacts entre fibres peuvent également modifier la structure de la suspension. La valeur l_h est donc largement dépendante de la forme des fibres et de leur agencement au sein de la suspension, mais aussi du type de chargement mécanique appliqué. Dumont *et al.* [DOLF03] ont mis en évidence l'importance de cette séparation d'échelle sur des SMC standards soumis à des essais de compression simple, de compression en déformation plane et de cisaillement. En outre, ils ont montré que les dimensions de l'échantillon doivent être adaptées à la taille des fibres pour obtenir des déformations macroscopiques homogènes des échantillons testés. Généralement, les rhéomètres usuels ne sont pas adaptés (entrefer trop petit, glissement à la paroi) pour obtenir une bonne caractérisation des propriétés rhéologiques des composites industriels à fibres courtes, c'est pourquoi des rhéomètres ont été spécialement développés pour étudier la réponse rhéologique de ces matériaux [LWH97, KG98, LW99, SLM02, GDO+10, GODR12].

1.4 Cinématique des suspensions fibreuses

1.4.1 Cinématique d'une particule isolée

1.4.1.1 Particules ellipsoïdales

Jeffery [Jef22] a été le premier à décrire la cinématique de particules rigides ellipsoïdales en suspension dans un domaine infini formé d'un fluide newtonien homogène et incompressible en écoulement permanent. Jeffery a supposé que pour l'écoulement du fluide à faible nombre de Reynolds les effets inertiels peuvent être négligés et que pour la particule les forces volumiques pouvaient l'être également. Il a également relié la cinématique du mouvement du centre de masse de la particule avec l'écoulement du fluide. Jeffery considère par ailleurs que le contact entre la particule et le fluide est collant. En d'autres termes, le centre de masse de la particule se déplace avec la même vitesse qu'une particule de fluide à laquelle elle se substituerait. Le calcul de la perturbation de la vitesse du fluide induit par la particule revient à résoudre un problème d'écoulement de Stokes. Jeffery a montré que la résultante des forces s'appliquant sur la particule est nulle. L'inertie de la particule étant également négligé, le moment appliqué à la particule résultant est également nul. Jeffery a ainsi obtenu la vitesse de rotation de la particule qui se définit en fonction de la vitesse non perturbée du fluide ainsi que les paramètres a, b, c qui sont respectivement les dimensions du grand axe et des axes transversaux de l'ellipsoïde. Il a ainsi obtenu les expressions suivantes pour les composantes du vecteur rotation $\boldsymbol{\omega}$ de la particule :

$$\omega_1 = \frac{1}{2}((1 + B_1)(\Omega_{32} + D_{23}) + (1 - B_1)(\Omega_{32} + D_{23})) \quad (\text{Eq. 1.47})$$

$$\omega_2 = \frac{1}{2}((1 + B_2)(\Omega_{13} + D_{31}) + (1 - B_2)(\Omega_{13} + D_{13}))$$

$$\omega_3 = \frac{1}{2}((1 + B_3)(\Omega_{21} + D_{12}) + (1 - B_3)(\Omega_{21} + D_{12}))$$

où

$$B_1 = \frac{b^2 - c^2}{b^2 + c^2} \quad B_2 = \frac{c^2 - a^2}{c^2 + a^2} \quad B_3 = \frac{a^2 - b^2}{a^2 + b^2} \quad (\text{Eq. 1.48})$$

sont des paramètres de forme de la particule. Les termes Ω_{ij} et D_{ij} sont respectivement les composantes des tenseurs de vitesse de rotation et de vitesse de déformation du fluide qui s'écrivent à partir du champ de vitesse du fluide non perturbé \mathbf{v} :

$$\Omega_{ij} = \frac{1}{2} \left(\frac{\partial v_i}{\partial x_j} - \frac{\partial v_j}{\partial x_i} \right) \quad D_{ij} = \frac{1}{2} \left(\frac{\partial v_i}{\partial x_j} + \frac{\partial v_j}{\partial x_i} \right) \quad (\text{Eq. 1.49})$$

Dans le cas particulier d'ellipsoïdes de révolution ($b = c$), un seul paramètre de forme est nécessaire :

$$\lambda = \frac{\beta^2 - 1}{\beta^2 + 1} \quad (\text{Eq. 1.50})$$

Ce facteur est nul pour des particules sphériques ($a = b$), positif pour des particules élancées ($a > b$) et négatif pour des particules aux formes aplaties de type disque ($a < b$). Sous une forme compacte, selon Jeffery, la rotation d'un ellipsoïde de révolution peut être décrite le taux du vecteur unitaire \mathbf{p} porté par le grand axe de l'ellipsoïde :

$$\dot{\mathbf{p}} = \boldsymbol{\omega} \cdot \mathbf{p} = \boldsymbol{\Omega} \cdot \mathbf{p} + \lambda(\mathbf{D} \cdot \mathbf{p} - (\mathbf{p} \cdot \mathbf{D} \cdot \mathbf{p})\mathbf{p}) \quad (\text{Eq. 1.51})$$

Expérimentalement, la validité du modèle de Jeffery a été démontrée pour décrire le mouvement de particules ellipsoïdales en suspension diluée dans des fluides newtoniens. Taylor [Tay23] a été le premier à vérifier que la rotation de particules d'aluminium aplaties et élancées en suspension dans du sodium de silicate soumis à un écoulement de Couette suivait les prédictions du modèle de Jeffery. Pour des valeurs d'élancement comprises entre 5.1 et 32.1 et trois vitesses de cisaillement différentes, Binder en 1939 [Bin39] a également constaté la validité du modèle de Jeffery pour un écoulement de Couette. Dans ces expériences, les fibres utilisées étaient des cheveux immergés dans de la glycérine. En 1951, Trevelyan et Mason ont observé au microscope la cinétique d'une bille de verre dans du sirop de maïs dans un écoulement de cisaillement au sein d'un rhéomètre de Couette spécialement conçu [TM51]. Leurs observations sont en excellent accord avec les prédictions de Jeffery, la vitesse de rotation de la particule sphérique étant proportionnelle au taux de cisaillement et indépendant de la taille de la particule.

1.4.1.2 Particules de géométrie quelconque

Suite aux travaux de Jeffery, Bretherton [Bre62] a démontré à partir des équations de Stokes que la vitesse de rotation $\boldsymbol{\omega}$ d'une particule rigide à géométrie quelconque au sein d'un écoulement homogène et permanent s'écrit :

$$\omega_i = \Omega_i + \frac{1}{2} B_{ijk} D_{jk} \quad (\text{Eq. 1.52})$$

où $\mathbf{\Omega}$ est le vecteur taux de rotation du fluide et \mathbf{B} un tenseur d'ordre trois symétrique selon les directions j et k et dépendantes uniquement de la géométrie de la particule. Les composantes de \mathbf{B} peuvent se simplifier en fonction des propriétés de symétrie de la particule considérée. Pour des particules axisymétriques quelconques le tenseur \mathbf{B} se réduit ainsi à trois composantes indépendantes. À l'exception de particules axisymétriques très longues, Bretherton a démontré la validité de l'équation de Jeffery pour toutes particules axisymétriques à condition d'utiliser une valeur corrigée du facteur de forme λ de la particule. Ainsi, l'élanement β est corrigé par un élanement effectif β_e , la période de rotation d'une particule axisymétrique étant liée à l'élanement effectif par la relation suivante :

$$t_r = \frac{2\pi}{\dot{\gamma}} (\beta_e + \beta_e^{-1}) \quad (\text{Eq. 1.53})$$

Les valeurs de l'élanement effectif β_e ont été estimées théoriquement et de manière empirique pour des particules de diverses formes. Trevelyan et Mason [TM51] ont observé les orbites de sphéroïdes et de cylindres immergés dans un fluide newtonien et soumis à un écoulement de cisaillement. Les orbites ont été comparées aux prédictions du modèle de Jeffery afin d'estimer expérimentalement β_e en fonction de β . Anczurowski et Mason [AM67, AM68], Goldsmith et Mason [GM61] ont suivi la même démarche pour des particules de forme cylindrique et des disques. Burger [Bur38] et Cox [Cox71] ont réalisé ce type de travaux pour des particules cylindriques.

Par la suite, Brenner [Bre74] a lui démontré que seuls cinq scalaires sans dimension suffisent à décrire les propriétés rhéologiques de suspensions diluées de particules axisymétriques et rigides soumises à un écoulement de cisaillement homogène. Ces cinq scalaires sont uniquement dépendants de la forme de la particule. Il présente notamment les expressions de ces coefficients pour des sphéroïdes élanés et des particules cylindriques en différenciant les particules à extrémités plates ou pointues. Ainsi l'expression du facteur de forme λ_b pour une particule cylindrique à extrémités plates s'exprime de la manière suivante :

$$\lambda_b = 1 - \frac{3L \ln \beta}{4\pi\beta^2} \quad (\text{Eq. 1.54})$$

où L est une constante numérique. Cette constante a été estimée par Cox [Cox71] ($L = 5.45$) à partir de l'équation suivante et d'une série de mesures expérimentales menées par Anczurowski et Mason [AM68] afin de déterminer l'élanement effectif β_e de ce type de particule :

$$\frac{\beta_e}{\beta} = \left(\frac{8\pi}{3L}\right)^{1/2} \frac{1}{(\ln \beta)^{1/2}} \quad (\text{Eq. 1.55})$$

Plus récemment, Petrich et al. [PKC00] ont mesuré l'orientation de filaments de verre et carbone colorés au sein d'un fluide iso-réfractif. La cinétique de la fibre a été suivie grâce à des caméras alignées selon le gradient de vitesse et l'axe de vorticit  sur un rh om tre de Couette.   partir du mouvement p riodique de ces derni res, l' lanement effectif a  t  d termin  gr ce   l'Eq. 1.53. Les r sultats sont en accord avec les pr c dentes observations exp rimentales [AM68, TM51].

1.4.1.3 Approche simplifiée (les particules vues comme des haltères)

Les modèles les plus simples développés pour décrire la mécanique et la cinématique de molécules de polymère sont basés sur l'approche des haltères introduite par Bird *et al.* [BAH87]. Afin de décrire une macromolécule de polymère rigide de la forme d'une tige, Bird *et al.* ont modélisé cette macromolécule sous la forme d'un haltère où les masses, simplement représentées par un point matériel, sont reliées par une tige sans masse et rigide comme schématisé sur la Figure 1.3. Binétruy *et al.* [BCK15] ont par extension utilisé le modèle pour décrire la cinétique de fibre au sein d'une matrice newtonienne incompressible où l'écoulement permanent à faible nombre de Reynolds permet de négliger les effets inertiels et les forces volumiques sur la particule. Ainsi seules les forces hydrodynamiques s'appliquent sur les masses de l'haltère. Ces dernières sont supposées isotropes et dépendantes de la vitesse relative respective entre les masses de l'haltère et le fluide environnant. Les interactions hydrodynamiques dues à la présence de l'haltère sont supposées négligeables. Ainsi considérant une fibre seule, les forces hydrodynamiques s'exerçant respectivement sur la masse inférieure et supérieure de l'haltère s'expriment sous la forme suivante :

$$\begin{aligned} \mathbf{f}^{H^-} \left(-\frac{l}{2} \mathbf{p} \right) &= \xi \left(\mathbf{v}(G) - \frac{l}{2} \nabla \mathbf{v} \cdot \mathbf{p} - \mathbf{v}(G) + \frac{l}{2} \dot{\mathbf{p}} \right) \\ \mathbf{f}^{H^+} \left(\frac{l}{2} \mathbf{p} \right) &= \xi \left(\mathbf{v}(G) + \frac{l}{2} \nabla \mathbf{v} \cdot \mathbf{p} - \mathbf{v}(G) - \frac{l}{2} \dot{\mathbf{p}} \right) \end{aligned} \quad (\text{Eq. 1.56})$$

avec ξ le coefficient de friction, $\mathbf{v}(G)$ la vitesse de l'haltère en son centre de gravité et \mathbf{V} la vitesse du fluide. Malgré la simplicité du modèle, la résolution de l'équilibre des forces et des moments s'exerçant sur l'haltère converge vers la modélisation de la cinétique de Jeffery pour une particule infiniment élancée ($\lambda = 1$).

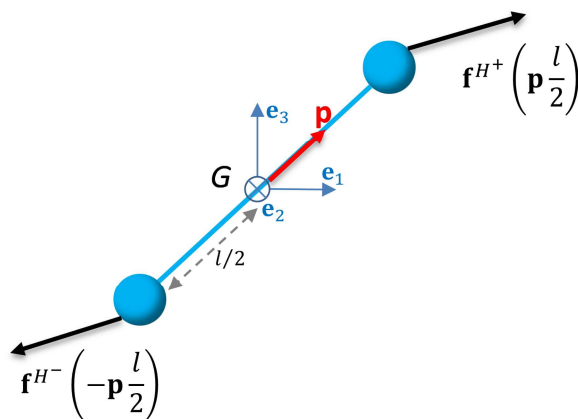


Figure 1.3 Schématisation de l'approche des haltères pour modéliser une fibre immergée dans un fluide infini, d'après Binétruy *et al.* [BCK15].

1.4.1.4 Confinement de l'écoulement

Comme présenté plus haut, le modèle de Jeffery est valable uniquement lorsque l'écoulement est infini. Cette hypothèse n'est bien évidemment plus respectée pour les procédés de mise en forme de composites renforcés par des fibres courtes. Dans ces procédés, l'écoulement est dit confiné, signifiant que la taille de fibres est du même ordre de grandeur qu'une des dimensions de l'écoulement [SS97, Dia09, SGB12].

À notre connaissance, seuls quelques auteurs ont étudié expérimentalement l'influence de la proximité fibre-paroi sur la cinématique des fibres. Russel [RH77] a étudié la cinématique de particules axisymétriques en sédimentation dans un fluide visqueux suivant l'angle entre les fibres et la paroi. Russel a observé une influence de la paroi sur la cinématique des fibres pour des rapports $d = z/l < 2$ avec l la longueur de la fibre et z la distance entre la paroi et le centre de la fibre. Il a montré qualitativement que les résultats de ses observations sont correctement prédits par la théorie des corps élancés. Cependant, la cinématique de certaines approches fibre-paroi dévie largement des prédictions théoriques. Stover *et al.* [SC90] ont observé la période de rotation de particule axisymétrique pour diverses distances d soumis à un écoulement de Poiseuille (écoulement dans la direction \mathbf{e}_1 et parois dans le plan $\mathbf{e}_1, \mathbf{e}_2$). Quand $d < 2$ la période de rotation de la particule augmente. Lorsque $d < 1$ et que la fibre est placée perpendiculairement à la paroi de normale \mathbf{e}_3 , une interaction non hydrodynamique déplace la particule autour de $d \approx 1$ (régime transitoire) puis une rotation périodique de la fibre se produit comme décrit sur la Figure 1.4.

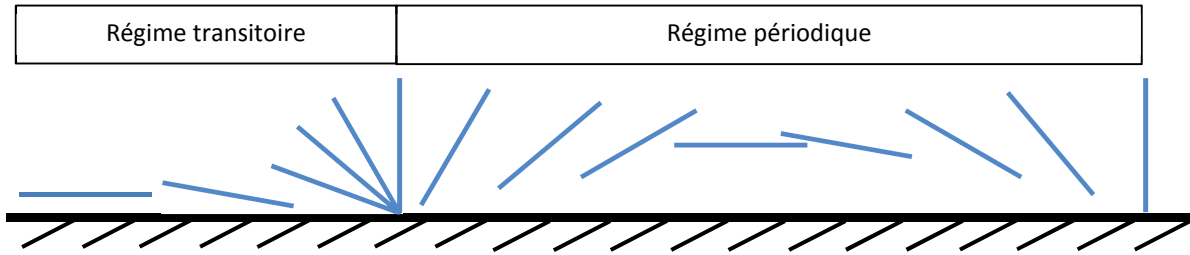


Figure 1.4 Représentation schématique de la cinématique d'une fibre en interaction avec une paroi. Reproduit d'après Stover *et al.* [SC90].

Qualitativement, ce phénomène est également observé dans un écoulement cisailant par Holm [Hol07]. L'augmentation de l'élancement ou de la concentration en fibres tendent cependant à diminuer l'ampleur de cette interaction. Stover *et al.* ont également montré que quelle que soit la distance particule-paroi, l'évolution de l'orientation d'une particule au sein d'un écoulement cisailant est en accord avec les prédictions du modèle de Jeffery lorsque celui-ci intègre un élancement effectif calculé à partir des mesures de périodes de rotation des particules. Par la suite, Moses *et al.* [MAR01] ont eux aussi vérifié la validité du modèle de Jeffery pour des distances $d = z/l > 1$ dans un écoulement cisailant (écoulement dans la direction \mathbf{e}_1 et parois dans le plan $\mathbf{e}_1, \mathbf{e}_2$). Leurs observations montrent également qu'une fibre initialement orientée dans la direction de l'écoulement \mathbf{e}_1 et proche de la paroi ($d < 1/2$) subit un effet stabilisant causé par la paroi et cesse de tourner.

Seuls quelques auteurs [OS14, PSAC+16] ont modélisé l'influence de la proximité fibre-paroi(s) en proposant des modifications de l'équation de Jeffery. Utilisant l'approche des haltères et considérant le cas d'un contact symétrique d'une fibre avec les parois sous un écoulement de cisaillement simple comme représenté sur la Figure 1.5, Perez *et al.* [PSAC+16] introduisent une force de contact supposée perpendiculaire à la paroi qui prend la forme suivante :

$$\mathbf{f}^{c-} \left(-\frac{l}{2} p_1, -\frac{l}{2} p_2, 0 \right) = k \mathbf{e}_3 \quad (\text{Eq. 1.57})$$

où k est l'intensité de la force de contact qui est ensuite déterminée afin de prévenir de l'interpénétration de la fibre avec les parois. Notons également que $\mathbf{f}^{c+}(l/2 p_1, l/2 p_2, h) =$

$-\mathbf{f}^{C^-}(-l/2 \mathbf{p}_1, -l/2 \mathbf{p}_2, 0)$. La résolution de l'équilibre des forces et des moments s'appliquant sur l'haltère mène au système d'équations suivant décrivant la cinématique de la fibre :

$$\begin{cases} \dot{\mathbf{p}} = \dot{\mathbf{p}}^J & \mathbf{v}(G) = \mathbf{V}(G) & \text{if } lp_3 < h \\ \dot{\mathbf{p}} = \dot{\mathbf{p}}^J & \mathbf{v}(G) = \mathbf{V}(G) & \text{if } lp_3 = h \text{ et } \dot{\mathbf{p}}^J \cdot \mathbf{n} \leq 0 \\ \dot{\mathbf{p}} = \dot{\mathbf{p}}^J + \dot{\mathbf{p}}^C & \mathbf{v}(G) = \mathbf{V}(G) & \text{if } lp_3 = h \text{ et } \dot{\mathbf{p}}^J \cdot \mathbf{n} > 0 \end{cases} \quad (\text{Eq. 1.58})$$

où \mathbf{n} est la normale à la paroi et $\dot{\mathbf{p}}^C$ est la composante de la vitesse de rotation de la fibre liée au contact empêchant l'interpénétration :

$$\dot{\mathbf{p}}^C = \frac{\dot{p}_z^J}{p_z^2 - 1} (\mathbf{n} - p_z \mathbf{p}) \quad (\text{Eq. 1.59})$$

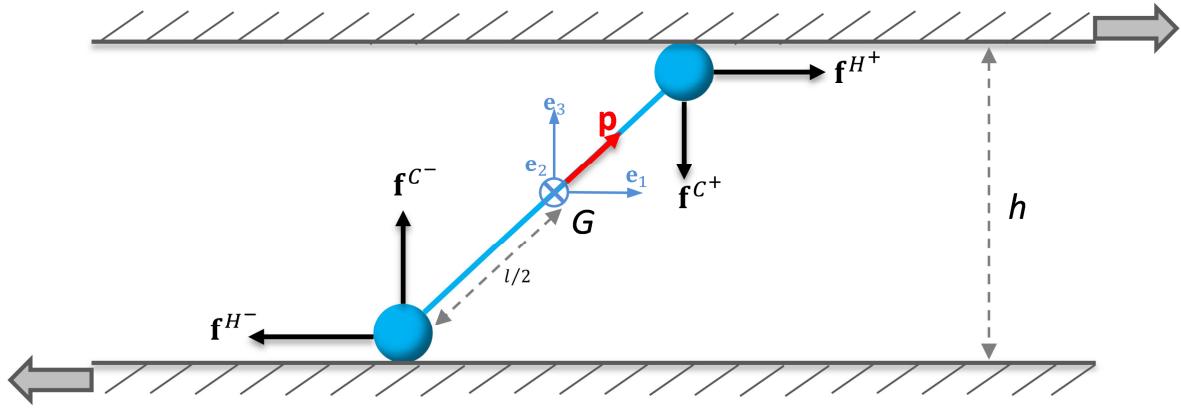


Figure 1.5 Schématisation des forces hydrodynamiques et de contacts agissant sur une fibre modélisée par l'approche des haltères dans un écoulement de cisaillement simple, d'après Perez *et al.* [PSAC+16].

1.4.2 Loi d'évolution d'une population de fibres

1.4.2.1 Modèles d'interaction hydrodynamique entre particules

Pour décrire l'évolution de la structure d'une suspension, une approche possible consiste à résoudre l'équation d'évolution de la fonction de distribution d'orientation ψ . Cette équation s'écrit [FT84] :

$$\frac{D\psi}{Dt} = -\frac{\partial}{\partial p} (\psi \dot{\mathbf{p}}) \quad (\text{Eq. 1.60})$$

et dépend d'un terme qui traduit le taux de rotation $\dot{\mathbf{p}}$ des particules en suspension.

Dans le cas de suspensions diluées de fibres, le terme $\dot{\mathbf{p}}$ de l'Eq. 1.53 est donné par le modèle de Jeffery décrit précédemment.

Lorsque la concentration en fibres augmente, le champ de vitesse du fluide se trouve perturbé par la présence du réseau fibreux. Ainsi des interactions hydrodynamiques entre fibres voisines apparaissent, leurs trajectoires dévient de celles prédites par le modèle de Jeffery [RKIC93, SKC92, SK90, RKC95]. Pour prendre en compte ces interactions, un terme de diffusion isotrope est ajouté à l'équation d'évolution en temps du vecteur tangent \mathbf{p} du modèle de Jeffery :

$$\dot{\mathbf{p}} = \dot{\mathbf{p}}^{Jeffery} + \dot{\mathbf{p}}^{Diffusion} \quad (\text{Eq. 1.61})$$

avec le terme $\dot{\mathbf{p}}^{Diffusion}$ qui s'écrit d'après Folgar et Tucker comme suit :

$$\dot{\mathbf{p}}^{Diffusion} = -\frac{D_r}{\psi} \frac{\partial}{\partial \mathbf{p}}(\psi) \quad (\text{Eq. 1.62})$$

Le coefficient d'interaction D_r a tout d'abord été formulé sous la forme d'un scalaire :

$$D_r = C_I |\dot{\gamma}| \quad (\text{Eq. 1.63})$$

avec $|\dot{\gamma}|$ la vitesse de déformation effective ($\dot{\gamma} = (2\mathbf{D}:\mathbf{D})^{1/2}$) et C_I une constante empirique. Dans ce modèle, les interactions sont à l'origine des réorientations de fibres qui sont indépendantes, isotropes et aléatoires au sein de la suspension. Cette approche mime les phénomènes de diffusion brownienne et moléculaire se produisant dans les polymères en solution.

Pour des suspensions concentrées de fibres, ces auteurs ont supposé que les interactions apparaissent lorsque le centre d'une fibre se trouvait à une distance inférieure ou égale à l (longueur d'une fibre) d'une fibre voisine. La fréquence d'interaction entre fibres est alors proportionnelle à la vitesse de déformation $\dot{\gamma}$. L'expression de C_I a été déterminée expérimentalement au moyen de suspensions d'huile de silicone chargées de fibres de nylon en écoulement de Couette. Ils ont ainsi pu conclure alors que le coefficient C_I est fonction de la fraction volumique de fibres ainsi que de leur facteur de forme. Leur modèle permet de retrouver le caractère irréversible de la réponse rhéologique des suspensions concentrées lors d'essais cycliques. Son défaut est cependant de prédire un degré d'alignement des fibres en régime transitoire supérieur aux données expérimentales.

Par la suite, Bay [Bay91] a proposé une expression empirique de C_I basée sur des mesures expérimentales de l'orientation de particules de type plaques et disques dans une matrice thermoplastique injectée. Ce coefficient dépend de la concentration ϕ et de l'élanement de ces dernières β :

$$C_I = 0.0184 \exp(-0.7148 \phi \beta) \quad (\text{Eq. 1.64})$$

Phan-Thien et al. [PTFTZ02] ont identifié une expression pour C_I à partir de simulations numériques reproduisant l'écoulement de suspensions fibreuses sous l'effet d'un cisaillement simple pour une large gamme de concentration et facteur de forme de fibres :

$$C_I = 0.03 (1 - \exp(-0.224 \phi \beta)) \quad (\text{Eq. 1.65})$$

À partir de la théorie des corps élancés, Shaqfeh et Koch [SK90] ont analysé les interactions entre particules d'une suspension dans des situations d'écoulement uni-axial et bi-axial. Pour des écoulements extensionnels, sans interactions hydrodynamiques et sans interactions de type contact fibre-fibre, les fibres s'alignent dans la direction de l'écoulement ($\theta = 0, A_{33} = 1$ et $A_{11} = A_{22} = 0$). En régime dilué, Shaqfeh and Koch ont calculé la perturbation du champ de vitesse du fluide produite par une fibre et la rotation d'une seconde fibre dans ce champ perturbé. Leur développement théorique mène alors à la conclusion que la dispersion d'orientation du tenseur d'ordre deux peut être formulée comme le produit de nl^3 qui est la probabilité qu'une fibre subisse une interaction hydrodynamique engendrée par une fibre

voisine et $1/\ln^2\beta$ la dispersion de la vitesse de rotation produite par l'interaction des fibres élançées. Ils ont par la suite confronté leur théorie à des mesures expérimentales [RKIC93] de dispersions sur des suspensions newtoniennes avec $nl^3 = 5 - 17$ et ont observé une très bonne corrélation entre leurs résultats expérimentaux et théoriques. Ces expériences ne leur ont malheureusement pas permis d'augmenter la concentration en fibres jusqu'au régime semi-dilué où de nombreuses fibres interagissent entre elles de manière hydrodynamique. Leur théorie prévoit cependant que la dispersion d'orientation est alors proportionnelle à $\ln(nl^3)/nl^3$ dans ce régime. En utilisant la même méthode, Rahnama, Koch et Shaqfeh [RKIC93] ont étudié l'interaction hydrodynamique entre fibres dans des suspensions diluées à semi-diluées soumises à un écoulement de cisaillement. Ils ont ainsi l'expression de $\dot{\mathbf{p}}^{Diffusion}$ suivante :

$$\dot{\mathbf{p}}^{Diffusion} = \dot{\mathbf{p}}^h + D^h \frac{\partial}{\partial \mathbf{p}}(\psi) \quad (\text{Eq. 1.66})$$

où $\dot{\mathbf{p}}^h$ est une dispersion de vitesse et D^h une dispersion hydrodynamique qui s'apparente à D_r . En régime dilué, ces termes sont proportionnels à $\dot{\gamma}nl^3/\beta \ln^2\beta$ avec l la demi-longueur de la fibre. En régime semi-dilué, les prédictions d'orientations du modèles sont en accord avec les observations expérimentales effectuées par Stover *et al.* [SKC92]. Koch [Koc95] suggère un modèle d'interaction hydrodynamique pour des écoulements cisailants où l'expression du terme \mathbf{C}_I s'écrit sous forme tensorielle :

$$\mathbf{C}_I = \frac{nl^3}{|\dot{\gamma}|^2 \ln^2\beta} [\lambda_1(\mathbf{D}:\mathbf{A}:\mathbf{D})\boldsymbol{\delta} + \lambda_2(\mathbf{D}:\mathbf{A}_6:\mathbf{D})] \quad (\text{Eq. 1.67})$$

Dans cette expression, les constantes λ_1 et λ_2 sont déterminées à partir du développement théorique de la dispersion d'orientation pour un écoulement élongationnel et \mathbf{A}_6 est le tenseur d'orientation d'ordre six. Pour des concentrations modérées, $nl^3 = 10 - 40$, les prédictions du modèle sont raisonnablement en accord avec les observations expérimentales [SKC92]. Lorsque la concentration en fibres atteint $nl^3 > 40$, les nombreuses interactions entre fibres tendent à se compenser et la dispersion d'orientation diminue [RKC95, RKS95]. Le modèle étant basé sur le développement théorique des interactions hydrodynamiques se produisant seulement entre deux fibres, celui-ci mène à une surestimation de la dispersion d'orientation des fibres dans ce régime élevé de concentration. Par ailleurs, pour des concentrations $nl^2d > 3$, les fibres ne peuvent tourner sans que des contacts mécaniques entre fibres apparaissent, la dispersion d'orientation ne peut donc être entièrement modélisée par une approche purement hydrodynamique.

Au vu de la difficulté des modèles précédents à décrire la dispersion d'orientation de suspension de fibres longues, Phelps *et al.* [PT09] ont proposé un modèle de diffusion d'orientation pour des suspensions de fibres courtes et longues capable de prendre en compte l'anisotropie des interactions entre fibres. En prenant en compte les défauts de certains modèles [PTFTZ02, Koc95], Phelps *et al.* mettent en lumière quelques principes fondamentaux que les modèles de dispersion doivent respecter. Pour une distribution d'orientation isotrope, la dispersion d'orientation doit être nulle et la dispersion d'orientation ne peut translater ou changer la taille d'une fibre. Ils développent ainsi un modèle où la dispersion d'orientation $\dot{\mathbf{p}}^{Diffusion}$ est un tenseur d'ordre 2 défini sur la surface d'orientation unitaire 2D \mathbf{s} représentant l'ensemble des possibilités d'orientations. Dans leur étude, $\dot{\mathbf{p}}^{Diffusion}$ s'écrit sous la forme suivante :

$$\dot{\mathbf{p}}^{Diffusion} = -\dot{\gamma}\mathbf{D}^r\nabla_{\mathbf{s}}\psi \quad (\text{Eq. 1.68})$$

où le coefficient d'interaction \mathbf{D}^r est défini comme la projection de \mathbf{C}_I défini dans l'espace cartésien dans l'espace 2D de la surface d'orientation :

$$\mathbf{D}^r = \mathbf{T}^t \mathbf{C}_I \mathbf{T} \quad (\text{Eq. 1.69})$$

avec \mathbf{T} la matrice de passage des coordonnées cartésiennes vers les coordonnées de la surface d'orientation \mathbf{s} . Les principes fondamentaux présentés précédemment sont ainsi respectés quelle que soit la forme de \mathbf{C}_I choisie. En combinant ces équations avec un modèle de diffusion phénoménologique où \mathbf{C}_I prend la forme $\mathbf{C}_I = \mathbf{C}_I(\mathbf{A}, \mathbf{D})$, Phelps *et al.* ont montré que par rapport au modèle de Koch, leur modèle offrait une amélioration des prédictions d'orientation de fibres pour des composites renforcés par des fibres longues mis en forme par injection.

Enfin, pour estimer l'évolution de l'orientation globale des particules au sein d'une suspension diluée, une méthode moins coûteuse en temps de calcul que la résolution de l'Eq. 1.60(Eq. 1.60) revient à résoudre une équation d'évolution du tenseur d'orientation d'ordre deux \mathbf{A} :

$$\dot{\mathbf{A}} = \boldsymbol{\Omega} \cdot \mathbf{A} - \mathbf{A} \cdot \boldsymbol{\Omega} + \lambda(\mathbf{A} \cdot \mathbf{D} + \mathbf{D} \cdot \mathbf{A} - 2\mathbf{A}:\mathbf{D}) \quad (\text{Eq. 1.70})$$

L'équation précédente peut également s'écrire sous la forme suivante dans le cas de suspensions semi-diluées :

$$\dot{\mathbf{A}} = \dot{\mathbf{A}}^{Jeffery} + \dot{\mathbf{A}}^{Diffusion} \quad (\text{Eq. 1.71})$$

avec pour un coefficient de diffusion isotrope:

$$\dot{\mathbf{A}}^{Diffusion} = 2C_I |\dot{\gamma}| (\boldsymbol{\delta} - 3\mathbf{A}) \quad (\text{Eq. 1.72})$$

ce qui combinant l'équation de Jeffery et celle de Folgar et Tucker revient à écrire pour un coefficient de diffusion isotrope :

$$\dot{\mathbf{A}} = (\boldsymbol{\Omega} \cdot \mathbf{A} - \mathbf{A} \cdot \boldsymbol{\Omega}) + \lambda(\mathbf{A} \cdot \mathbf{D} + \mathbf{D} \cdot \mathbf{A} - 2\mathbf{A}:\mathbf{D}) + 2C_I |\dot{\gamma}| (\boldsymbol{\delta} - 3\mathbf{A}) \quad (\text{Eq. 1.73})$$

ou pour un coefficient de diffusion anisotrope :

$$\dot{\mathbf{A}} = (\boldsymbol{\Omega} \cdot \mathbf{A} - \mathbf{A} \cdot \boldsymbol{\Omega}) + \lambda(\mathbf{A} \cdot \mathbf{D} + \mathbf{D} \cdot \mathbf{A} - 2\mathbf{A}:\mathbf{D}) + 2C_I |\dot{\gamma}| - 3(2C_I |\dot{\gamma}| \cdot \mathbf{A} + \mathbf{A} \cdot 2C_I |\dot{\gamma}|) \quad (\text{Eq. 1.74})$$

1.4.2.2 Approximations de fermeture

L'utilisation de tenseurs d'orientation permet une description compacte de l'état d'orientation des fibres dans les suspensions. La résolution de leur évolution en temps est également moins coûteuse en temps de calcul que celle de la fonction de distribution d'orientation. Cependant, l'Eq. 1.70 montre que la résolution de l'équation d'évolution du tenseur d'ordre deux requiert la détermination du tenseur d'orientation d'ordre quatre. De manière générale, l'équation d'évolution du tenseur d'orientation d'ordre $2n$ requiert de connaître le tenseur d'ordre $2n+2$ qui est inconnu. L'approche classique permettant de pallier ce problème a été d'utiliser une approximation de fermeture donnant \mathbf{A} en fonction de \mathbf{A} . Plusieurs types d'approximations ont été développés. Nous proposons ici d'en présenter les principales. Cette approximation requiert de vérifier les conditions suivantes :

$$A_{ii} = 1 \quad \text{et} \quad \dot{A}_{ii} = 0 \quad (\text{Eq. 1.75})$$

L'approximation de fermeture linéaire formulée par Hand [Han62], exacte pour des fibres réparties de manière aléatoire, s'écrit :

$$A_{ijkl}^{lin} = \frac{1}{7}(\delta_{ij}a_{kl} + \delta_{ik}a_{jl} + \delta_{il}a_{jk} + \delta_{jk}a_{il} + \delta_{jl}a_{ik} + \delta_{kl}a_{ij}) - \frac{1}{35}(\delta_{ij}\delta_{kl} + \delta_{ik}\delta_{jl} + \delta_{il}\delta_{jk}) \quad (\text{Eq. 1.76})$$

Quant à l'approximation de fermeture quadratique, exacte pour des fibres alignées, elle s'écrit :

$$A_{ijkl}^{quad} = A_{ij}A_{kl} \quad (\text{Eq. 1.77})$$

Ces deux approximations ont été combinées [AT90] pour former une approximation dite hybride :

$$A_{ijkl}^{hyb} = (1 - f)A_{ijkl}^{lin} + fA_{ijkl}^{quad} \quad (\text{Eq. 1.78})$$

avec f une mesure de l'état d'orientation de la suspension :

$$f = 1 - 27 \det \mathbf{A} \quad (\text{Eq. 1.79})$$

Deux catégories d'approximation de fermeture ont ensuite été proposées : les approximations dites naturelles et les approximations dites orthotropes. Ces approximations sont assez similaires puisqu'elles sont ajustées en fonction de solutions particulières de la fonction de distribution d'orientation.

Les approximations de fermetures dites orthotropes sont basées sur le postulat que le tenseur \mathbf{A} possède les mêmes directions propres que le tenseur \mathbf{A} . Cintra et Tucker [CT95] démontre alors que seules trois composante de $\mathbf{A}_{ijkl}^{ortho}$ sont indépendantes $[\bar{\mathbf{A}}_{11}, \bar{\mathbf{A}}_{22}, \bar{\mathbf{A}}_{33}]$ dans la base des directions principales. Ces trois composantes peuvent être exprimées comme une fonction quadratique des deux premières valeurs propres de \mathbf{A} ($[1, a_1, a_2, a_1^2, a_2^2, a_1 a_2]$) et d'une matrice $\mathbf{C}_{3 \times 6}$. Les 18 coefficients de la matrice sont ensuite identifiés à partir de solutions numériques de la fonction de distribution d'orientation (avec un coefficient de diffusion D_r) [Bay91] pour des écoulements spécifiques (cisaillement simple, extension uni-axiale et bi-axiale et un écoulement comprenant un cisaillement dans les directions \mathbf{e}_1 et \mathbf{e}_2 plus une extension uni-axiale dans la direction \mathbf{e}_3). Malgré les excellents résultats produits par cette méthode pour la résolution de la fonction de distribution d'orientation pour $C_I = 0.01 - 0.1$, des oscillations non-physiques sont observées en cisaillement simple pour $C_I = 0.001$. Pour contrer ces oscillations non-physiques et ainsi améliorer l'identification des termes de $\mathbf{C}_{3 \times 6}$, Chung *et al.* [CK01] ont élargi la gamme d'écoulements spécifiques afin de couvrir l'ensemble de l'espace des orientations décrites par le tenseur d'orientation \mathbf{A} . Enfin, [Ver91, Wet98] ont également contraint les termes de $\mathbf{C}_{3 \times 6}$ afin d'obtenir des solutions exactes de la fonction de distribution d'orientation pour des orientations 1D et 2D des fibres. Le polynôme des valeurs propres de \mathbf{A} est choisi d'ordre 4 pour identifier les termes de $\mathbf{C}_{3 \times 6}$.

Les approximations dites naturelles formulent un tenseur d'orientation \mathbb{A} symétrique à partir des termes de \mathbf{A} et $\boldsymbol{\delta}$ [DCM+99, DV99] :

$$A_{ijkl}^{nat} = \beta_1(\delta_{ij}\delta_{kl}) + \beta_2S(\delta_{ij}A_{kl}) + \beta_3S(A_{ij}A_{kl}) + \beta_4S(\delta_{ij}A_{km}A_{ml}) + \beta_5S(A_{ij}A_{km}A_{ml}) + \beta_6S(A_{im}A_{mj}A_{kn}A_{nl}) \quad (\text{Eq. 1.80})$$

où S est un opérateur donnant la partie symétrique d'un tenseur. Les coefficients β_i sont des fonctions polynomiales des second et troisième invariants de \mathbf{A} . Parmi ces six coefficients, seuls trois sont indépendants. La détermination de ces paramètres est effectuée en reliant A_{ijkl}^{nat} avec des solutions analytiques de la fonction de distribution d'orientation pour des valeurs de $\lambda = 1$ et $C_I = 0$.

Ces dernières approches sont nettement plus efficaces que les approximations linéaire, quadratique et hybride [DGR07]. Enfin, Chung *et al.* [CK02] ont par la suite exprimé les coefficients β_i de l'équation de fermeture naturelle comme des fonctions polynomiales du deuxième et troisième invariants du tenseur d'orientation d'ordre 2. Les coefficients des fonctions polynomiales restant indéterminés ont été obtenus en se basant sur les hypothèses introduites pour les approximations de fermeture dites orthotropes. Ainsi, cette approche (Invariant-Based Optimal Fitting) est une méthode hybride entre les approximations naturelles et orthotropes offrant un gain de temps de calcul par rapport aux approximations orthotropes. Elle permet également de s'affranchir des problèmes de singularité rencontrés en utilisant les approximations de fermeture naturelles dans certaines situations d'écoulement.

1.4.2.3 Influence du caractère non-newtonien de la matrice sur l'évolution de l'orientation d'une particule

Plusieurs études ont été consacrées à l'étude de la cinématique des fibres au sein de matrices viscoélastiques [GGM71, BGM75, IKC96, ICK96, JSF90, GSMV08]. Gauthier *et al.* [GGM71] et Bartram *et al.* [BGM75] ont observé que la période de rotation de particules cylindriques au sein d'un fluide viscoélastique soumis à un écoulement de Couette augmente par rapport à celle prédite par le modèle de Jeffery. De manière générale, que les particules soient immergées dans un fluide viscoélastique à viscosité constante (fluide de Boger) ou rhéofluidifiant, leur orbite dévie de celle prédite par le modèle de Jeffery [GGM71, BGM75, LEA75, LEA75, ICK96, PCKC00, GSMV08]. La déviation observée est dépendante du nombre de Weissenberg (le produit entre le temps de relaxation du fluide et le taux de cisaillement) associé aux fluides considérés. Dans les études citées précédemment, ce nombre a été modifié en changeant les propriétés élastiques du fluide ou le taux de cisaillement. Pour des fluides viscoélastiques à faible nombre de Weissenberg, la période de rotation des fibres augmente et les fibres s'alignent petit à petit selon l'axe de vortacité de l'écoulement cisailant [BGM75, IKC96]. D'autre part, l'augmentation du nombre de Weissenberg mène les fibres à s'orienter rapidement selon la direction de l'écoulement [ICK96, JSF90, GSMV08]. Entre ces régimes, des orientations stables suivant l'axe de vortacité ou la direction de l'écoulement sont observées [BGM75, ICK96], mais n'ont pu être confirmées en régime dilué [GSMV08].

Les mêmes tendances ont été obtenues par simulation numérique directe pour des particules ellipsoïdales. D'Avino *et al.* [GD14] ont étudié l'évolution d'une particule ellipsoïdale ($\beta = 4$) immergée au sein d'un fluide viscoélastique modélisé par le modèle de Giesekus (fluide du second ordre) en écoulement cisailant. En considérant des valeurs proches pour le nombre de

Deborah (défini comme le temps de relaxation du fluide divisé par le temps caractéristique de l'écoulement et jugeant de l'élasticité du fluide) de celles explorées par Gunes *et al.* [GSMV08], d'Avino *et al.* ont reproduit numériquement les diverses orientations préférentielles observées expérimentalement. Pour une faible valeur du nombre de Deborah, l'orbite de l'ellipsoïde décrit une spirale autour de l'axe de vortacité qui tend à se restreindre au cours de l'écoulement comme le montre la Figure 1.6a-b. Pour une forte valeur du nombre de Deborah, l'ellipsoïde s'aligne rapidement dans la direction de l'écoulement comme le présente la Figure 1.6c-d.

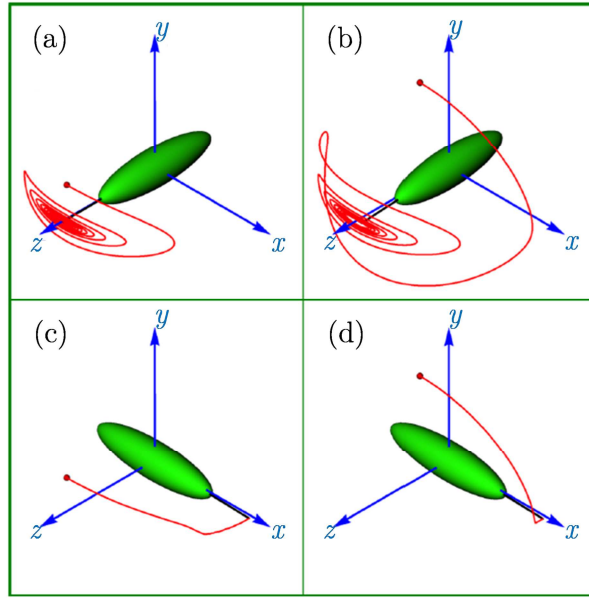


Figure 1.6 Orbites décrites par le vecteur tangent d'une particule ellipsoïdale immergée dans un fluide viscoélastique ($D_e = 1$ (a-b) et 3 (c-d) respectivement) soumis à un écoulement cisaillant dans le plan (x, y) pour diverses orientations initiales (cercle rouge) $((p_x, p_y, p_z) = (0, 0.31, 0.95)$ et $(p_x, p_y, p_z) = (0, 0.95, 0.31)$ pour les représentations (a,c) et (b,d) respectivement). Reproduit d'après d'Avino *et al.* [GD14].

Laure et al. [LPV⁺14] ont étudié l'évolution d'une fibre unique ($\beta = 3$) placée dans un écoulement cisaillant pour des fluides en loi puissance et des fluides viscoélastiques (Oldroyd-B). Leurs résultats numériques illustrés sur les Figs. 1.8-9 montrent que la fibre dévie de l'orbite prédite par le modèle de Jeffery et s'aligne progressivement selon l'axe de vortacité (l'axe z). Le temps d'alignement trouvé dépend de la sensibilité n pour les fluides en loi puissance (Figure 1.7) et du temps de relaxation t_r pour les fluides viscoélastiques (Figure 1.8).

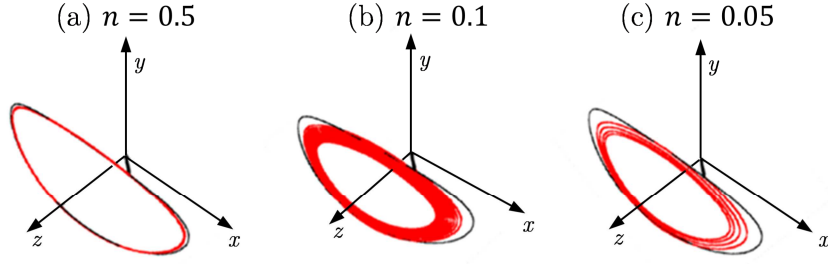


Figure 1.7 Orbites décrites par le vecteur tangent d'une fibre immergée dans un fluide en loi puissance soumis à un écoulement cisailant dans le plan (x, y) . Pour une sensibilité $n = 0.5$ (a), l'orbite est centrée autour de l'axe de vorticit e (axe z), l'orbite tend cependant   se restreindre (forme de spirale) lorsque la non-lin arit e augmente (b-c). (Le temps final du calcul est limit e   $t_f = 120$ s). Reproduit d'apr es Laure *et al.* [LPV⁺14].

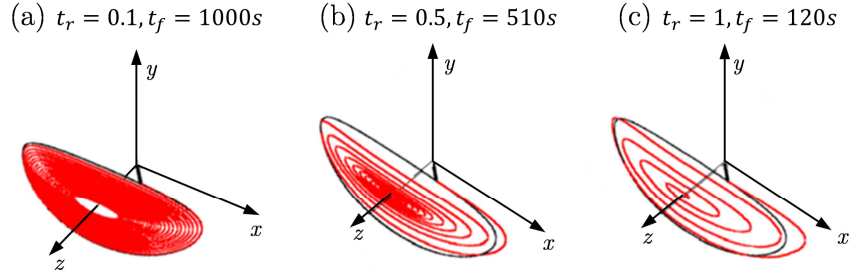


Figure 1.8 Orbite d crite par le vecteur tangent d'une fibre immerg e dans un fluide visco elastique soumis   un  coulement cisailant dans le plan (x, y) . L'orbite tend vers une position stationnaire selon l'axe de vorticit e (axe z) lorsque le temps de relaxation du fluide t_r augmente. Reproduit d'apr es Laure *et al.* [LPV⁺14].

  notre connaissance, peu de mod es d crivant l' volution de l'orientation d'une particule prennent en compte le caract re non-newtonien du fluide composant la suspension. G n ralement, l' quation de Folgar-Tucker est employ e bien que le fluide ou la matrice polym re soit visco elastique. Seules quelques  tudes peuvent cependant  tre cit es. Pour un fluide visco elastique du deuxi me ordre et un  coulement cisailant o  le nombre de D borah est faible, les  quations th oriques gouvernant la cin matique de fibres [LEA75] (mod le de Rivlin-Ericksen) et de particules isotropes transverses [Bru77] (mod le de Giesekus) ont  t   tablies. Le mod le de Brunn d crit l' volution d'orientation d'une particule isotrope transverse comme suivant l' quation d' volution du mod le de Jeffery pour un ellipso ide dans un fluide newtonien enrichie d'une correction non-newtonienne du premier ordre :

$$\dot{\mathbf{p}} = \boldsymbol{\omega} \cdot \mathbf{p} = \boldsymbol{\Omega} \cdot \mathbf{p} + \lambda (\mathbf{D} \cdot \mathbf{p} - (\mathbf{D} : (\mathbf{p} \otimes \mathbf{p}))\mathbf{p}) - (\mathbf{I} - \mathbf{p} \otimes \mathbf{p}) \cdot (\mathbf{D} \cdot (H_1 \mathbf{D} \cdot \mathbf{p} - H_2 (\mathbf{D} : (\mathbf{p} \otimes \mathbf{p}))\mathbf{p})) \quad (\text{Eq. 1.81})$$

o  les param tres H_1 et H_2 sont des scalaires d pendant des tenseurs mat riels associ s   la particule et au fluide. Malheureusement, aucune comparaison exp rimentale n'est disponible  

ce jour pour tester la validité de ce modèle. Plus récemment, Borzacchiello *et al.* [BACCK16] ont dérivé le modèle de Brunn pour un ensemble de particules par l'introduction du tenseur d'orientation d'ordre 2. Leur développement engendre l'apparition du tenseur d'orientation d'ordre six pour lequel, à notre connaissance, peu d'approximations de fermeture ont été développées. Borzacchiello *et al.* [BACCK16] ont alors proposé une méthodologie simplifiée qui consiste à réécrire le modèle de Giesekus sous la forme d'un développement asymptotique en série de puissance du nombre de Weissenberg W . Le développement du gradient de vitesse à l'ordre zéro $\nabla\mathbf{v}^{(0)}$ est trouvé identique au champ de vitesse non-perturbé. Au premier ordre $\nabla\mathbf{v}^{(1)}$, le développement assure la prise en compte de la perturbation de l'écoulement due à la présence des fibres et au comportement viscoélastique du fluide :

$$\widetilde{\nabla\mathbf{v}} = \nabla\mathbf{v}^{(0)} + \delta W \nabla\mathbf{v}^{(1)} = \nabla\mathbf{v}^{(0)} + 2\delta W(1-B) \left\{ \left(\frac{\delta\mathbf{D}^{(0)}}{\delta t} + 2\alpha\mathbf{D}^{(0)} \cdot \mathbf{D}^{(0)} \right) - \frac{1}{3} \text{Tr} \left(\frac{\delta\mathbf{D}^{(0)}}{\delta t} + 2\alpha\mathbf{D}^{(0)} \cdot \mathbf{D}^{(0)} \right) \mathbf{I} \right\} \quad (\text{Eq. 1.82})$$

Le coefficient δ est un paramètre ajustable et $B = \frac{\eta_p}{\eta_p + \eta_f}$ est un paramètre valide pour de faible nombre de Weissenberg. Ce développement permet de définir un gradient de vitesse effectif utilisé à l'échelle microscopique dans l'équation de Jeffery (Eq. 1.51) et à l'échelle macroscopique dans l'équation Folgar et Tucker.

$$\dot{\mathbf{p}} = \widetilde{\boldsymbol{\Omega}} \cdot \mathbf{p} + \lambda(\widetilde{\mathbf{D}} \cdot \mathbf{p} - \widetilde{\mathbf{D}} : (\mathbf{p} \otimes \mathbf{p})\mathbf{p}) \quad (\text{Eq. 1.83})$$

avec $\widetilde{\boldsymbol{\Omega}} = \frac{1}{2} (\widetilde{\nabla\mathbf{v}} - \widetilde{\nabla\mathbf{v}}^t)$ et $\widetilde{\mathbf{D}} = \frac{1}{2} (\widetilde{\nabla\mathbf{v}} + \widetilde{\nabla\mathbf{v}}^t)$.

La cinétique d'une fibre prédite par ce modèle enrichi au sein d'un écoulement cisailant est qualitativement en accord avec les observations expérimentales d'Avino *et al.* [GD14] et d'Iso *et al.* [ICK96].

1.4.2.4 Effet de la flexibilité des fibres

À notre connaissance, seuls quelques auteurs se sont intéressés à l'influence de la flexibilité des fibres sur leur mouvement au sein d'une suspension et les propriétés rhéologiques résultantes. Parmi les pionniers, Forgacs et Mason [FM59] ont observé que la rotation de fibres flexibles dans un fluide newtonien soumis à un écoulement de Couette diverge de l'orbite prédite par le modèle de Jeffery. Ils observent que les fibres se courbent au-delà d'une contrainte critique σ_{crit} reliée à la viscosité du fluide η_f ainsi qu'au module d'Young E et à l'élancement β des fibres :

$$\sigma_{crit} = (\eta_f \dot{\gamma})_{crit} = \frac{E(\ln 2\beta - 1.75)}{\beta^4} \quad (\text{Eq. 1.84})$$

Par la suite, Keshtar *et al.* [MKC09, MKD10] ont étudié l'influence de la flexibilité des fibres sur l'écoulement de Couette de suspensions à fluide newtonien dans des régimes de concentrations semi-diluées à semi-concentrées. Pour quantifier la flexibilité des fibres, ces auteurs utilisent un critère de rigidité effectif initialement introduit par Switzer et Klingenberg [SK03] :

$$R_{eff} = \frac{E\pi d^4}{64 \mu_f \dot{\gamma} l^4} \quad (\text{Eq. 1.85})$$

Keshtar *et al.* ont ainsi observé que l’alignement des fibres dans la direction de l’écoulement dépend du taux de cisaillement et de la déformation appliquée à la suspension : la durée nécessaire pour aligner les fibres diminuant avec l’augmentation de la rigidité de fibres. Ils ont également montré que les propriétés visqueuses et élastiques des suspensions fibreuses sont en forte augmentation et que cette hausse est plus prononcée pour les suspensions semi-concentrées de fibres. Soulignons que ces deux dernières observations sont en accord avec les tendances prédites par le modèle mésoscopique de Rajabian *et al.* [MRG05].

D’autre part, la flexibilité des fibres est supposée par Soszynski et Kerekes [SK8a, SK88b] être un paramètre moteur concernant la formation d’agrégats de fibres. En effet, ils supposent que ces agrégats sont composés d’un entrelacement de fibres induit par leur flexibilité. Les fibres sont ainsi enchevêtrées et forment un réseau maintenu par les contacts mécaniques entre fibres. Le lecteur intéressé par des modèles de fibres flexibles peut se référer aux articles de [BAH87, Lat07] et [EAC14] pour la modélisation théorique mais également pour la modélisation par simulation numérique directe (DNS) [SK97, AFT06, RMC15] des propriétés rhéologiques de ces suspensions.

1.5 Apport des techniques d’imagerie

Les observations des évolutions de suspensions fibreuses en écoulement ont été principalement réalisées par des mesures optiques 2D [Tay23, Bin39, TM51, AM68, FT84, SKC92, PKC00, YMN02, YKM04, DVO+07], par des techniques de diffraction des rayons X [MW84] ou par radiographie aux rayons X à phase augmentée [SRFY13]. Ces techniques sont opérantes pour l’observation de suspensions fibreuses diluées mais leur apport reste cependant limité pour l’observation de suspensions semi-diluées à concentrées. Par ailleurs, elles n’offrent pas non plus une vision 3D complète des fibres au sein des suspensions et de leurs cinématiques au contraire des observations par microtomographie à rayons X qui se sont développées au cours dernières années. Celles-ci permettent notamment d’accéder à la structure 3D des réseaux fibreux [FDBC05, LDO+08, SKE+13]. En utilisant des techniques d’analyse appropriées, les caractéristiques structurales des suspensions peuvent être obtenues de ces images à l’échelle mésoscopique (fraction volumique des fibres, des porosités, distribution de taille des porosités, orientation globale des fibres ou des mèches) ou à une échelle microscopique, certaines études ayant ainsi montré qu’il est possible d’obtenir la position et l’orientation de chaque fibre et de leurs contacts dans des suspensions (ou des réseaux fibreux) de fibres ou de mèches à structure aléatoire ou alignée [LOG+11, GODR12, ODV+12, WBB+12, VLO+13].

Certains auteurs ont également suivi *in situ* l’évolution de ces descripteurs au cours d’essais rhéologiques [LOG+11, WBB+12]. Ces études ont cependant été effectuées en utilisant des essais mécaniques interrompus en raison du temps de scan des échantillons relativement longs par rapport à la cinétique du chargement. Grâce aux progrès récents des installations de microtomographie synchrotron, il est désormais possible d’acquérir des images avec des temps de scan de l’ordre de la demi-seconde à de très fortes résolutions (de l’ordre du micromètre), ouvrant ainsi la voie à des observations 3D *in situ* et en temps réel des évolutions de la microstructure des suspensions au cours d’essais à chargement continu [LSB+09].

1.6 Conclusion

Dans ce chapitre, en complément aux points déjà présentés dans l'Introduction générale, nous avons tout d'abord rappelé quelques caractéristiques spécifiques aux composites à fibres courtes, en notant plus particulièrement que les propriétés rhéologiques des matrices industrielles sont non-linéaires.

Par la suite, nous avons présenté les modèles classiquement utilisés dans la littérature pour décrire l'état d'orientation des fibres au sein des suspensions : fonction de distribution d'orientation et tenseurs d'orientation d'ordre deux voire d'ordres supérieurs.

Les principaux modèles rhéologiques de suspensions de fibres dans des régimes dilués à semi-dilués ont été exposés. Nous avons mis en évidence le couplage indissociable entre comportement rhéologique des suspensions et état d'orientation des fibres. Les modèles rhéologiques font généralement état de la structure fibreuse de la suspension par le biais de la fraction volumique de fibres mais aussi par l'utilisation de tenseurs d'orientation traduisant l'état global d'orientation pris par les fibres au sein de la suspension.

Il est crucial de décrire l'évolution de l'orientation fibreuse au cours de l'écoulement d'une suspension. Ce problème nécessite en premier lieu la résolution d'un problème fondamental posé par celui de la description du mouvement (position et orientation) d'une fibre isolée au sein d'un fluide en écoulement. Jeffery a donné une solution à ce problème pour un ellipsoïde isolé en suspension dans un fluide newtonien incompressible en écoulement de domaine infini. Ces travaux ont par la suite été étendus au cas des particules de géométries diverses, en particulier des fibres cylindriques de révolution. La description du mouvement d'une particule au sein d'une suspension se complique dès lors que les régimes de concentration atteints sont plus élevés. La description du mouvement des particules a fait l'objet de nombreux travaux dans le cas du régime semi-dilué où chaque particule subit des interactions hydrodynamiques à longue distance. Celles-ci sont liées aux perturbations que l'écoulement subit du fait de la présence des particules que le fluide transmet de particule en particule. La description de l'évolution globale de l'orientation des fibres d'une suspension nécessite ainsi de prendre en compte son régime de concentration. Par ailleurs, pour la résolution de ce problème plusieurs approches peuvent être envisagées. Certaines approches sont basées sur la résolution d'une équation d'évolution pour la fonction de distribution, approche qui peut être lourde et coûteuse en temps de calculs numériques, d'autres sur la résolution d'une équation d'évolution pour le tenseur d'orientation d'ordre 2, cette dernière approche nécessitant en général l'emploi d'approximations de fermeture. La performance de chacune de ces approximations de fermetures est variable selon le type d'écoulement, l'état d'orientation initiale des fibres, menant pour certaines d'entre elles à des situations non physiques sous des conditions particulières d'écoulement.

Afin de prendre en compte le caractère non-newtonien des matrices utilisées dans les matériaux composites, quelques auteurs ont développé des modèles rhéologiques et des modèles de cinématique de fibres pour des suspensions à fluide non-linéaire et viscoélastique. Peu de comparaisons des prévisions de ces modèles avec des observations expérimentales ont été effectuées. En effet, les nombreuses observations expérimentales ont été effectuées par des méthodes 2D, mais ne procurent pas une caractérisation cinématique complète du mouvement des fibres. Dans ce domaine, les récentes avancées de l'imagerie par tomographie à rayons X permettent une observation 3D *in situ* de la structure des suspensions de fibres et de leur évolution au cours des écoulements. Le développement de techniques d'analyse d'images dédiées

permet en outre l'extraction de paramètres microstructuraux pertinents. De plus, l'emploi de source de type synchrotron permet l'observation 3D *in situ* en temps réel de l'écoulement des suspensions.

Notons que l'influence du confinement de la suspension est rarement prise en compte dans les modèles de prédictions d'orientation de fibres. Par ailleurs, peu de travaux ont été entrepris pour décrire le comportement rhéologique dans des régimes concentrés et des situations d'écoulement confiné. Des progrès doivent aussi être effectués pour comprendre l'influence du caractère non-linéaire de la rhéologie du fluide sur la réponse des suspensions. Ce sont ces différents points que nous avons essayé de traiter dans la suite de ce travail.

Chapitre 2. Objectifs de la thèse

L'étude bibliographique du chapitre 1 nous a permis de mettre en évidence que les composites à fibres courtes peuvent être vus comme des suspensions fibreuses dont l'étude, tant au niveau de leur rhéologie que de leur cinématique, nécessite une description complète aux diverses échelles d'observation afin d'être en mesure de prédire les propriétés physiques et mécaniques des pièces composites produites. Ce constat s'appuie sur de nombreuses observations expérimentales [DMT06, TCSA05, DVO+07, ODV+12] et modèles analytiques [Bat70b, DA84, LDHB88, PTG91, FL96].

Afin de décrire la cinématique des fibres au sein d'une suspension, les modèles de la littérature sont généralement construits à partir de l'approche de Jeffery. Ce modèle reste cependant limité à la description de l'évolution d'une fibre ellipsoïdale et rigide dans un milieu infini formé d'un fluide suspensif incompressible et newtonien soumis à un écoulement permanent. Ces restrictions ne sont bien évidemment pas respectées lors de la mise en forme industrielle de composites à matrice polymère renforcée par des fibres courtes. Ces composites peuvent être assimilés à des suspensions concentrées de fibres imprégnées par une matrice polymère. Cette dernière s'écoule au sein d'une microstructure fibreuse enchevêtrée souvent anisotrope. La structure fibreuse subit de fortes déformations impliquant des changements de la distribution spatiale et de l'orientation des fibres [FTL84, BI92, VIFO99, KHTS00, DVO+07]. Aussi, la présence de fibres perturbe l'écoulement qui lui-même induit des effets importants sur la cinématique des fibres. Le phénomène d'interaction hydrodynamique entre fibres est généralement modélisé d'un point de vue macroscopique grâce à l'introduction d'un coefficient de diffusion d'orientation phénoménologique introduit par Folgar et Tucker [FTL84] dans l'équation d'évolution du tenseur d'orientation d'ordre deux [AT87]. Cette approche est similaire à la modélisation des phénomènes de diffusion brownienne et moléculaire. Le coefficient d'interaction est déterminé à partir de mesures expérimentales 2D de cinétique de fibres immergées dans un fluide newtonien soumis à diverses sollicitations mécaniques (cisaillement et déformation plane). La complexité des modèles de coefficient d'interaction varie selon les auteurs. Cependant ce coefficient ne fournit pas une modélisation physique des phénomènes mis jeu lors de la mise en forme du composite. À notre connaissance, très peu de modèles prennent en compte cette complexité à l'échelle de la fibre. Ces modèles ne sont malheureusement que très peu développés, certainement en raison des difficultés expérimentales qui sont rencontrées pour caractériser et analyser l'évolution 3D des microstructures fibreuses de suspensions en écoulement. Ainsi, bien que ces interactions soient considérées de manière phénoménologique, l'approche macroscopique de Folgar et Tucker reste la plus utilisée pour décrire l'évolution d'orientation des fibres d'une suspension.

Concernant la rhéologie des composites, les modèles de la littérature reposent sur la description de suspensions newtoniennes diluées à semi-diluées développées à partir des approches de Jeffery [Jef22] et de Batchelor [Bat70a, Bat71]. Le tenseur des contraintes de Cauchy est divisé en quatre contributions représentant respectivement l'incompressibilité de la matrice, l'apport de la matrice, des interactions fibre-matrice et des contacts mécaniques fibre-fibre. Bien que l'écoulement du fluide soit perturbé par la présence des fibres, le fluide est supposé comme une structure isotrope simplifiant ainsi l'expression de l'apport de la matrice au tenseur des contraintes à une forme newtonienne usuelle pour un fluide incompressible. Suivant cette même

hypothèse et ne connaissant pas le champ de contrainte au sein de la suspension, la contribution des interactions fibres-matrice est reliée au champ de déformation macroscopique du fluide, à la viscosité du fluide ainsi qu'à la concentration et à l'état d'orientation des fibres. Malheureusement, les prévisions de ces modèles n'ont guère été confrontées à des résultats d'observations expérimentales ou numériques et se contentent souvent de comparaison avec des données macroscopiques.

Enfin, la mise en forme de composites à matrice polymère renforcée par des fibres courtes s'effectue dans de nombreux cas dans des moules dont les dimensions caractéristiques sont de l'ordre de la taille des fibres, c'est-à-dire dans des géométries dites confinées. Les fibres peuvent alors être exposées à de forts gradients du champ de vitesse de déformation du fluide. De plus, la matrice polymère possède généralement un comportement non-newtonien, rendant encore la description de son écoulement au sein de la microstructure fibreuse extrêmement complexe.

Le modèle de Jeffery reste-t-il pertinent pour décrire la cinématique d'une fibre au sein d'une suspension subissant de telles contraintes ? Quelles en sont les conséquences sur l'écoulement et sur la cinématique des fibres de suspensions diluées ou semi-diluées ? Quels sont les effets de ces changements microstructuraux sur les contraintes macroscopiques de la suspension ?

Depuis quelques années, des essais mécaniques couplés à des techniques d'imagerie *in situ* ont été mis en œuvre afin de caractériser en trois dimensions les propriétés microscopiques de milieux fibreux [LOG+11, GODR12, ODV+12]. Les positions et orientations des fibres ainsi que leurs contacts mutuels ont pu être extraites des images. Ces données ont été utilisées pour comparer voire enrichir des modèles rhéologiques théoriques ou numériques. Ces études ont dans un premier temps été limitées à des conditions de chargements mécaniques interrompus en raison des temps d'acquisition des images relativement longs par rapport à la cinétique du chargement. Récemment, les temps d'acquisition sur certains microtomographes synchrotron sont descendus en dessous de la demi-seconde ce qui permet ainsi des observations 3D *in situ* en temps réel.

D'autre part, les récentes avancées dans le domaine de la simulation numérique directe ou « Direct Numerical Simulation » en anglais (DNS) permettent la modélisation de l'écoulement de fluides non-linéaires autour de particules rigides en mouvement [HH06, PBB+07, CDH+10]. Cette méthode est basée sur une approche monolithique où les phases fibres et matrice sont représentées sur un seul maillage eulérien. Le maillage anisotrope est optimisé et se réadapte automatiquement au cours du calcul. De plus, une fonction « level-set » est utilisée afin de capturer précisément l'interface fibre-matrice et d'associer des paramètres physiques spécifiques à chacune des phases. Les champs de vitesse et de pression sont obtenus sur l'ensemble du maillage par la résolution du système de Stokes dans lequel les lois de comportement de chacune des phases ont été introduites. Les positions des fibres sont ensuite calculées en interpolant la vitesse et la rotation au centre de la particule. Enfin, la fonction « level-set » est réactualisée. Cette méthode a déjà été appliquée à des suspensions de sphères et de fibres rigides [HH06, PBB+07, CDH+10] et permet d'étudier les micro-mécanismes de déformation par l'accès au champ de vitesse et de contrainte au sein de ces suspensions virtuelles.

À partir de ces différents constats, l'objectif général de ce travail est d'étoffer la base de données expérimentales et numériques sur les phénomènes d'écoulement de composites à matrice polymère renforcée par des fibres courtes. Ces résultats auront ensuite pour but d'apporter par leur comparaison une meilleure compréhension générale de l'écoulement du composite en reliant le caractère non-newtonien du fluide suspensif avec les évolutions de la microstructure fibreuse.

Les travaux menés dans cette thèse s'articulent ainsi autour de la combinaison simultanée :

- D'une démarche expérimentale basée sur des essais de micro-rhéologie couplés à des observations 3D in situ et en temps réel de la déformation de suspensions modèles de fibres. Cette approche peut être aujourd'hui mise en oeuvre grâce aux techniques avancées de microtomographie à rayons X de type synchrotron. Une procédure d'analyse d'images et de post traitement dédiée à l'extraction et aux suivis des paramètres microstructuraux de la suspension sera également mise en place.
- De simulation numérique directe (DNS) capable de « capturer » les micro-mécanismes de déformation de suspensions fibreuses soumises à des essais de compression. Ces calculs sont réalisés grâce à un code éléments finis développé par le CEMEF MINES ParisTech, capable de décrire finement les interfaces fibre-fluide par une approche diffuse, la méthode des « level sets », et de prendre en compte les lois constitutives complexes des phases fluides et solides constituant les suspensions.

Suivant cette méthodologie, la suite de la thèse s'articule autour de 3 chapitres.

- Dans le Chapitre 3 « Compression de suspensions modèles diluées », la démarche expérimentale est tout d'abord présentée. Celle-ci comprend la description du processus de fabrication des suspensions modèles et celle d'un dispositif de micro-rhéométrie pouvant être couplé à des dispositifs d'imagerie 3D par microtomographie à rayon X. Les outils d'analyse d'images et de post traitement utilisés pour extraire les propriétés des suspensions de fibres sont également présentés. Enfin, la cinématique des fibres des suspensions diluées étudiées est comparée aux prédictions des modèles de la littérature.
- Dans le Chapitre 4 « Simulation de la compression de suspensions diluées », les diverses techniques numériques associées au code de simulation numérique directe sont tout d'abord présentées. Les prédictions du modèle sont ensuite comparées aux résultats expérimentaux obtenus dans le chapitre précédent. Pour ce faire, les caractéristiques des suspensions fibreuses non déformées (par exemple positions et orientations des fibres) ont été extraites des images acquises par microtomographie à rayons X puis introduites avec les conditions expérimentales dans le code comme conditions initiales d'entrées du problème numérique.
- Dans le Chapitre 5 « Compression de suspensions semi-diluées », les résultats expérimentaux d'essais de compression de suspensions semi-diluées de fibres sont présentés. Ces résultats sont également confrontés aux prédictions de modèles décrivant les propriétés rhéologiques et cinématiques de suspensions semi-diluées de fibres.
- Dans le Chapitre 6 « Vers l'étude du régime concentré », les premiers résultats expérimentaux d'essais de compression de suspensions concentrées de fibres sont présentés. Les procédures d'analyses d'images développées au cours de la thèse ont été adapté à l'étude de ce régime de concentration.

Chapitre 3. Compression de suspensions modèles dilués

Sommaire

3.1 Introduction	47
3.2 Materials and experimental procedure	50
3.2.1 Materials	50
3.2.2 Compression experiments with real-time 3D in situ X-ray imaging	51
3.2.3 Image analysis and data post-treatment	52
3.3 Results and discussion	52
3.4 Conclusion.....	58

3D real-time and *in situ* characterisation of fibre kinematics in dilute non-Newtonian fibre suspensions during confined and lubricated compression flow

T. Laurencin^{a,b,c}, L. Orgéas^{a*}, P.J.J. Dumont^b, S. Rolland du Roscoat^a,
P. Laure^c, S. Le Corre^d, L. Silva^e, R. Mokso^f, M. Terrien^g

^aCNRS, Univ. Grenoble Alpes, 3SR Lab, F-38000 Grenoble, France

^bUniv. Lyon, LaMCoS, INSA-Lyon, CNRS UMR5259, F-69621, Lyon, France

^cCNRS, Univ. Nice, Lab. J.A. Dieudonné, Parc Valrose F-06000 Nice, France

^dUniv. Nantes, LTN, La Chantrerie, rue Christian Pauc - CS 50609, 44306 Nantes cedex 3, France

^eEcole Centrale de Nantes, ICI, 1 rue de la Noë F-44000 Nantes, France

^fPaul Scherrer Institut, SLS, TOMCAT Beamline, 5232 Villigen, Switzerland

^gCNRS, Univ. Grenoble Alpes, LGP2, F-38000 Grenoble, France

Abstract

The physical and mechanical properties of short fibre-reinforced polymer composites depend on the geometry, content, distribution and orientation of fibres within the polymer matrix. These microstructure features are mainly induced during the forming stage, *i.e.*, when composites usually flow in moulds and behave as non-Newtonian fibre suspensions. Their flow-induced microstructures still cannot be well predicted by current rheological models. To better understand them, non-Newtonian dilute fibre suspensions were prepared and subjected to lubricated compression experiments using a micro-rheometer mounted in a synchrotron X-ray microtomograph. These experiments enabled, for the first time, fast and *in situ* 3D imaging of the translation and rotation of fibres in the suspending fluid. Fibre motions were compared with the prediction of the Jeffery's model. Despite the use of a non-Newtonian suspending fluid and confined flow conditions, *i.e.*, with a gap between compression platens of the same order of magnitude than the fibre length, we showed that Jeffery's prediction was satisfactory if the fibres were sufficiently far from the compression platens (approximately at a distance of once to twice their diameter). Otherwise, the experimental average orientation rates were higher than the Jeffery's prediction.

Keywords: Short fibre composites; Rheology; Microtomography; Injection moulding; Compression moulding.

3.1 Introduction

Owing to their interesting functional and mechanical properties, and to their cost-efficient processing, short fibre-reinforced polymer composites are widely used to produce parts with fibrous microstructures (shape, aspect ratio, concentration and orientation of fibres) that are mainly induced by the forming process (film casting, extrusion, injection moulding or compression moulding) [ODV+12, Adv94, FM03, DGD+05]. During these phases, the composites behave as fibre suspensions with a complex rheology which is still not very well characterised and modelled because of the difficulties to properly observe, understand and analyse evolving fibrous microstructures and flow mechanisms at the fibre scale in non-Newtonian suspending polymer matrices.

All current rheological models which describe the kinematics of fibres in polymer composites during forming are based on the pioneering and fundamental work of Jeffery [Jef22]. However, Jeffery's model is theoretically valid for a single ellipsoidal rigid particle immersed in an infinite

and incompressible Newtonian fluid flowing at low Reynolds number. For a slender ellipsoid i with an orientation given by the unit vector:

$$\mathbf{p}^i = \sin\theta^i \cos\varphi^i \mathbf{e}_1 + \sin\theta^i \sin\varphi^i \mathbf{e}_2 + \cos\theta^i \mathbf{e}_3 \quad (\text{Eq. 3.1})$$

($\theta^i \in [0, \pi]$ and $\varphi^i \in [0, 2\pi]$), Jeffery's model describes the velocity \mathbf{v}^i of its centre of mass as an affine function of the macroscale velocity gradient $\nabla\mathbf{v}$ of the suspending fluid. Considering the particular case of homogeneous macroscale fluid flow situations without rigid body motions, the position \mathbf{x}^i of the centre of mass of the ellipsoid can thus be predicted by integrating the equation:

$$\mathbf{v}^i = \nabla\mathbf{v} \cdot \mathbf{x}^i. \quad (\text{Eq. 3.2})$$

Its orientation is also given from the well-known expression for the rotation rate of \mathbf{p}^i :

$$\dot{\mathbf{p}}^i = \boldsymbol{\Omega} \cdot \mathbf{p}^i + \lambda(\mathbf{D} \cdot \mathbf{p}^i - (\mathbf{p}^i \cdot \mathbf{D} \cdot \mathbf{p}^i)\mathbf{p}^i), \quad (\text{Eq. 3.3})$$

where $\boldsymbol{\Omega} = (\nabla\mathbf{v} - {}^t\nabla\mathbf{v})/2$ and $\mathbf{D} = (\nabla\mathbf{v} + {}^t\nabla\mathbf{v})/2$ are the macroscale rotation rate and strain rate tensors, respectively, and where λ is the ellipsoid shape factor. The relevance of Jeffery's model for Newtonian fluids was confirmed experimentally by several authors [Tay23, Bin39, TM51, PKC00] mainly in shear flow. The validity of Jeffery's equation was extended to any axisymmetric particle [Bre62, Bre74]. For straight cylindrical fibres of length l and diameter d , λ is a function of the fibre aspect ratio $\beta = l/d$:

$$\lambda = 1 - \frac{3C \ln\beta}{4\pi\beta^2}, \quad (\text{Eq. 3.4})$$

where $C \approx 5.45$ is a constant determined by Cox [Cox71] from the experiments of Anczurowski and Mason [AM68]. Jeffery's model has largely been validated and used for dilute Newtonian fibre suspensions [Bre74, AM68, PKC00, SRFY13], *i.e.*, for situations where the volume fraction of fibres $\phi \ll 1/\beta^2$. In these situations, a compact description of the fibre orientation is often employed using the fibre orientation distribution function or its moments, *e.g.* the second \mathbf{A} and fourth order \mathbb{A} orientation tensors [AT87]. Adopting a discrete form for N fibres contained in an elementary volume of the suspension, these tensors are respectively expressed as follows:

$$\mathbf{A} = \frac{1}{N} \sum_{i=1}^N \mathbf{p}^i \otimes \mathbf{p}^i \quad \mathbb{A} = \frac{1}{N} \sum_{i=1}^N \mathbf{p}^i \otimes \mathbf{p}^i \otimes \mathbf{p}^i \otimes \mathbf{p}^i \quad (\text{Eq. 3.5})$$

In the semi-dilute regime, *i.e.*, when $1/\beta^2 \ll \phi \ll 1/\beta$, Jeffery's equations (Eq. 3.3) are known to overestimate the fibre reorientation rate in Newtonian systems, since they do not account for long range hydrodynamic interactions between fibres [Bre74, FT84, Bay91, SKC92, RKC95]. In the concentrated regime, *i.e.*, when $\phi > 1/\beta$, Jeffery's equation also fails, the situation becoming more complex due to short range (non-)hydrodynamic interactions between fibres [Bay91, DVO+07, LDO+08, DLOF09]. For these two regimes, several modifications of Eq. 3.3. have been proposed based on the pioneering work of Folgar and Tucker [FT84, PT09]. Departures of the fibre orientation from the Jeffery's orbits have also been observed for non-Newtonian fluids, mostly for shear flows. Hence, using viscoelastic fluids, fibres were found to align along the shear or the vorticity directions, depending on the Weissenberg number, *e.g.* by changing the shear rate or the fluid viscoelastic properties [ICK96, IKC96, GSMV08]. These

experimental results were also found numerically and implemented in constitutive theories [LEA75, Bru77, GD14, BACCK16]. However, few experimental, theoretical, and numerical studies focused on fibre kinematics in shear-thinning fluids, whereas this rheological behaviour is typical for industrial polymers, as those that are used in composites. Besides, to the authors' knowledge, fibre kinematics during compressive or elongational flow are rarely analysed [PSAC+16, DVO+07], whereas these flow modes are prone to occur during short fibre-reinforced polymer composite forming.

In addition, Jeffery-based theories were established for good scale separation conditions, *i.e.*, when the size of fibres is small compared with the typical size of flowing samples. Unfortunately, this critical prerequisite is rarely fulfilled by the composite forming conditions. In many situations, composites flow through narrow channels or in thin mould cavities with gaps h being in the same order of magnitude as the fibre length l . These flow situations correspond to confined regimes [SS97, Dia09, SGB12]: the scale separation between the sample and its heterogeneities is poor so that fibres are close to the mould walls. It is well-known that when fibres interact with a solid wall, departures from the Jeffery's trajectories and orbits are prone to occur [SC90, MAR01, CLS06]. Few theoretical studies proposed modifications of Jeffery's equations to account for confinements and/or wall effects [SS97, OS14, PSAC+16]. To the best of the authors' knowledge, these effects have rarely been studied for non-Newtonian suspending fluids [SC90], and never been analysed for elongational or compression flows.

Lastly, it is also interesting to mention that in most of the aforementioned experimental studies, fibre kinematics was followed using 2D optical approaches [Tay23, Bin39, TM51, PKC00, AM68, FT84, SKC92, ICK96, IKC96, GSMV08, SC90, MAR01, CLS06], 2D wide-angle X-ray diffraction [MW84], or high speed X-ray phase-contrast 2D imaging [SRFY13]. These techniques work for dilute suspensions but have limitations for semi-dilute and concentrated fibre suspensions. In addition, they do not offer 3D views of fibres and their kinematics. In parallel, X-ray micro-tomography has become a powerful technique to provide 3D images of fibrous architectures [LDO+08, FDBC05, SKE+13]. Using appropriate image analysis procedures, relevant microstructure descriptors such as the position, orientation of fibres and fibre-fibre contacts can be extracted [ODV+12, LOG+11, GODR12, WBB+12, VLO+13]. Thanks to *in situ* rheometry, it is also possible to follow the evolution of these descriptors during rheological tests [LOG+11, WBB+12]. However, these analyses are restricted to interrupted mechanical loadings, due to the usually long scanning times that are required with standard X-ray sources. Recent synchrotron X-ray sources have made possible to acquire 3D images at very fast scanning times, and thus to perform real-time 3D *in situ* observations during the deformation of imaged samples [LSB+09].

Hence, the main objective of this contribution was to experimentally investigate the relevance of Jeffery's theory for modelling fibre kinematics in fibre suspensions with shear-thinning suspending fluids when they are subjected to confined and lubricated compression flow. For that purpose, model dilute and non-Newtonian fibre suspensions were prepared and compression experiments were performed using a specially designed micro-rheometer mounted on the rotation stage of a synchrotron X-ray microtomograph. Combined with dedicated image analysis procedures, these experiments enabled, for the first time, fast and real-time 3D observations of the translation and rotation of fibres to be obtained and compared with the prediction of Jeffery's model.

3.2 Materials and experimental procedure

3.2.1 Materials

A hydrocarbon gel (paraffin) was used as suspending fluid for the studied fibre suspensions [GODR12]. Its transparency facilitated the control of the fibre microstructure during the suspension preparation. The hydrocarbon gel viscosity was tunable with the temperature. At 120°C, this polymer behaved as a Newtonian fluid and its shear viscosity was approximately 1 Pa s. At room temperature, it behaved as a solid gel (Figure 3.1a), so that the suspensions could be easily handled before the experiments, without damaging their microstructures. Finally, at 50°C, the hydrocarbon gel exhibited a non-Newtonian behaviour close to that of industrial polymer matrices used in composites. La Figure 3.1a shows that its shear viscosity μ is a shear-thinning power-law, *i.e.*, $\mu = K\dot{\gamma}^{n-1}$ where $\dot{\gamma} = \sqrt{2\mathbf{D}:\mathbf{D}}$ is the generalised shear rate, and where the power-law exponent $n = 0.2$ and the consistency $K = 440 \text{ Pa}\cdot\text{s}^n$ were determined using a cone-plane rheometer (Anton Paar MCR301). The fibres used in the suspensions were cut from a PVDF fishing wire (diameter $d = 200 \mu\text{m}$, Young's modulus $\approx 2 \text{ GPa}$), exhibiting a sufficiently different X-ray absorption coefficient when compared with the hydrocarbon gel [LOG+11].

<i>Test number</i>	1	2	3	4	5	6	7	8	9
N	1	1	1	1	1	1	5	8	8
ϕ (%)	0.013	0.013	0.015	0.013	0.011	0.011	0.11	0.21	0.16
β	16.5	17	19.5	17.5	14.5	14.5	12.6	17.9	17.7
D_{33}^0 (s^{-1})	0.004	0.004	0.03	0.03	0.03	0.03	0.03	0.004	0.03
Δx_{min}^i (%)	-	-	-	-	-	-	2.0	2.1	1.5
Δx_{max}^i (%)	8	7.5	8.2	5.6	7.6	7.2	4.1	7.1	5.9

Table 3.1 Test number and conditions: number of fibres N and fibre aspect ratio β in the investigated suspensions, initial strain rate D_{33}^0 used for the compression test, minimal Δx_{min}^i and maximal Δx_{max}^i recorded deviations for the position of the fibre centres of mass of fibres with respect to the affine assumption.

To prepare the fibre suspensions, fibres were cut at a constant length l from continuous wire with a razor blade at targeted aspect ratios $\beta = l/d$ (Tab. 1) to avoid blunt-ended extremities (Figure 3.1b). The suspensions were hand-made layer by layer while keeping the control of the fibre orientation. The process consisted in picking fibres with desired orientations in a thin layer of the solid gel and impregnating these fibres with a second layer of pre-heated gel at 120°C. Suspensions were fabricated in cylindrical moulds (diameter $D_0 = 14 \text{ mm}$, height $h_0 = 5 \text{ mm}$). Following this preparation method, nine samples were fabricated. For six samples, one fibre was placed in their centre with different initial orientations (θ^i, φ^i) . Three samples had five to eight fibres (Figure 3.1c), corresponding to a dilute concentration regime ($\phi \ll 1/\beta^2$), as summarized in Tab. 1.

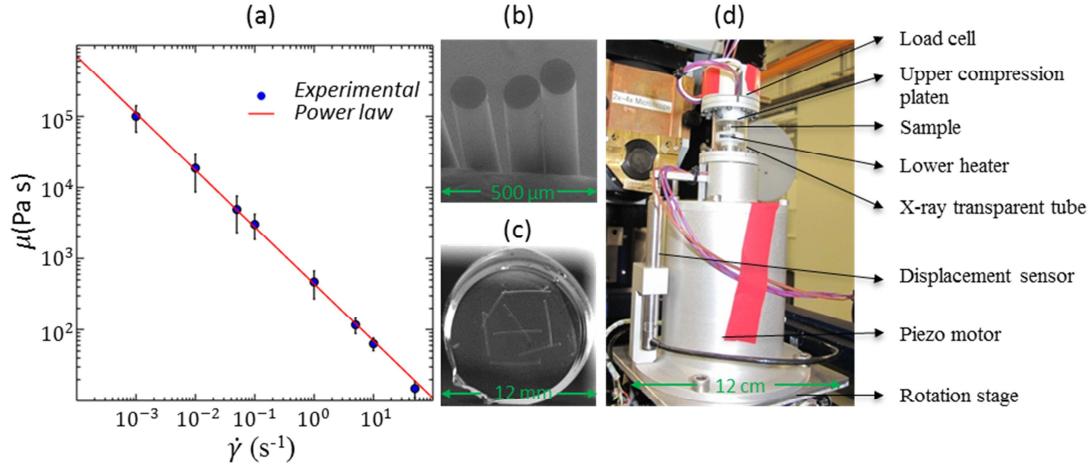


Figure 3.1 (a) Evolution of the shear viscosity of the hydrocarbon gel as a function of the shear rate at the testing temperature. (b) SEM micrograph showing the cut extremities of PVDF fibres. (c) Upper view of a fibre suspension sample with eight fibres. (d) Global view of the compression micro-rheometer.

3.2.2 Compression experiments with real-time 3D in situ X-ray imaging

The fibre model suspensions were subjected to lubricated compression loading using a specially designed compression micro-rheometer (Figure 3.1d). To perform the experiments at 50°C, heaters and thermocouples were inserted inside the compression platens. Before compression, the platens were lubricated with silicone oil, and the suspensions were subjected to a small pre-compression to ensure the contact with them. After stress relaxation and temperature homogenization (≈ 10 min), the mechanical loading was applied through a piezoelectric actuator attached to the lower compression platen. The compression tests were performed at two constant actuator velocities \dot{h} , corresponding to two initial strain rates $D_{33}^0 = \dot{h}/h_0$ along the \mathbf{e}_3 -direction (Tab. 1). A displacement sensor (Figure 3.1d) enabled the height of the suspension h and the compression strain $\varepsilon_{33} = \ln(h/h_0)$ to be precisely measured. It is important to notice that the rheology of the suspending fluid was non-linear and highly shear-thinning for the studied strain rates, as shown in Figure 3.1a, and that the studied confined flow situations were close to those encountered during forming of short fibre-reinforced composites, *i.e.*, with a poor scale separation such that $l/h = \mathcal{O}(1)$ [SS97, Dia09, SGB12].

To characterise the 3D suspension fibrous microstructures during compression, the rheometer was placed inside a synchrotron X-ray microtomograph (TOMCAT beamline, Swiss Light Source, Paul Scherrer Institut, Villigen, Switzerland). Ten scans were taken during each compression test, *i.e.*, without interrupting the compression experiment, using the following acquisition parameters for each 3D image: 601 X-ray projections (20 KeV, 400 mA) were acquired over a 180° rotation of the micro-rheometer for a short scanning time of 0.42 s. Using the Paganin reconstruction mode and suitable reconstruction algorithms, 3D images of scanned specimen were obtained with a size of $1776 \times 1776 \times 450$ voxel and a voxel size of $11 \times 11 \times 11 \mu\text{m}^3$.

3.2.3 Image analysis and data post-treatment

By using standard filtering and thresholding operations (implemented into the software Fiji), 3D binarised images of the matrix and the fibrous microstructures of the suspensions were built (Figure 3.2). Then:

- To verify both the homogeneity and the incompressibility of the suspension flow, the free surface of samples was detected and followed during compression thanks to the function “Outline” implemented in Fiji, as shown in Figure 3.3a-c. This function was used for each horizontal slice in the 3D images, except for two sets of 10 slices located near the compression platens where it was difficult to distinguish the suspensions because of the metallic nature of the platens. This enabled the sample mean surface \bar{S} perpendicular to the compression axis \mathbf{e}_3 to be determined, as well as the macroscale sample Hencky surface strain $\varepsilon_S = \ln(\bar{S}/\bar{S}_0)$.
- Other image analysis operations were performed using the softwares Fiji, Avizo and Matlab to analyse quantitatively the evolution of the fibrous microstructure of the investigated suspensions, following the methodology reported by Latil *et al.* [LOG+11]. After segmentation, the fibre centrelines were extracted using a skeletonisation algorithm implemented in Avizo and then smoothed. This enabled the fibre orientation (tangent) vector \mathbf{p}^i , the second and fourth order orientation tensors \mathbf{A} and \mathbf{A} , and the position of the centre of mass \mathbf{x}^i of each fibre i to be calculated for each 3D image of each experiment (Figure 3.3a-b). Finally, thanks to the low concentration in fibres, it was easy to follow the trajectory of each fibre during compression experiments using a fibre centreline tracking algorithm based on a discrete correlation distance function [CLO+12].
- The relevance of Jeffery’s model was assessed, *i.e.*, we verified the validity of the affine assumption (Eq. 3.2) and the orientation equation (Eq. 3.3) for the prediction of the position of the centre of mass \mathbf{x}_{Jeff}^i and the orientation vector \mathbf{p}_{Jeff}^i of each fibre i . We also estimated the second order fibre orientation tensor \mathbf{A}_{Jeff} directly from Eq. 3.5 and the orientation vectors \mathbf{p}_{Jeff}^i . For that purpose, Eqs. 3.2-3 were numerically integrated using the fourth order Runge-Kutta scheme implemented in Matlab, assuming that the macroscale suspension flow was homogeneous (point 1 in section 3.3), incompressible ($\nabla \cdot \mathbf{v} = 0$, point 1 in section 3.3) and irrotational ($\boldsymbol{\Omega} = \mathbf{0}$). Further, the strain rate tensor \mathbf{D} was estimated from the height of the suspension h measured using the 3D images with a maximum error of ± 1 voxel. As initial conditions, the positions \mathbf{x}_0^i , the orientation vectors \mathbf{p}_0^i (and the tensor \mathbf{A}_0) were obtained from the images corresponding to the initial undeformed configurations, with maximum errors of ± 1 voxel and $\pm 0.15^\circ$, respectively. Then, two thousand integrations per experiment were computed using errors associated with h , \mathbf{x}_0^i , and \mathbf{p}_0^i that were randomly chosen within the aforementioned ranges. This enabled the errors on the corresponding integrated parameters to be estimated. Here, the errors were considered to correspond to the difference between the 2nd and 98th percentile values of the computed distributions.

3.3 Results and discussion

Experimental results are shown in Figures 3.2-7. Figure 3.3 allows us to characterise the flow homogeneity and the incompressibility of samples during compression. Figure 3.3a-c show 3D and 2D views of the free surface of one typical sample during compression, whereas Figure 3.3d shows the evolution of the sample surface strain ε_S as a function of the compression strain

$|\varepsilon_{33}|$. Figure 3.4a-b show the paths \mathbf{x}^i followed by each fibre centre of mass during suspension flow, for sample 1 with only one fibre (Tab.1) and for sample 9 with eight fibres (Tab. 1), respectively. For comparison purposes, these figures also show the paths \mathbf{x}_{Jeff}^i predicted by Jeffery's model (Eq. 3.2). In addition, Figure 3.4c-d show the evolution of the deviation $\Delta x^i = \|\mathbf{x}^i - \mathbf{x}_{Jeff}^i\|/h_0$ of the experimental position of the fibre centre of mass \mathbf{x}^i with respect to \mathbf{x}_{Jeff}^i , for samples 1 to 6 (containing only one fibre) and for sample 9, respectively. The minimal Δx_{min}^i and maximal Δx_{max}^i values of this deviation are also given in Tab. 1 for all tested samples. The two graphs in Figure 3.5 show the evolution of the orientation angles θ^i and φ^i as a function of the compression strain $|\varepsilon_{33}|$ for samples 1 to 6. For comparison purposes, the angles predicted by Jeffery's model (Eqs. 3.2-3) are also plotted in this figure. Figure 3.6 is similar to Figure 3.5 but shows data for samples 7 to 9, *i.e.*, samples containing five to eight fibres (Tab.1). Lastly, Figure 3.7 gives the evolution with $|\varepsilon_{33}|$ of the experimental and predicted diagonal components a_{ii} of the second order fibre orientation tensor \mathbf{A} during the compression of samples 7 to 9.

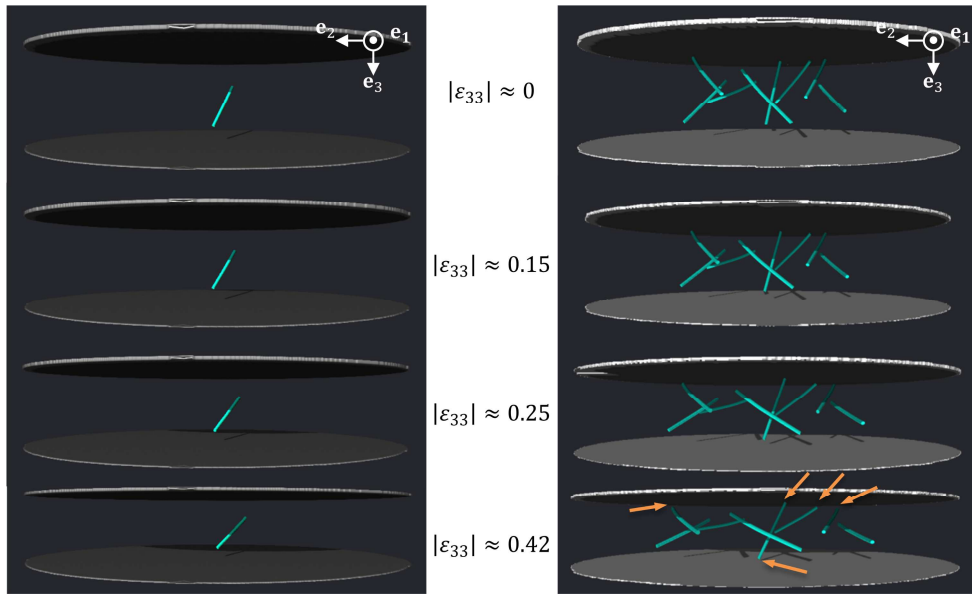


Figure 3.2 3D segmented images obtained at various compression strains $|\varepsilon_{33}|$ showing the motion of the fibres of samples 1 (left) and 9 (right) during compression. The orange arrows point to the extremity of fibres that are very close to the compression platens. The orbits of these fibres deviate from the predictions of Jeffery's model.

From these figures, some comments can be made:

1. The 3D views in Figure 3.3a-b and the vertical profiles of the evolving free surface in the $(\mathbf{e}_2, \mathbf{e}_3)$ plane (Figure 3.3c), which nearly kept their initial dimensionless shape during flow prove that due to the lubrication of the compression platens, the flow of samples was practically homogeneous and exhibited compressive plug flow velocity profiles [BC86] with negligible transverse shear stresses. Thus, as a first approximation, the macroscale stress states during the experiments were considered to be homogeneous simple compression stress states. In addition, Figure 3.3d shows that the macroscale Hencky surface strain ε_s was close to the absolute value of the macroscale Hencky compression strain $|\varepsilon_{33}| = -\varepsilon_{33}$. Consequently, the compression flow of the suspensions was considered to be incompressible

since $\text{tr}(\boldsymbol{\varepsilon}) = \varepsilon_S + \varepsilon_{33} \approx 0$ ($\boldsymbol{\varepsilon}$ being the Hencky strain tensor). Lastly, we also verified that the flow of samples in the perpendicular directions to the compression axis was isotropic. Therefore, these observations show (i) that a proper estimate of the macroscale strain rate tensor \mathbf{D} for these experiments was:

$$\mathbf{D} = \frac{\dot{h}}{h} \left(\mathbf{e}_3 \otimes \mathbf{e}_3 - \frac{1}{2} \mathbf{e}_1 \otimes \mathbf{e}_1 - \frac{1}{2} \mathbf{e}_2 \otimes \mathbf{e}_2 \right), \quad (\text{Eq. 3.6})$$

and (ii) that, in the dilute concentration regime, fibre scale flow perturbations induced by the presence of fibres did not induce noticeable macroscale flow modifications, whereas the opposite trend was obtained for concentrated fibre suspensions in similar compression conditions [DVO+07].

2. Figure 3.4a-b show that the fibres were transported with the non-Newtonian suspending fluid during compression experiments: the positions of their centre of mass went towards the upper compression platen and progressively moved parallel to the $(\mathbf{e}_1, \mathbf{e}_2)$ plane. As evident from these graphs, these motions were almost affine functions of the macroscale suspending fluid kinematics as the experimental trajectories and their predictions using Eq. 3.2 with adequate initial and boundary conditions nearly coincided. Besides, as shown quantitatively in Figure 3.4c-d and given in Tab. 1, the deviations Δx^i of the experimental data from the affine assumption increased with the compression strain $|\varepsilon_{33}|$, but never exceeded 9%, regardless of the sample. It was difficult to determine whether these deviations had physical origins such as, for example, small shear flow mechanisms related to non-ideal lubrication

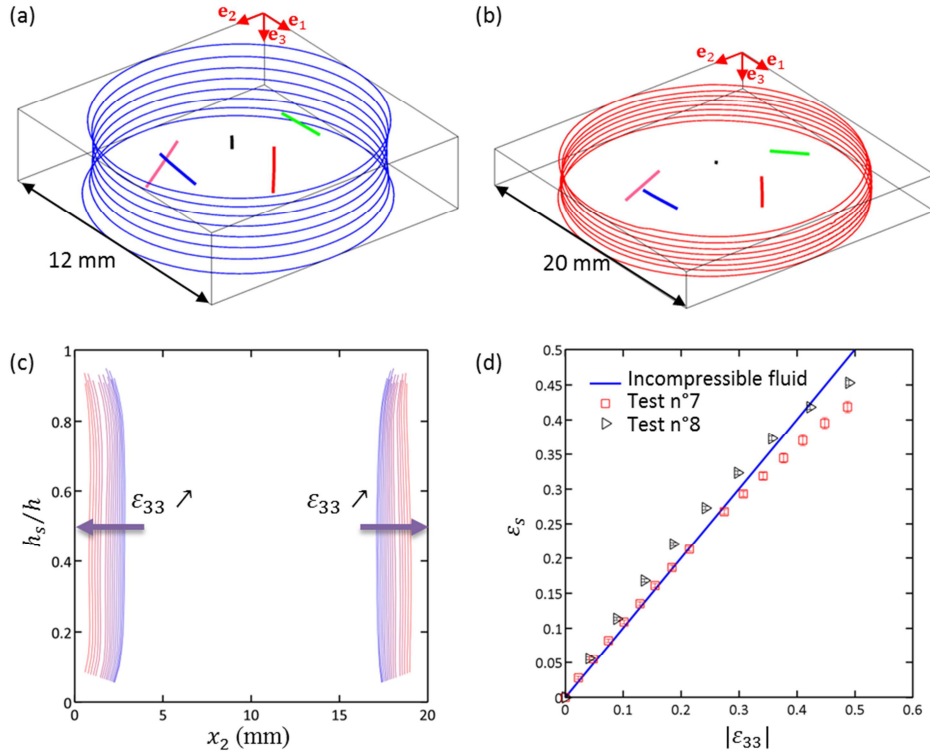


Figure 3.3 (a) 3D view of the free surface and the fibre centrelines of a typical sample (sample 7) before (a) and after (b) a compression test. (c) 2D view in the $(\mathbf{e}_2, \mathbf{e}_3)$ plane showing the evolution of the normalized profiles of the free surface of the same sample. (d) Evolutions of the surface strains ε_S with $|\varepsilon_{33}|$ for samples 7 and 8 during compression.

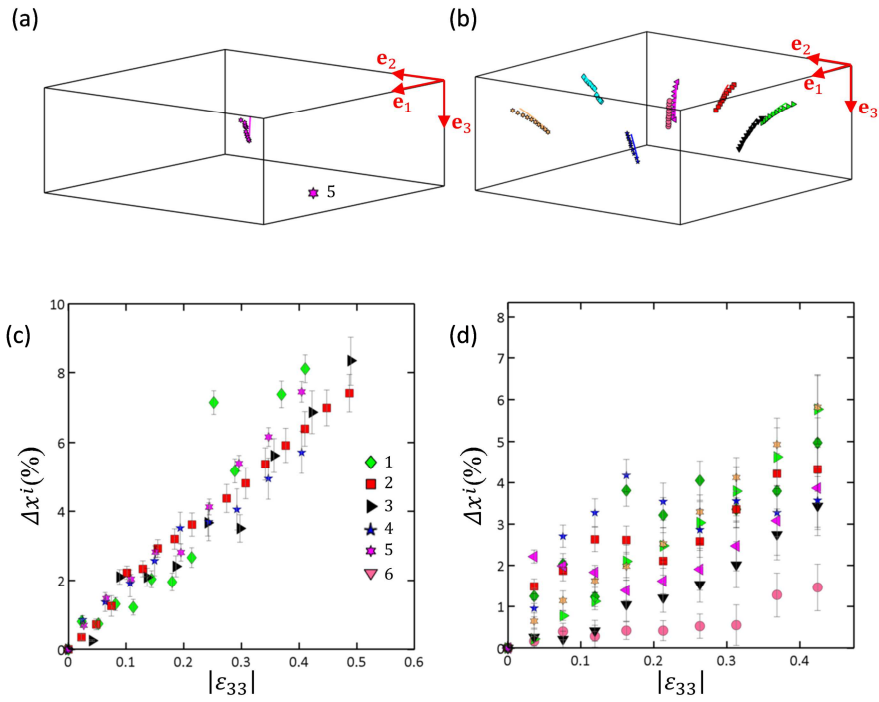


Figure 3.4 Experimental (marks) and predicted (lines) trajectories of the fibrecentres of mass of fibres during compression of samples 1 (a) and 9 (b). Evolutions of the deviations Δx^i as a function of the compression strain $|\epsilon_{33}|$ for samples 1 to 6 containing one fibre (c) and for sample 9 containing eight fibres (d).

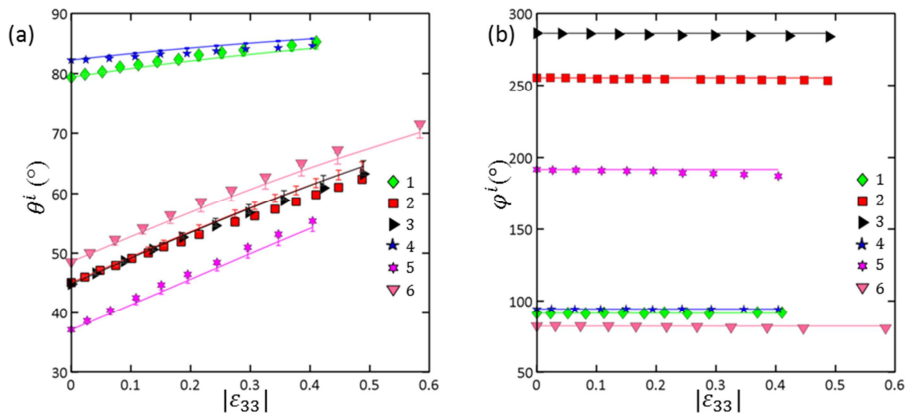


Figure 3.5 Evolutions of the experimental (marks) and predicted (lines) angles θ^i (a) and φ^i (b) as a function of $|\epsilon_{33}|$ for samples 1 to 6.

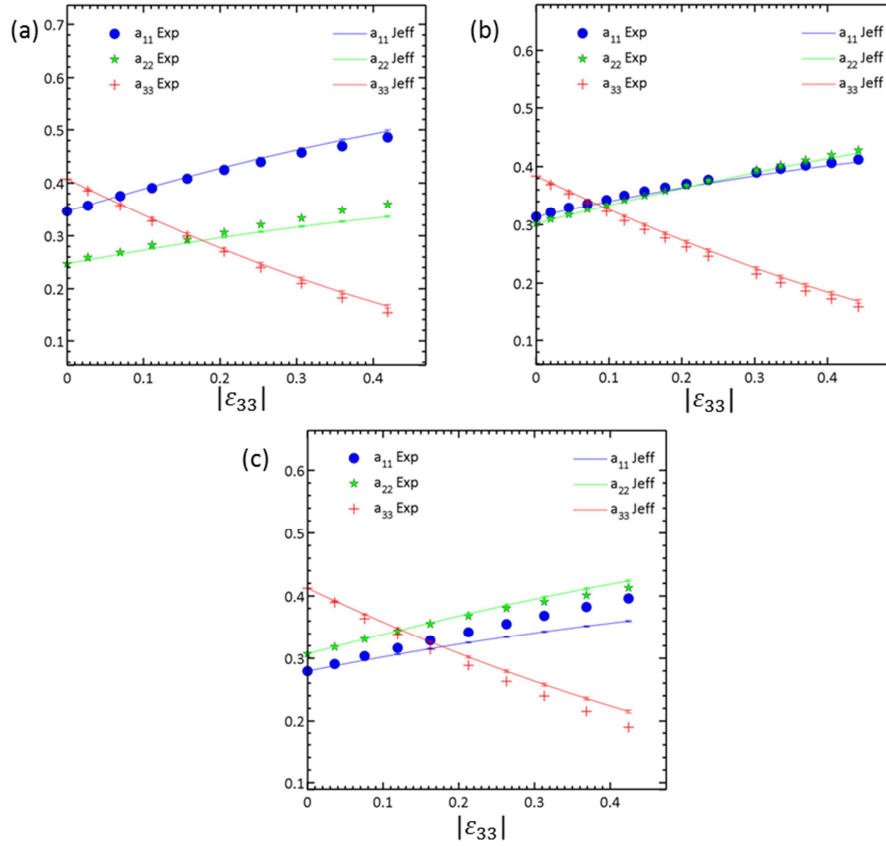


Figure 3.6 Experimental (marks) and predicted (lines) diagonal components a_{ii} of the second order fibre orientation tensor \mathbf{A} as a function of $|\epsilon_{33}|$ for samples 7 (a), 8 (b) and 9(c).

conditions between the samples and the compression platens, or were induced by experimental artefacts such as, for example, unexpected rigid body motions of compressed samples. Anyway, for the investigated experimental conditions, these deviations were limited and it was fair to conclude that the translations of fibres followed, at least at first order, the affine assumption in Eq. 3.2 of Jeffery's model. For suspensions with several fibres (samples 7 to 9), this tends to prove that the (long range) hydrodynamic interactions between the fibres themselves or between the fibres and the compression platens had rather weak consequences on the fibre translations.

- Figure 3.5 reveals that during compression of the samples with one centred fibres, fibres progressively aligned along the $(\mathbf{e}_1, \mathbf{e}_2)$ plane, regardless of their initial orientation and aspect ratio, and the initial macroscale strain rate. The out-of-plane angles θ^i gradually increased with increasing the compression strain $|\epsilon_{33}|$, the increasing rate being higher when the initial angles θ_0^i were far from 90° . In parallel, it is interesting to note that the in-plane angles φ^i practically remained unaffected during the same compression experiments. In addition, it is also worth noting that the experimental values of the angles θ^i and φ^i were very close to those predicted by Jeffery's model (Eqs. 3.2-3). Indeed, the maximum deviations of the angles θ^i and φ^i from the model predictions remained below 1° and 2° , respectively. Combined with results discussed in the previous point, these results validate, at first order, the use of Jeffery's theory for the prediction of the motion of single, centred, straight and cylindrical fibres within a shear-thinning fluid compressed in a narrow gap with $l/h = \mathcal{O}(1)$.

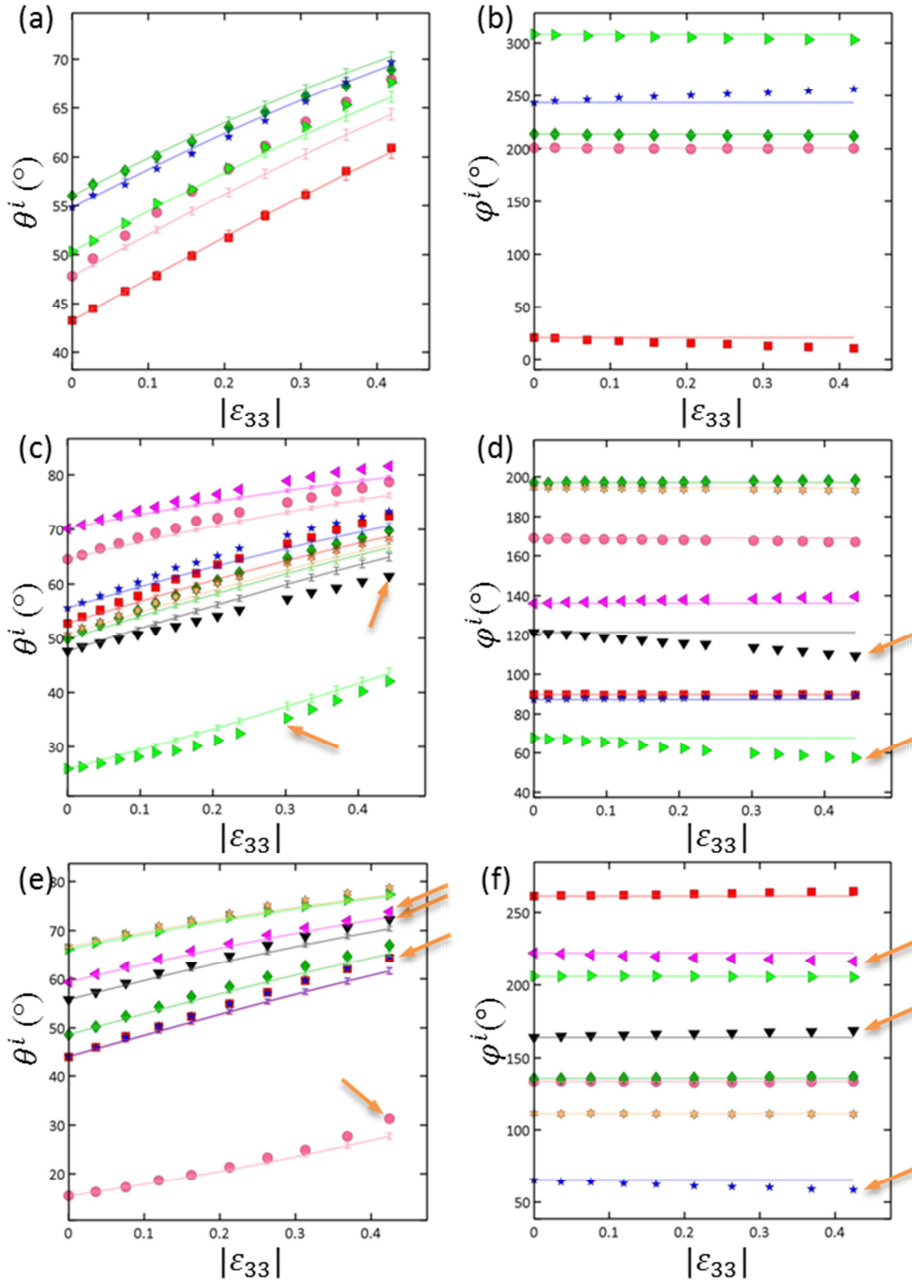


Figure 3.7 Experimental (marks) and predicted (lines) evolutions of the fibre orientation angles θ^i (left) and φ^i (right) as a function of $|\varepsilon_{33}|$ for samples 7 (a-b), 8 (c-d) and 9(e-f). The orange arrows point to fibres that are close to one of the compression platens.

4. Regardless of the investigated fibre aspect ratio and strain rate, the orientation results obtained for dilute suspensions with several fibres were qualitatively similar, as illustrated in Figure 3.6. The angles θ^i increased with increasing $|\varepsilon_{33}|$ and the angles φ^i remained more or less constant, except for some fibres for which the angle φ^i slightly varied with $|\varepsilon_{33}|$ (these fibres are indicated by the arrows in Figure 3.7). However, this figure clearly shows that Jeffery's predictions were less relevant than those obtained for single centred fibres (Figure 3.5). The same trend is observed in Figure 3.6 for the evolution of the diagonal components a_{ii} of \mathbf{A} (note that the non-diagonal components that were very small were omitted in the

graph for clarity). This figure shows that Jeffery’s predictions underestimated the overall fibre orientation rate. They were still satisfying for samples 7 and 8, and rather far from experiments for sample 9. Accounting for the results discussed in point 3, the origins of these deviations could rather be related to hydrodynamic interactions of the considered fibres (i) with their neighbours and/or (ii) with the compression platens, *i.e.*, the so-called confinement effects, than to the shear-thinning and non-Newtonian behaviour of the suspending fluid. The first type of hydrodynamic interactions is expected to be weak since the studied suspensions belonged to the dilute regime (Tab. 1). The 3D images enabled us to evidence that the second type of interactions occurred. This was done by detecting fibres that were in the vicinity of the compression platens, *i.e.*, when the distance of the fibres from the platens was once to twice the fibre diameter d , which corresponds to a typical distance below which short range hydrodynamic interactions could occur. These fibres and the evolution of their corresponding angles are shown in Figures 2 and 7 with orange arrows. As an example, the evolution of the angle θ^i of the fibre represented with pink circles in Figure 3.7e exhibited a departure from its initial Jeffery-like trajectory for $|\varepsilon_{33}| > 0.3$. This phenomenon occurred when this fibre was very close to the two compression platens (see the two arrows that points to this fibre in Figure 3.2b), thus inducing a departure of the fibre orientation from a Jeffery-like orbit. As shown in Figure 3.6, the highest deviations from the Jeffery’s predictions for the angles θ^i were higher for sample 9 that had several fibres close to the compression platens than for sample 8, whereas there was no fibre close to the platens in sample 7.

5. It is interesting to note that within the investigated strain rate range, the kinematics of fibres was nearly independent of the macroscale compression strain rate. Indeed, when fibres were sufficiently far from the wall, changing the compression strain rate by a factor of ten did not drastically alter the trajectory of the centre of mass of the fibres, nor their orientation evolution which practically followed the Jeffery’s orbits (see Figs. 3.4-7). These trends differ from those observed or simulated for fibres immersed in sheared viscoelastic fluids [ICK96], [IKC96], [DM14].

3.4 Conclusion

We performed rheometry experiments on model dilute fibre suspensions with a non-Newtonian suspending fluid, by using lubricated compression experiments coupled with unprecedented real-time 3D *in situ* observations of the fibrous microstructures. This was made possible using a micro-rheometer mounted in a synchrotron X-ray microtomograph enabling both very short scanning times, *i.e.*, less than 0.5 s, and a high spatial resolution. This method was particularly efficient to analyse the fibre kinematics of each individual fibre in these model systems, the microstructures, the rheology, and the confined flow conditions of which were close to those encountered in short fibre-reinforced polymer composites during the forming stages. Regardless of the investigated conditions, *i.e.*, various fibre aspect ratios and initial orientations, we found that Jeffery’s theory and its related affine assumption led to rather good estimates of the kinematics of one fibre centred in a non-Newtonian shear-thinning fluid compressed in a confined region. These results were not affected by changing the macroscale compression strain rate. Thus, at least for the investigated experimental conditions, it is fair to conclude that shear-thinning and confinement effects had minor effects on the kinematics of single fibres,

provided that the distance between fibres and the walls remained sufficiently large (approximately above once to twice the fibre diameter). When the last condition was fulfilled, these results were still relevant for dilute suspensions with several fibres, even though the motions of these fibres could be slightly altered by weak long range hydrodynamic interactions between fibres. Otherwise, more important deviations in the theoretical predictions occurred due to short range interactions of some fibres with the walls. These results must be confirmed by performing for instance fibre scale fluid flow simulations using dedicated CFD softwares [PBB+07]. They must also be completed for higher fibre concentration regimes to build relevant constitutive theories. Confinement effects such as those that have been revealed in this study are rarely taken into account in constitutive rheological theories [SS97, OS14, PSAC+16], although they often occur in industrial processing conditions.

Acknowledgements – T. Laurencin gratefully acknowledges the LabEx Tec21 (Inv. d’Avenir - grant agreement n°ANR-11-LABX-0030) for his PhD research grant. We acknowledge the Paul Scherrer Institut, Villigen, Switzerland for provision of synchrotron radiation beamtime at the beamline TOMCAT of the Swiss Light Source.

Chapitre 4. Simulation de la compression de suspensions diluées

Sommaire

4.1 Introduction	63
4.2 Modelling fibre suspensions in squeeze flow	66
4.2.1 Numerical approach, modelling equations and geometry	66
4.2.2 Numerical resolution.....	67
4.2.3 Boundary conditions.....	69
4.2.4 Purely squeeze flows – Rheology like computations.....	70
4.3 Experiments.....	72
4.4 The dumbbell approach for a rod	72
4.5 Numerical results : motion of single fibres	75
4.5.1 Influence of the fibre geometry and the fluid rheology.....	75
4.5.2 Influence of boundary conditions (departure from purely slip compression)	77
4.5.3 Confinement effects	78
4.6 Experimental and numerical comparisons.....	81
4.7 Concluding remarks	85

Direct Numerical Simulation of fibre kinematics in dilute non-Newtonian fibre suspensions during confined and lubricated squeeze flow

T. Laurencin^{a,b,c,d}, P. Laure^{b,c*}, L. Silva^d,
L. Orgéas^a, P.J.J. Dumont^e, S. Rolland du Roscoat^a

^a Univ. Grenoble Alpes, CNRS, 3SR Lab, F-38000 Grenoble, France

^bUniv. Côte d'Azur, CNRS, Lab. J.A.Dieudonné, Parc Valrose F-06000 Nice, France

^cMines ParisTech, PSL-research University, CEMEF, Sophia-Antipolis, France

^dEcole Centrale de Nantes, ICI, 1 rue de la Noë F-44000 Nantes, France

^eUniv. Lyon, LaMCoS, INSA-Lyon, CNRS UMR5259, F-69621, Lyon, France

Abstract

The mechanical properties of short fibre-reinforced polymer composites largely depend on the distribution and orientation of fibre which drastically changes during the forming of composites. To analyse the flow-induced microstructures, we previously conducted 3D in situ compression experiments using model non-Newtonian dilute fibre suspensions that were imaged by fast X-ray microtomography. In this study, these experiments were numerically simulated with an Eulerian multi-domain FE code. The experimental kinematics of fibres were compared to the predictions of Jeffery's model and to numerical simulations. In most cases, the Jeffery's equation agrees well with the experimental and numerical data. However, for some fibres closed to compression platens, deviations between the experimental and numerical results from the theoretical predictions were observed. Adopting the dumbbell approach to modelled fibre kinematic [BAH87] and pursuing the work of Perez et al. [PSAC+16], an extension of Jeffery classical model is proposed to take into account for confinement effects under squeeze flow with perfect slip condition.

Keywords: Fibre suspension; Direct simulation; Confinement effects; Confined Jeffery's model.

4.1 Introduction

Knowledge of the evolution of the distribution and the orientation in short fibre-reinforced polymer composites is essential to control the functional and mechanical end-properties of the composite parts. These composites can have a high volume fraction of fibres, ϕ , from 0.005 to 0.5, and, performance can be related to microstructural properties such as fibre shape, slender, concentration distribution and orientation [FL96, DMT06, Adv94]. During composite forming, fibre-reinforced polymer composites exhibit a complex rheology which is typical of fibre suspensions. In the meantime, the distribution and the orientation of fibres drastically change. Also, considered flows often occur in confined regions for which the typical size h is of the same order of magnitude as the size of the heterogeneity, the fibres length l [SS97, Dia09, SGB12]. To quantify a flow confinement, a parameter can be defined as $H = h/l$. The confinement may lead to hydrodynamic or mechanical interactions between fibres and solid boundaries which possibly play an important role on the evolving fibre kinematics during forming. Thus, these

effects should be considered when developing model to simulate the processing of short fibre-reinforced polymer composites. Unfortunately, because of numerical difficulties to properly simulate the evolving fibrous microstructures and access to flow mechanisms at fibre scale their rheology are still not very well modelled.

Fibre kinematics under various flow have been widely studied starting from the fundamental work of Jeffery [Jef22], on an ellipsoidal particle immersed in an incompressible Newtonian fluid flowing at low Reynolds number in infinite flow field. The theory assumes that the translation of the considered particle is an affine function of the macroscale velocity gradient. Besides from the knowledge of the macroscale vorticity tensor $\mathbf{\Omega}$ and the strain rate tensor \mathbf{D} , the particle orientation of the unit tangent vector \mathbf{p} can be predicted from the expression of the rotation rate $\dot{\mathbf{p}}$:

$$\dot{\mathbf{p}} = \mathbf{\Omega} \cdot \mathbf{p} + \lambda_b (\mathbf{D} \cdot \mathbf{p} - (\mathbf{p} \cdot \mathbf{D} \cdot \mathbf{p}) \mathbf{p}) \quad \lambda_b = 1 - \frac{16.35 \ln \beta}{4\pi\beta^2} \quad (\text{Eq. 4.1})$$

where λ_b is the cylindrical shape factor expressed by Brenner [Bre74] and $\beta = l/d$ is the aspect ratio (with the particle length l and diameter d). The relevance of Jeffery's model was experimentally confirmed by several authors [Tay23, Bin39, TM51, PKC00], mostly under shear flow. In compression flow ($\mathbf{\Omega} = \mathbf{0}$, and $\mathbf{D} = \dot{\epsilon}_{33}(\mathbf{e}_3 \otimes \mathbf{e}_3 - 1/2 \mathbf{e}_1 \otimes \mathbf{e}_1 - 1/2 \mathbf{e}_2 \otimes \mathbf{e}_2)$), a solution of Jeffery's equation can be analytically expressed for the polar angle θ evolution ($\mathbf{p} = \sin\theta \cos\varphi \mathbf{e}_1 + \sin\theta \sin\varphi \mathbf{e}_2 + \cos\theta \mathbf{e}_3$) when the compression rate, $\dot{\epsilon}_{33}$, is constant (the azimuthal angle φ being constant):

$$\tan(\theta) = \tan(\theta_0) e^{-3\lambda_b \dot{\epsilon}_{33} t/2} \quad (\text{Eq. 4.2})$$

With θ_0 and φ_0 being respectively the initial angles and ϵ the strain. The relation Eq. 4.2 indicates that the angle θ tends towards 0 or 90 depending on whether the elongation rate is positive or negative.

Jeffery's model has largely been validated and used for dilute Newtonian fibre suspensions when the volume fraction of fibres $\phi \ll 1/\beta^2$ [PKC00, AM68, RKC95, SRFY13]. The model was then enriched for semi-dilute fibre suspensions, *i.e.*, when $1/\beta^2 \ll \phi \ll 1/\beta$ to take into account for long range hydrodynamic fibre interactions [FT84, Bay91, Koc95, PTFTZ02, PT09]. In the concentrated regime the model fails due to short range (non-)hydrodynamic interactions between fibres which play a major role on rheological behaviour of the suspension [Bay91, DVO+07, LDO+08, DLOF09].

All the aforementioned papers studied the rheological behaviour of suspensions with a Newtonian suspending fluid. The effects of non-Newtonian rheology of the suspending fluid on the kinematics of single ellipsoidal particle under simple shear flow have been studied by a few authors [BGM75, ICK96, ICK96, JSF90, GSMV08]. Their experimental observations revealed a departure from Jeffery's orbits in sheared viscoelastic fluid with a bistability of particle orientation which is dependent on the elasticity of the fluid. At low Deborah number, fibre aligns along the vorticity direction [BGM75, ICK96]. Increasing Deborah number leads to an orientation transition to the shear direction [ICK96, JSF90, GSMV08]. In between, stable orientations have been observed [BGM75, ICK96] but could not be confirmed in dilute regime [GSMV08]. Theoretical works using second order suspending fluids in the limit of low Weissenberg number were developed by Leal [LEA75] for the motion of rod with a Rivlin-

Ericksen fluid model, and Brunn [Bru77] for the motion of transversely isotropic particle with a Guisekus fluid model. Thus, Jeffery’s model was enriched with a first order non-Newtonian correction. In the view of the difficulty in determining the sixth order of the orientation distribution function involved in Brunn’s model, Borzacchiello and *al.* [BACCK16] developed a simplified model consisting in enriching the velocity gradient by introducing a first-order perturbation term due to the presence of the particle and the non-Newtonian fluid behaviour (Guisekus fluid model in the limit of low Weissenberg number). The effective velocity gradient is then used to extended Jeffery and Folgar and Tucker models. Qualitatively, the predictions of the model are in agreement with experimental observations [IKC96] and direct numerical simulations [GD14]. Very few experimental, theoretical, and numerical works account for the shear thinning behaviour of the suspending fluid under compressive or elongational flow [SRFY13, DVO+07] despite these features are prone to occur during the processing of short fibre-reinforced polymer composites. In addition, the confinement effects are rarely analysed, whereas confinement, intervenes in numerous industrial processes such as molding of SMC or injection of short fibre-reinforced polymer composites [SS97, SGB12, Dia09].

Jeffery-based theories were established for good scale separation conditions, i.e., when the size of fibres is small compared with the typical size of flowing samples. Unfortunately, departures from the Jeffery’s trajectories and orbits were reported for fibres that interacted with mould walls in Newtonian [RH77, MAR01, CLS06, Hol07] and non-Newtonian suspending fluid [SC90]. Various kinematics differing from the classical predictions of Jeffery had been observed such as “glancing” [RH77] “pole vaulting” [SC90] or “stabilizing effect” [MAR01]. To the best of the authors’ knowledge, only a few authors model the collision influence on both translational and rotational motion of fibre under shear flow immersed in a Newtonian suspending fluid but do not take into account hydrodynamic confinement effects. They proposed direct modification on Jeffery’s equation [OS14, PSAC+16] and consider physical contact between rods and gap walls through the introduction of the contact force ensuring wall impenetrability. Lastly, confinement effects have rarely been studied for non-Newtonian suspending fluids [SC90], and never been analysed for elongational or compression flows.

Finally, the authors would like to point out that in most of experimental observations of fibre kinematics 2D approaches were employed such as optical techniques [Tay23, Bin39, TM51, AM68, FT84, SKC92, PKC00, YMN02, YKM04, DVO+07], 2D wide-angle X-ray diffraction [MW84], high speed X-rays phase-contrast 2D imaging [SRFY13]. All these techniques do not offer real 3D characterisation of fibres and their kinematics. Following recent advancements of 3D imaging (with X-ray microtomography) [LOG+11, ODV+12, WBB+12, SKE+13], we previously [LOD+16] used real time and in situ synchrotron X-ray microtomography to assess 3D fibre kinematics in dilute suspensions during confined and lubricated compression flow. Thanks to proper image analysis, the flow front was followed and the kinematic of fibres was compared to Jeffery’s theory. The study leads to the conclusion that shear-thinning and confinement effects have minor impacts on fibre kinematics of fibres only if the fibre/fibre and fibre/wall distances remain sufficiently large (above two times the fibre diameter). In this paper, we would like to model these experiments by using direct numerical simulation which takes account for the initial geometry of the fibrous microstructure, experimental boundary conditions and the shear-thinning behaviour of the suspending fluid. Behaviour of particles in elongational flows can be studied by using direct numerical simulation. Previous studies on planar elongational flow introduce the concept of an extensional bi-periodic domain. These

studies can account for viscoelastic surrounding fluid (Giesekus model), however they seem restricted to 2D configurations and spherical (rather cylindrical in 3D) particles [HH06, DMHP07, DMHP08]. Thus, we propose here to check the ability of squeeze flows to describe the evolution of particle orientation in an elongational flow and more realistic confined configuration than those reported in the literature [HH06, DMHP07, DMHP08]. Thus, we first recall briefly the geometry allowing to get a perfect squeeze fluid flow and the numerical approach based on immersed domain methods which easily allows dealing with a multiphase problem. Then, experiments which have motivated this work are reminded and summarized. The analytical dumbbell approach is presented in the next section [BAH87, BCK15, Per16] and it is further extended and to model with fibre/wall contacts and power-law fluids. The first numerical computations look at the influence of fibre geometry, power-law indexes and slip boundary conditions on fibre kinematics. Then, comparisons between predictions of dumbbell model and numerical computations are made in the case where fibre enters in contact with compression platen(s) during suspension compression. Finally, experimental measurements are compared with the predictions of the numerical simulations and dumbbell model.

4.2 Modelling fibre suspensions in squeeze flow

4.2.1 Numerical approach, modelling equations and geometry

The coordinates system and domains used to describe numerically the squeeze flow apparatus are shown in Figure 4.1. The fluid cell was located between two parallel rigid platens (die and punch) and its dimensions were denoted h and R for its height and radius respectively. Fibres of orientation vectors \mathbf{p}_i and centre of masses G with a position \mathbf{x}_i were placed inside the suspending fluid. On the surface of each platen, thin viscous layer was added to reproduce friction from perfect slip to no-slip condition at the fluid/mould interface. Compression flow was imposed through the motion of the upper platen $\mathbf{u}(x, y, h) = (0, 0, \dot{h})$ with an imposed velocity $\dot{h} < 0$ such that, the compression strain $\dot{\epsilon}_{33} = \dot{h}/h = cst$ while the lower platen stayed fixed as depicted in Figure 4.2b.

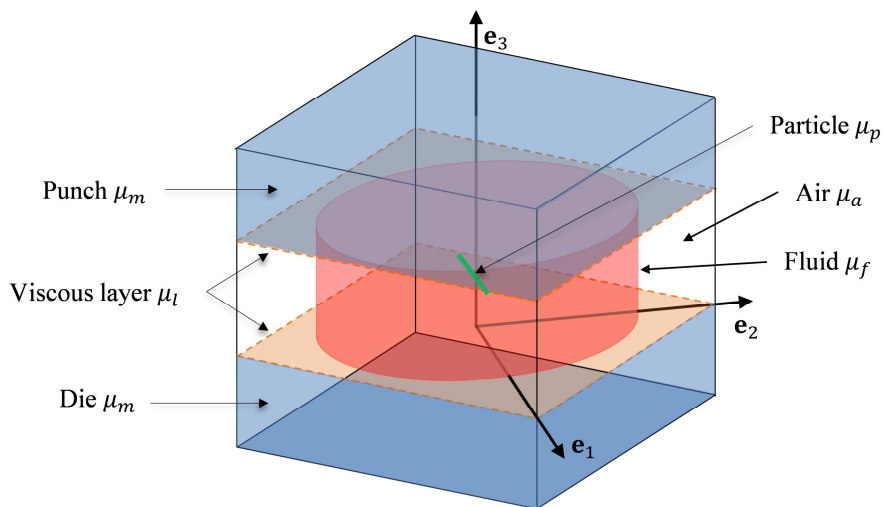


Figure 4.1 Multi-domain approach in immersed domain methods: coordinates and domains used to describe axisymmetric squeeze flows; each domain can be related to a different viscosity.

We considered a computational domain Ω composed of fibres, fluid, air and compression platens. All these phase were first assume to behave as incompressible fluids with proper constitutive equations kinematics constrain. By neglecting the air, fluid and particle inertia and assuming that all of these phases were incompressible, the overall motion was ruled by the following momentum and mass conservation equations:

$$\begin{cases} \nabla \cdot \boldsymbol{\sigma} = \mathbf{0} \\ \nabla \cdot \mathbf{v} = 0 \end{cases} \quad \text{in } \Omega \quad (\text{Eq. 4.3})$$

where $\boldsymbol{\sigma}$ is the Cauchy stress tensor and \mathbf{v} the velocity field. The proposed monolithic formulation consists in finding the velocity \mathbf{v} , the incompressibility pressure p all over the global domain Ω . The system is closed by developing the behaviour laws for each phase and by subjecting them to proper boundary conditions described thereafter.

In the suspending fluid domain Ω_f , the stress tensor took the expression of a first order fluid:

$$\boldsymbol{\sigma}_f = -p\mathbf{I} + 2\mu_f\mathbf{D} \quad (\text{Eq. 4.4})$$

where \mathbf{I} is the identity tensor. The fluid viscosity μ_f followed a shear-thinning behaviour described by a power-law fluid:

$$\mu_f = K\dot{\gamma}^{n-1} \quad (\text{Eq. 4.5})$$

where K is the consistency, n the power-law index and $\dot{\gamma}$ is the generalized shear rate defined as: $\dot{\gamma} = \sqrt{2\mathbf{D}:\mathbf{D}}$.

Fibres were considered as rigid materials. Thus, in the fibre domain, the previous Stokes equations were extended by adding a Lagrange multiplier linked to the rigidity condition $\mathbf{D}(\mathbf{v}) = \mathbf{0}$ [CDH+10]. This is equivalent to take the stress tensor $\boldsymbol{\sigma}_p$ inside the solid domain of the form:

$$\boldsymbol{\sigma}_p = -p\mathbf{I} + 2\mu_p\mathbf{D} + \boldsymbol{\sigma}^* \quad (\text{Eq. 4.6})$$

Due to the rigid motion constraint, the two first terms have to vanish, μ_p played the role of a penalization factor and the symmetrical tensor $\boldsymbol{\sigma}^*$ is the Lagrange multiplier associated to this constraint. The air and mould viscosities were adjusted at each time step as a constant with respect to the fluid viscosity μ_f . Using respectively Eqs. 4.4,6, the air viscosity μ_a is fixed around $10^{-3} \min(\mu_f)$ in order to get plug flow motion for the air/fluid interface, whereas the solid motion inside the mould was recovered if the mould viscosity μ_m is around $10^3 \max(\mu_f)$.

4.2.2 Numerical resolution

From practical point of view, Stokes equations (Eq. 4.3) were computed in whole computational domain with a finite element method. All the domains were embedded in one mesh using the immersed volume method [CDH+10]. Air, die, punch and fluid were immersed in an Eulerian mesh as depicted in Figure 4.1, meaning that a level-set, representing a positive/negative distance to a boundary, was associated to each sub-domain. Figure 4.2a represents iso-values of fluid level-set displayed on platens and fluid domains. Using each of these functions allowed the definition of the material parameters (i.e. viscosity) as a space dependent function.

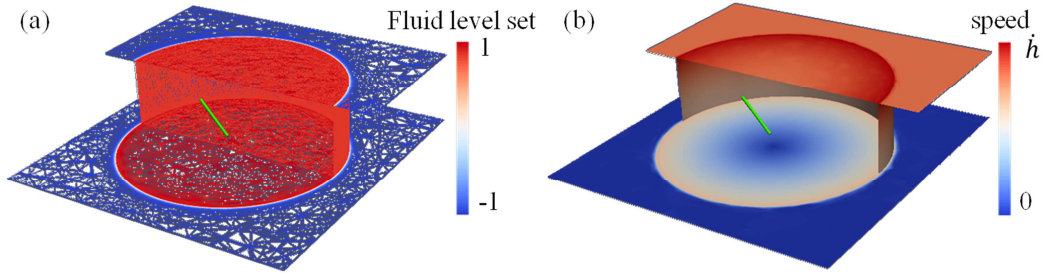


Figure 4.2(a) Iso-values of the fluid level-set are displayed on platens and fluid domains. (b) Iso-values of the velocity magnitude showed on platens and fluid domains.

The level set method is widely used [OS88] to get an implicit representation of interface between various phases. In our case, its robustness and implementation have been explained and discussed in Coupez and *al.* [CDH+10]. Let us define for a sub-domain Ω_i , the level set function $\alpha_i(\mathbf{x})$ as the distance d_i to an interface Γ_i :

$$\alpha_i(\mathbf{x}) = \begin{cases} +d_i(\mathbf{x}) & \text{if } x \in \Omega_i \\ -d_i(\mathbf{x}) & \text{if } x \notin \Omega_i \end{cases} \quad (\text{Eq. 4.7})$$

The interface Γ_i was thus defined by the zero iso-surface of the level set function. Then, the distance function associated to interface was convected by the velocity solution \mathbf{v} of the monolithic system arising from flow constitutive equation:

$$\begin{cases} \frac{\partial \alpha}{\partial t} + \mathbf{v} \cdot \nabla \alpha = 0 \\ \alpha(t = 0, \mathbf{x}) = \alpha_0(\mathbf{x}) \end{cases} \quad (\text{Eq. 4.8})$$

Each fibre i was ascribed to a levelset α_{s_i} and was modelled as a cylinder of length l and diameter d . The level set function is defined with the following expression:

$$\alpha_{s_i}(\mathbf{x}) = \begin{cases} - \left\| \mathbf{x} - \left(\mathbf{x}_i + \frac{l}{2} \mathbf{p}_i \right) \right\| & \text{if } l/2 < ((\mathbf{x} - \mathbf{x}_i) \cdot \mathbf{p}_i) \\ \frac{d}{2} - \left\| \mathbf{x} - \left(\mathbf{x}_i + ((\mathbf{x} - \mathbf{x}_i) \cdot \mathbf{p}_i) \mathbf{p}_i \right) \right\| & \text{if } -l/2 < ((\mathbf{x} - \mathbf{x}_i) \cdot \mathbf{p}_i) < l/2 \\ - \left\| \mathbf{x} - \left(\mathbf{x}_i - \frac{l}{2} \mathbf{p}_i \right) \right\| & \text{if } ((\mathbf{x} - \mathbf{x}_i) \cdot \mathbf{p}_i) < -l/2 \end{cases} \quad (\text{Eq. 4.9})$$

whereas the signed distance α_s for several particles is written as:

$$\alpha_s(\mathbf{x}) = \max_i \alpha_{s_i}(\mathbf{x}) \quad (\text{Eq. 4.10})$$

A re-initialization step was also proven to be necessary to maintain distance function geometrical properties [CDH+10]. Thus, the latter equation was slightly modified as explained in Ville and *al.* [VSC11]. Since more than one phase were involved (punch, die, air, fluid, lubrication layer, solid particles), several distance functions were used. For every phase, a local distance function $\alpha_i(\mathbf{x})$ was defined except for the air phase which was deduced by the complementary to all the other ones. This technique enabled us to associate different physical properties for the phases. Thus for a given local properties f_i in the phase i (f_i may be the viscosity, the density ...), the global property f was defined by using smooth Heaviside function H_i :

$$f(\mathbf{x}) = \sum_i H_i(\mathbf{x}) f_i + \left(1 - \sum_i H_i(\mathbf{x}) \right) f_a \quad (\text{Eq. 4.11})$$

The velocity and the pressure were computed by solving Stokes equations (Eq. 4.3). The weak formulation was solved using the augmented Lagrangian method and an Uzawa algorithm [FG83] where the fields were extended to the whole domain by using Heaviside functions. Equations were discretised using mixed finite element method named MINI-element (P1+/P1). Once the velocity field was known, the particle position and orientation were updated. Thanks to an efficient algorithm [DCLS] to interpolate the velocity and vorticity at the centre of fibres, it was possible to update the fibres positions and orientations. The evolutions of centre of mass position \mathbf{x}_i and orientation \mathbf{p}_i were deduced by integrating the following equations:

$$\begin{cases} \frac{d\mathbf{x}_i}{dt} = \mathbf{v}(\mathbf{x}_i) \\ \frac{d\mathbf{p}_i}{dt} = \frac{1}{2} \nabla \times \mathbf{v}(\mathbf{x}_i) \cdot \mathbf{p}_i \end{cases} \quad (\text{Eq. 4.12})$$

In practical, the previous equations were solved using a second order Adams-Bashforth scheme:

$$\mathbf{x}_i(t^{n+1}) = \mathbf{x}_i(t^n) + \frac{\Delta t}{2} [3 \mathbf{v}(\mathbf{x}_i(t^n), t^n) - \mathbf{v}(\mathbf{x}_i(t^{n-1}), t^{n-1})] \quad (\text{Eq. 4.13})$$

Once the new positions and orientations of the particles were determined, the solid phases were updated using the relations Eq. 4.9. In practice, the level set function was truncated in a narrow interval $[-e, e]$, by applying a hyperbolic filter $\phi = e \tanh(\alpha_{s_i}/e)$. Moreover the smooth Heaviside function also depended of this parameter e . It insured a smooth transition between the different phases and was defined as $H^e = 1/2 (1 + \phi/e)$. Finally, an optimal mesh was obtained using an anisotropic mesh adaptation based on an a posteriori interpolation error [CDH+10, Cou11]. In fact, anisotropic mesh adaptation enabled to capture high gradients of the flow solution with a good accuracy at a very low extra number of elements. Building unstructured anisotropic meshes was based on local mesh modifications, using a metric which minimized the errors on multiple fields (namely the velocity and the level set functions associated to punch, mould and fluid). An example of anisotropic mesh is plotted in Figure 4.2a. Our computations were made on a unitary cube (the equations are scaled with a reference length) with $e = 10^{-3}$ and the number of nodes ranged from 80 000 to 250 000 according to the number of fibres, the time step being equal to $0.5 \cdot 10^{-3}$ (scaled time). The calculation time was around two days on twenty processors until a Hencky strain $|\varepsilon_{33}| = 0.8$.

4.2.3 Boundary conditions

The boundary conditions imposed on the external surfaces $\partial\Omega$ of our computational domain were as follows:

$$\begin{aligned} \mathbf{v} &= (0, 0, \dot{h}) & \text{if } \alpha_{punch}(\partial\Omega) > 0 \\ \mathbf{v} &= (0, 0, 0) & \text{if } \alpha_{die}(\partial\Omega) > 0 \\ \boldsymbol{\sigma} \cdot \mathbf{n}(\partial\Omega) &= 0 & \text{if } \alpha_{air}(\partial\Omega) > 0 \end{aligned} \quad (\text{Eq. 4.14})$$

A constant velocity $\dot{h} < 0$ was imposed to the upper compression platen while the lower was fixed.

4.2.4 Purely squeeze flows – Rheology like computations.

First, we checked the ability of the numerical method to produce a homogeneous squeeze flow without fibre and with perfect slip condition at the platens. Under such circumstance, an analytical expression of the compression force F exerted by the fluid on the upper platen is given by the following relation for perfect slip condition at platen/fluid interfaces [ESB05]:

$$F = 3^{\left(\frac{n+1}{2}\right)} K |\dot{\epsilon}|^n h_0 S_0 / h \quad (\text{Eq. 4.15})$$

with S_0 the initial surface of the sample in contact with the compression platens.

To this end, numerical computations were made for a cylindrical fluid sample having initial thickness $h_0 = 7 \text{ mm}$ and radius $r_0 = 6 \text{ mm}$. In the following, the consistency K was set to an arbitrary value of $1 \text{ Pa} \cdot \text{s}^n$ and the power index n to either 1 or 0.2. The velocity \dot{h} of the upper plate was arbitrarily chosen to $-100 \text{ } \mu\text{m/s}$. Slipping condition at the platen interfaces were adjusted by changing the viscosity ratio μ_l/μ_a .

Firstly, the compression forces as function of the compression Hencky strain $|\epsilon_{33}|$ were compared to analytical solution for a viscosity ratio μ_l/μ_a equals to 0.01, 1 and 100 where μ_l is the viscosity of the viscous layer. The computed forces F were displayed as function of the Hencky strain, the ratio μ_l/μ_a respectively in Figure 4.3a-b for power-law indexes equal to 1 and 0.2. On both graphs, the computed forces increase as the viscosity's ratio increases. Analytical solutions of the force (Eq. 4.15) were plotted with dashed lines on both graphs are recovered with the ratio $\mu_l/\mu_a = 1$ independently of the power-law indexes.

Secondly, the computed mean value (labelled by $\langle \rangle$) of strain rate tensor \mathbf{D} in the fluid domain during the fluid compression was estimated and plotted as function of the viscosity ratio and power-law indexes ($n = 1$: Figure 4.3c and $n = 0.2$: Figure 4.3d). Figure 4.3c-d show that the mean compression rate $\langle |D_{33}| \rangle$ decreases as the lubrication viscosity μ_l increases. The influence is more important for power-law fluid with an index equal to 0.2. Also, a good agreement between the mean compression rate and the theoretical rate of compression \dot{h}/h was obtained with a viscosity ratio $\mu_l/\mu_a = 1$ for both power-law indexes.

Lastly, the time evolution of the fluid/air interfaces in the vertical planes were analysed as exemplified in Figure 4.4 for a power-law index equal to one with various viscosity ratio. Figure 4.4a illustrates the modification of the interface with the lubrication viscosity at $|\epsilon_{33}| \sim 0.76$: the flat vertical interface becomes round as μ_l increases due to plug flow whereas the fluid move faster near the wall as μ_l decreases. The evolution of the fluid/air interface with the viscosity ratio $\mu_l/\mu_a = 1$ is plotted in a transverse plane, $x_3 = h/2$, in Figure 4.4b and show a homogenous deformation. Time evolution of the fluid/air interface was also checked in vertical plane and attest of perfect slip conditions at the fluid/platens interfaces and homogeneous flow of the fluid cell. Simulations were also performed with various power-law indexes (0.5 and 0.8) and various compression rates ($10^{-4}, 10^{-2} \text{ s}^{-1}$) showing that ratio μ_l/μ_a must be taken equal to the unity to recover the kinematic squeeze flow kinematic with perfect slip condition at platens and rheological behaviour of power fluid.

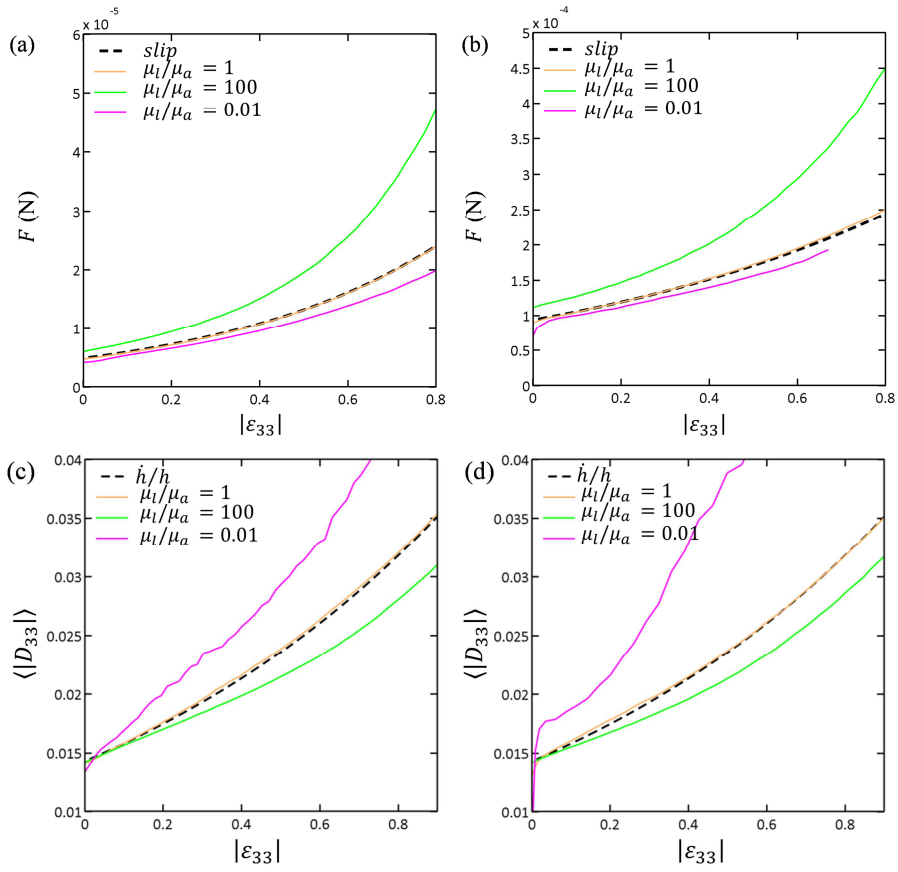


Figure 4.3 Computed (plain curves) and analytical (dashed curves) compression force (a-b) and mean compression rate $\langle |D_{33}| \rangle$ (c-d) as function of and the Hencky strain $|\epsilon_{33}|$ for various viscosity ratio μ_l/μ_a and power-law index $n = 1$ (lefts graphs) and $n = 0.2$ (right graphs).

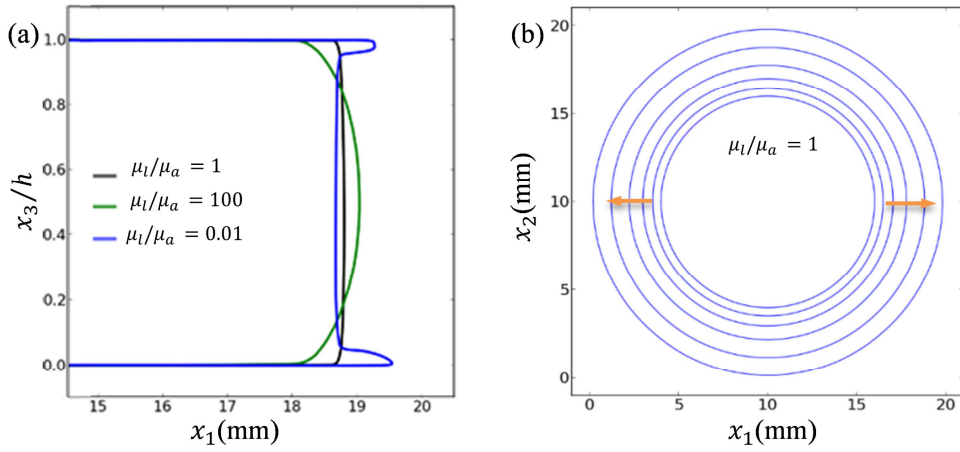


Figure 4.4 (a) Examples of air-fluid interfaces for various values of viscosity ratio μ_l/μ_a at $|\epsilon_{33}| \sim 0.76$. (b) 2D views showing the evolution in arrows direction of the profile of the free surface for $\mu_l/\mu_a = 1$; $n = 1$; $\dot{h} = 100 \mu m/s$ in the $(\mathbf{e}_1, \mathbf{e}_2)$ transverse plane at $x_3 = h/2$.

4.3 Experiments

We briefly recall here the information related to the experiment achieved in [LOD+16] that will be compared to the numerical simulations in the following. Non-Newtonian dilute fibre suspensions were prepared and subjected to lubricated compression experiments using a micro-rheometer mounted in a synchrotron X-ray microtomograph. The fluid used to make fibre suspensions was a hydrocarbon gel (paraffin). At 50°C, the gel exhibits a non-Newtonian behaviour close to the rheology of polymer matrix used in composite industries. The viscosity of the hydrocarbon gel was modelled with a shear thinning power-law (Eq. 4.5) on which the consistency $K = 440 \text{ Pa}\cdot\text{s}^n$ and the power-law index $n = 0.2$. The fibres used as reinforcement in suspensions were extracted from fluorocarbon (PVDF) continuous elastic fishing wire (diameter $d = 200 \mu\text{m}$, Young's modulus $\approx 2\text{GPa}$ and strain to break $\approx 20\%$). To learn more details about the matrix rheology or the suspension processing, readers should refer to [LOD+16]. Fibre suspensions were subjected to lubricate simple compression loading carried out at 50°C. The mechanical loading was applied through a piezo electric piston movable at constant velocities \dot{h} . The suspension flow was considered confined due to poor scale separation such that $l/h = \mathcal{O}(1)$, with l the length of fibre. 3D fibrous microstructures and the flow front of the suspension were imaged during compression by fast X-ray microtomography. Nine experiments were numerically simulated: six samples with one fibre placed in the centre of samples and different initial orientations (θ^i, φ^i) , and three samples with five to eight fibres corresponding to a dilute concentration regime ($\phi \ll 1/\beta^2$), as summarized in Tab. 1.

<i>Test number</i>	1	2	3	4	5	6	7	8	9
N	1	1	1	1	1	1	5	8	8
ϕ (%)	0.013	0.013	0.015	0.013	0.011	0.011	0.11	0.21	0.16
β	16.5	17	19.5	17.5	14.5	14.5	12.6	17.9	17.7
D_{33}^0 (s^{-1})	0.004	0.004	0.03	0.03	0.03	0.03	0.03	0.004	0.03
Δx_{min}^{Exp} (%)	-	-	-	-	-	-	2.0	2.1	1.5
Δx_{max}^{Exp} (%)	8	7.5	8.2	5.6	7.6	3.9	4.1	7.1	5.9
Δx_{min}^{Num} (%)	-	-	-	-	-	-	0.5	0.5	0.3
Δx_{max}^{Num} (%)	0.6	0.3	0.15	0.6	0.2	0.7	1.4	3	2.1

Table 4.1 Test number with their characteristics: number of fibres N and fibre aspect ratio β in the processed suspensions, initial strain rate D_{33}^0 used for the compression test, minimal Δx_{min}^i and maximal Δx_{max}^i recorded dispersion for the position of the fibre centres of mass with respect to the affine assumption.

4.4 The dumbbell approach for a rod

Numerical results presented in the next session will be also compared with analytical estimation for the kinematics of fibre in power-law fluids and in collision with compression platens.

As previously mentioned in the introduction, only a few authors modelled the collision between fibre and walls and its influence on the fibre kinematic immersed in a suspension. Recently, Perez et al. [PSAC+16] proposed a direct modification of Jeffery model in the case of a single

long rod ($\lambda = 1$) in symmetrical contact with walls and immersed in an incompressible Newtonian suspending fluid submitted to shear flow, and isothermal conditions. The developed approach is based on the rigid dumbbell model initially introduced by Bird and *al.* [BAH87]. The rod is idealized by a dumbbell of length l , two points mass joined by a massless rod as depicted in Figure 4.5a. Inertial terms in the equation of motion of dumbbell is neglected, thus each bead experienced a hydrodynamic force assumed to be isotropic and dependent on the relative velocity between the fluid and the beads, the first one is given by $\mathbf{V}(G) + l/2 \nabla \mathbf{V} \cdot \mathbf{p}$ and the second one by $\mathbf{v}(G) + l/2 \dot{\mathbf{p}}$ with $\mathbf{V}(G)$ the fluid velocity of surrounding flow at the rod centre of gravity and $\mathbf{v}(G)$ the velocity of the fibre centre of gravity. Considering an individual rod, the force acting on the lower bead is:

$$\mathbf{f}^{H^-} = \xi \left(\mathbf{v}(G) - \frac{l}{2} \nabla \mathbf{V} \cdot \mathbf{p} - \mathbf{v}(G) + \frac{l}{2} \dot{\mathbf{p}} \right) \quad (\text{Eq. 4.16})$$

where ξ is a hydrodynamic friction coefficient. On the upper bead the hydrodynamic force takes the following expression:

$$\mathbf{f}^{H^+} = \xi \left(\mathbf{v}(G) + \frac{l}{2} \nabla \mathbf{V} \cdot \mathbf{p} - \mathbf{v}(G) - \frac{l}{2} \dot{\mathbf{p}} \right) \quad (\text{Eq. 4.17})$$

When the rod evolves in an unconfined flow, the resolution of the force and torque balances leads to a slender rod kinematics which is equivalent to Jeffery model with a shape factor λ equals to 1 [PSAC+16]. However, this model does not take into account of rod geometry and size. Considering a symmetrical contact of the rod with walls as displayed in Figure 4.5b, Perez et *al.* [PSAC+16] reconsidered the previous situation to the case of very confined sheared flow between to platens. The authors introduce contact forces acting along the direction perpendicular to the walls (direction \mathbf{e}_3 in our case):

$$\mathbf{f}^{c^-} = k \mathbf{e}_3 \quad (\text{Eq. 4.18})$$

With k the contact force intensity and:

$$\mathbf{f}^{c^+} = -\mathbf{f}^{c^-} \quad (\text{Eq. 4.19})$$

Following the approach of Perez and *al.*, an expression of the rod kinematic under confined squeeze flow (Figure 4.5b) can be developed as:

$$\left\{ \begin{array}{ll} \dot{\mathbf{p}} = \dot{\mathbf{p}}^J, & \mathbf{v}(G) = \mathbf{V}(G) \quad \text{if } x_3(G) > \frac{l}{2} p_3 \text{ and } x_3(G) < h - \frac{l}{2} p_3 \text{ (no contact with the walls)} \\ \dot{\mathbf{p}} = \dot{\mathbf{p}}^J, & \mathbf{v}(G) = \mathbf{V}(G) \quad \text{if } h = lp_3 \text{ and } v_3 \left(\mathbf{x}(G) - \frac{l}{2} \mathbf{p} \right) \geq 0, \text{ and } v_3 \left(\mathbf{x}(G) + \frac{l}{2} \mathbf{p} \right) \leq \dot{h} \\ \dot{\mathbf{p}} = \dot{\mathbf{p}}^J + \dot{\mathbf{p}}^c, & \mathbf{v}(G) = \mathbf{V}(G) \quad \text{if } h = lp_3 \text{ and } v_3 \left(\mathbf{x}(G) - \frac{l}{2} \mathbf{p} \right) < 0, \text{ and } v_3 \left(\mathbf{x}(G) + \frac{l}{2} \mathbf{p} \right) > \dot{h} \end{array} \right. \quad (\text{Eq. 4.20})$$

with $\dot{\mathbf{p}}^J$ denotes the Jeffery rotary velocity component, $\dot{\mathbf{p}}^c$ is defined as the contact contribution to the rod rotary velocity. It takes the following expression for squeeze flow with perfect slip conditions at fluid/platens interfaces:

$$\dot{\mathbf{p}}^c = -\frac{\dot{p}_3^J - \dot{\varepsilon} p_3}{1 - p_3^2} (\mathbf{e}_3 - p_3 \mathbf{p}) \quad (\text{Eq. 4.21})$$

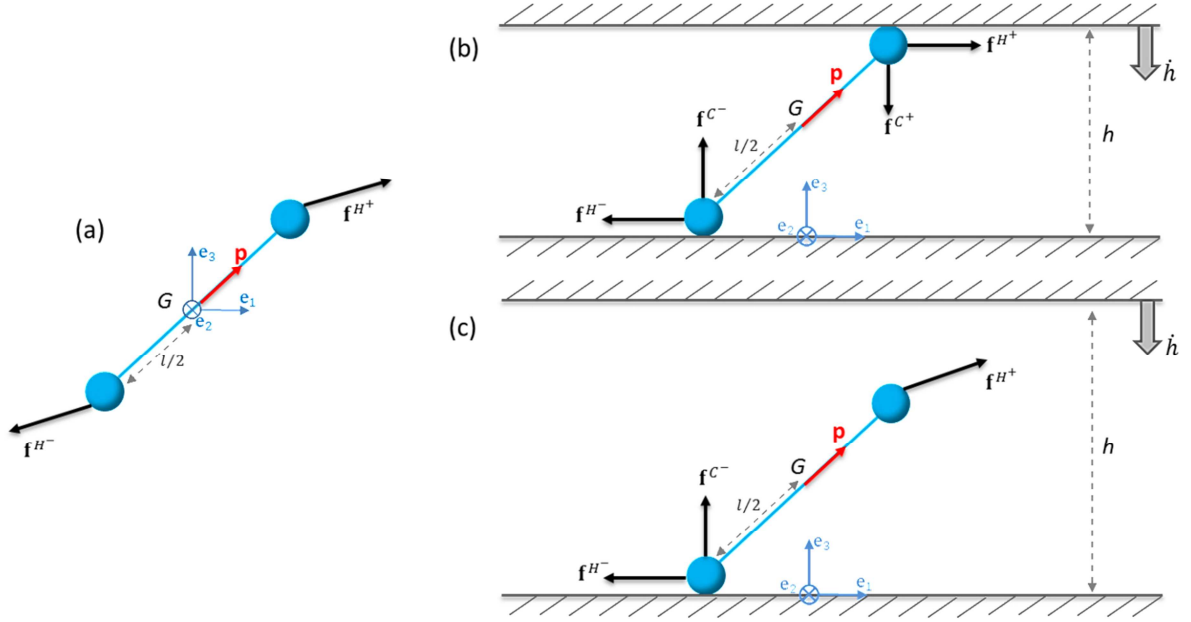


Figure 4.5 Rod modelled as a dumbbell. (a) Hydrodynamic forces applied on the dumbbell beads surrounded by a fluid. (b) Hydrodynamic and contact forces acting on the dumbbell beads under confined a squeeze flow. (c) Hydrodynamic and contact forces acting on the dumbbell which is in contact with lower wall and subjected to a squeeze flow.

The previous expression is similar to that given in [PSAC+16] excepted that it was written for squeeze flows. We extended this methodology to the case of a rod only in contact with only one wall (*cf.* Figure 4.5c). These alternative scenarios are also described in [OS14]. As extensively presented in annexe C, the contact force only acts on the lower bead (Figure 4.5) and by applying the force and torque balances and ensuring the no-penetration condition, one gets the following set of equations:

$$\begin{cases} \dot{\mathbf{p}} = \dot{\mathbf{p}}^J ; & \mathbf{v}(G) = \mathbf{V}(G) & \text{if } x_3(G) > \frac{l}{2} p_3 \text{ (no contact with lower wall)} \\ \dot{\mathbf{p}} = \dot{\mathbf{p}}^J ; & \mathbf{v}(G) = \mathbf{V}(G) & \text{if } x_3(G) = \frac{l}{2} p_3 \text{ and } v_3 \left(\mathbf{x}(G) - \frac{l}{2} \mathbf{p} \right) \geq 0 \\ \dot{\mathbf{p}} = \dot{\mathbf{p}}^J + \dot{\mathbf{p}}^c ; & \mathbf{v}^{c-}(G) & \text{if } x_3(G) = \frac{l}{2} p_3 \text{ and } v_3 \left(\mathbf{x}(G) - \frac{l}{2} \mathbf{p} \right) < 0 \end{cases} \quad (\text{Eq. 4.22})$$

If the rod is in contact with the lower platen, the contact rotary velocity $\dot{\mathbf{p}}^c$ and the velocity of the rod centre of mass $\mathbf{v}^{c-}(G)$ expressed as:

$$\dot{\mathbf{p}}^c = -\frac{\dot{p}_3^J - \dot{\varepsilon} p_3}{2 - p_3^2} (\mathbf{e}_3 - p_3 \mathbf{p}) \quad (\text{Eq. 4.23})$$

$$\mathbf{v}^{c-}(G) = \mathbf{V}(G) + \frac{l}{2} \frac{(\dot{p}_3^J - \dot{\varepsilon} p_3)}{2 - p_3^2} \mathbf{e}_3 \quad (\text{Eq. 4.24})$$

Due to symmetry arguments, similar development were found when the rod is in contact with the upper wall, the contact rotary velocity $\dot{\mathbf{p}}^C$ follows Eq. 4.23 whereas the velocity of the rod gravity centre $\mathbf{v}^{C^+}(G)$ satisfies:

$$\mathbf{v}^{C^+}(G) = \mathbf{V}(G) - \frac{l}{2} \frac{(\dot{p}_3^I - \dot{\varepsilon} p_3)}{2 - p_3^2} \mathbf{e}_3 \quad (\text{Eq. 4.25})$$

under the following relations which states for the contact occurrence:

$$x_3(G) = h - \frac{l}{2} p_3 \text{ and } v_3 \left(\mathbf{x}(G) + \frac{l}{2} \mathbf{p} \right) > \dot{h} \quad (\text{Eq. 4.26})$$

Calculation are given in annexe C. Lastly, we also extended this methodology to power-law suspending fluid using the following constitutive power law expression of the hydrodynamic drag force [SSLL05, BA93]:

$$\begin{aligned} \mathbf{f}^{H^+} &= \xi \left\| \mathbf{V}(G) + \frac{l}{2} \nabla \mathbf{V} \cdot \mathbf{p} - \mathbf{v}(G) - \frac{l}{2} \dot{\mathbf{p}} \right\|^{n-1} \left(\mathbf{V}(G) + \frac{l}{2} \nabla \mathbf{V} \cdot \mathbf{p} - \mathbf{v}(G) - \frac{l}{2} \dot{\mathbf{p}} \right) \\ \mathbf{f}^{H^-} &= \xi \left\| \mathbf{V}(G) - \frac{l}{2} \nabla \mathbf{V} \cdot \mathbf{p} - \mathbf{v}(G) + \frac{l}{2} \dot{\mathbf{p}} \right\|^{n-1} \left(\mathbf{V}(G) - \frac{l}{2} \nabla \mathbf{V} \cdot \mathbf{p} - \mathbf{v}(G) + \frac{l}{2} \dot{\mathbf{p}} \right) \end{aligned} \quad (\text{Eq. 4.27})$$

For unconfined and confined situations, we obtained the same sets of equations describing fibre kinematic in power-law suspending fluids as in Newtonian fluid (see details in Annexe D).

4.5 Numerical results : motion of a single fibre

4.5.1 Influence of the fibre geometry and the fluid rheology

The main objective of this section is to study numerically the kinematics of a cylindrical fibre in Newtonian and power-law fluids under squeeze flow with perfect slip conditions at the platen interfaces. Three fibre aspect ratio β (5, 10 and 15) were considered by changing the fibre length: the fibre radius was equal to 0.1 mm and its length was varied from 1, 2 and 3mm; the shape factor λ_b being respectively 0.926, 0.970 and 0.984. The fibre was initially placed in the centre of fluid cell and its orientation was chosen arbitrary with an initial angle $\theta_0 = 30^\circ$. The initial sample height h_0 was chosen equal to 12 mm and the initial radius R was equal to 3 mm in order to reach a large strain of the fluid cell. The vertical velocity of upper platen was $\dot{h} = -100 \mu\text{m/s}$. As showed in the previous section, the ratio $\mu_l/\mu_a = 1$ was chosen to obtain a purely elongational flow and perfect slip at both platens.

The fibre rotation for a Newtonian suspending fluid ($n = 1$) is first compared to the prediction of Jeffery's model (Eq. 4.1) in Figure 4.6a. The evolutions of orientation obtained numerically are in agreement with Jeffery predictions for the investigated fibre slender. Indeed, the deviations $\delta\theta$ and $\delta\varphi$ defined as $\delta\theta = \theta^{Num} - \theta^{Jeff} \leq -0.4^\circ$ at $|\varepsilon_{33}| = 2$. Similar results were obtained with the angle φ , *i.e.*, $\delta\varphi = \varphi^{Numerical} - \varphi^{Jeffery} \leq 10^{-2}$ at $|\varepsilon_{33}| = 2$, $\delta\varphi$ remained small. Figure 4.6 deals with the affinity of the numerical position \mathbf{x}_{num} of fibre mass centre with the motion of the macroscale suspending kinematics \mathbf{x}_{Jeff} . The departure between these two positions is quantified with the numerical dispersion $\Delta x_{num} = \|\mathbf{x}_{num} - \mathbf{x}_{Jeff}\|/h_0$.

with h_0 the initial sample height. The dispersion Δx_{num} is plotted as function of the Hencky strain and remained very low $\Delta x_{num} < 1\%$ even at large compression strain $|\varepsilon_{33}| = 2$. Thus, for the investigated fibre aspect ratio, it is also fair to conclude that kinematics of single fibre immersed in a Newtonian suspending fluid submitted to squeeze flow is well recovered by the numerical computations for a large deformation.

Then, the numerical evolutions of angle θ obtained for power-law indexes equal to 1 and 0.2 are compared in Figure 4.6b, by plotting their difference as function of the Hencky strain. Below $|\varepsilon_{33}| = 1$, fibre rotations seem quite similar and then deviations are observed but never exceeded 1.2° whatever the fibre aspect ratio. Thus, the non-Newtonian behaviour induces only a small influence on fibre rotation under squeeze flow with perfect slip conditions.

Furthermore, the motion of the fibre mass centre was investigated for power-law fluid and compared to the assumption of an affine motion with the macroscale velocity of the suspending fluid. In Figure 4.6c, the numerical dispersion Δx_{num} is plotted as function of the Hencky strain for various aspect ratios: showing that under $|\varepsilon_{33}| = 2$ fibre mass centre follows the affine motion with respect to the suspending fluid, as for the Newtonian case. Above this value, the dispersion increases and seems to dependent on the power-law index and fibre slender. That is probably due to confinement effects because platens become very close to fibre for those very high compression strains.

Finally the influence of fibre shapes was also investigated. The results are presented in annexe E, attesting that kinematics for ellipsoidal and cylindrical particles were quite well fitted by Jeffery's model as soon as a suitable equivalent shape factor is chosen. In addition, for non-Newtonian suspending fluid, the kinematics of ellipsoidal and cylindrical particles remains quite similar.

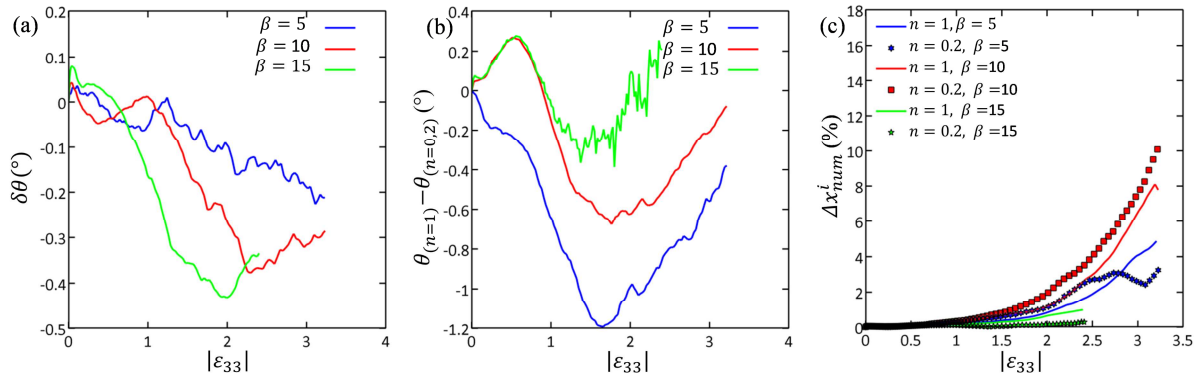


Figure 4.6 Compression of a fibre immersed in power-law fluids ($\dot{h} = -100 \mu\text{m/s}$, $n = 1 ; 0.2$). Evolution with respect to the Hencky strain $|\varepsilon_{33}|$ for various fibre aspect ratio (from 5 to 15) of: (a) the fibre orientation angle $\theta_{(n=1)}$ for a Newtonian fluid ($n = 1$) with Jeffery's predictions; (b) the difference between the fibre orientation angle $\theta_{(n=0.2)}$ for a power-law fluid ($n = 0.2$) and the one obtained for a Newtonian fluid $\theta_{(n=1)}$; (c) the dispersion of fibre mass centre Δx_{num}

4.5.2 Influence of boundary conditions (departure from purely slip compression)

Experimentally, perfect slip conditions at sample/platens interfaces using a lubricating fluid is sometimes difficult to ensure during the whole compression process. Several authors [PSM86, KV00, BS04, ESB05, GDOF12] reported the significance of considering the balance between drag and the squeezing out of the lubricating fluid. Thus, the main goal of this section is to highlight numerically the influence of the slipping conditions at fluid/platens interface on fibre kinematics ($\beta = 15$).

For that purpose, we changed the viscosity ratio μ_l/μ_a on both punch and mould to study its influence on fibre kinematics placed in ideal conditions. As in section 4.5.1, the initial size of fluid cell has a height $h_0 = 7 \text{ mm}$ and a radius $r_0 = 6 \text{ mm}$ which corresponds globally to the sample sizes used in experiments. Fibre is located in the centre of the sample to avoid confinement effect.

4.5.2.1 Newtonian suspending fluid

Figure 4.7 gathers the results for Newtonian suspending fluid. Noticeable modification on the evolution of angle θ with the viscosity ratio μ_l/μ_a can be seen in Figure 4.7a. Reducing the ratio below the unity tends to increase fibre rotation compared to Jeffery's predictions, at $|\varepsilon_{33}| = 1$, $1^\circ < \delta\theta < 2^\circ$, whereas increasing the ratio above the unity decreases fibre rotation, at $|\varepsilon_{33}| = 1$, $-1^\circ < \delta\theta < -5^\circ$. As displayed in Figure 4.7b, only a minor impact was therefore found on the deviation of fibre mass centre with respect to affine motion. Indeed, the dispersion Δx_{num} never exceeded 1% until $|\varepsilon_{33}| = 1$ and the in-plane angle φ remains constant during the compression.

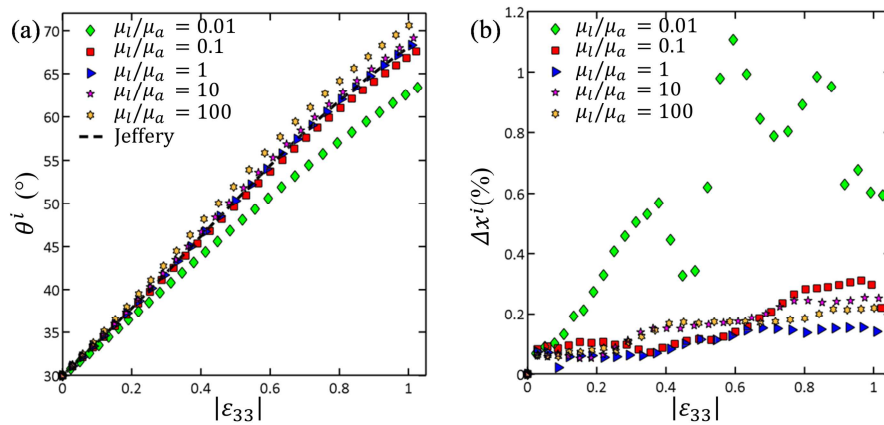


Figure 4.7 Comparison of the fibre kinematics immersed in Newtonian fluid (marks) for various values of the viscosity ratio μ_l/μ_a . Evolutions with $|\varepsilon_{33}|$ of numerical (marks) and theoretical (dotted line) fibre orientation angles θ (a), and the dispersion Δx (c).

4.5.2.2 Non-Newtonian suspending fluid

Simulations were also performed for a fluid with a power-law index $n = 0.2$. Results are gathered in Figure 4.8, showing a stronger impact of the viscosity ratio μ_l/μ_a on the evolution

of both the angle θ and the dispersion Δx_{num} . For viscosity ratio μ_l/μ_a below the unity the deviation with respect to Jeffery's prediction can reach at $|\varepsilon_{33}| = 1, -8^\circ < \delta\theta < -16^\circ$ and the dispersion can get to $\Delta x_{num} = 7\%$ at $|\varepsilon_{33}| = 0.9$. As previously, the orientation evolution of the in-plane angle φ remains constant.

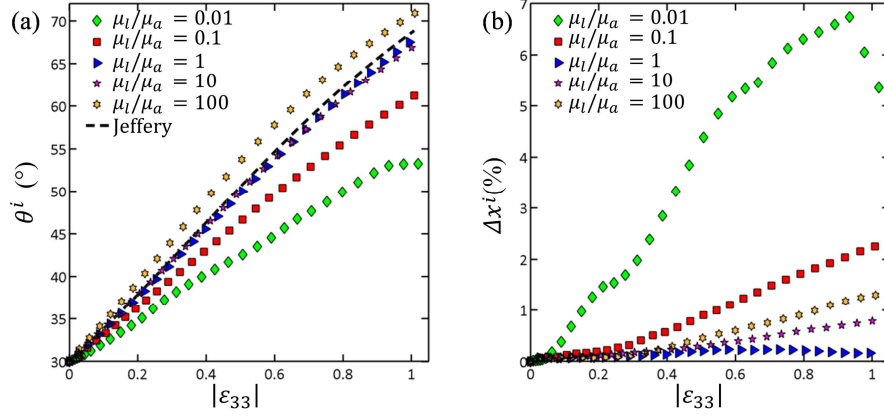


Figure 4.8 Comparison of the fibre kinematics immersed in power-law fluid ($n = 0.2$) for various values of the viscosity ratio μ_l/μ_a . Evolutions with $|\varepsilon_{33}|$ of numerical (marks) and theoretical (dotted line) fibre orientation angles θ (a), and the dispersion Δx (c).

4.5.3 Confinement effects

In this section, we studied the influence of confinement over the kinematics of a cylindrical fibre ($\beta = 15$). The orientation of fibre was arbitrary chosen with initial angles $\theta = 30^\circ$, $\varphi = 0^\circ$. As checked in the previous section, the ratio $\mu_l/\mu_a = 1$ was chosen to obtain a purely elongational flow. The velocity \dot{h} of the upper plate is arbitrary taken equal to $-100 \mu m.s^{-1}$.

4.5.3.1 Symmetrical contacts

For this situation, the fibre was placed initially at the centre of the fluid domain and the initial height of the sample h_0 was changed. Simulations were performed with the confinement parameter $H = h_0/l$ equals to 2.3, 1 and 0.9 (h_0 is respectively equal to 7, 3 and 2.7 mm).

Figure 4.9 gathers the numerical results obtained with a power index n equal to 1 and 0.2. Figure 4.9a shows the evolutions with the compression stain $|\varepsilon_{33}|$ of the minimal distance $Z_{f/cp}$ between the fibre and compression platens. For a confinement parameter $H = 0.9$, the fibre is initially in contact with the compression platens, for $H = 1$, the contact appears when $|\varepsilon_{zz}| = 0.2$, and for $H = 2.3$, the fibre never touches the compression platens. To check the assumption of Jeffery's model on the displacement of the fibre mass centre, the numerical dispersion defined $\Delta x_{num} = \|\mathbf{x}_{num} - \mathbf{x}_{Jeff}\|/h_{ref}$ is plotted in Figure 4.9b. h_{ref} is chosen constant and equal to 7 mm to obtain comparable results. The dispersion Δx_{num} remain small ($\Delta x_{num} < 0.6\%$) even if the dispersion is always higher for shear thinning fluid than Newtonian ones. Thus, whatever the power-law index studied, it is fair to conclude that the numerical fibre translations follow the affine assumption presumed by Jeffery's model even if the fibre enters in symmetrical contact with the compression platens.

The evolutions of the out-of-plane angle θ with the Hencky strain and the confinement parameters are respectively plotted in Figure 4.9c-d for power-law indexes 1 and 0.2,

respectively. Fibres are progressively aligned along the transverse plane ($\mathbf{e}_1, \mathbf{e}_2$). Therefore, the out-of-plane angles θ gradually increases with the Hencky strain. As the confinement parameter decreases, the rotation of fibre is faster due the symmetric contacts between the fibre and compression platens (*cf.* Figure 4.9a, when $Z_{f/cp} = 0$). It is interesting to notice that the modified Jeffery's equations rather well predict the fibre orientation in these confined situations. However, by comparing Figure 4.9c and d, it is also worth noting that this increasing of rotation depends on the power-law index as a slightly faster rotation is found for power-law index $n = 0.2$. This latter remark may seem to contradict the result obtained with the dumbbell approach for which the fibre rotation does not depend on the power-law index. This discrepancy can be due to different reasons: (i) the influence of the shape factor ($\lambda_b = 0.98$ and $\lambda = 1$ for the dumbbell model); (ii) the short range hydrodynamic interaction between wall and fibre depends on the power-law index (this is not taken into account in the dumbbell approach); (iii) the dumbbell approach considers a perfect solid contact and the hydrodynamic forces are not taken into account. In addition, further analysis would require improvement on the numerical method. Indeed, the contact point between fibre and wall occurs in the region where four different phases are immersed (fibre, solid wall, fluid and lubricated layer) and therefore the computations are probably less accurate.

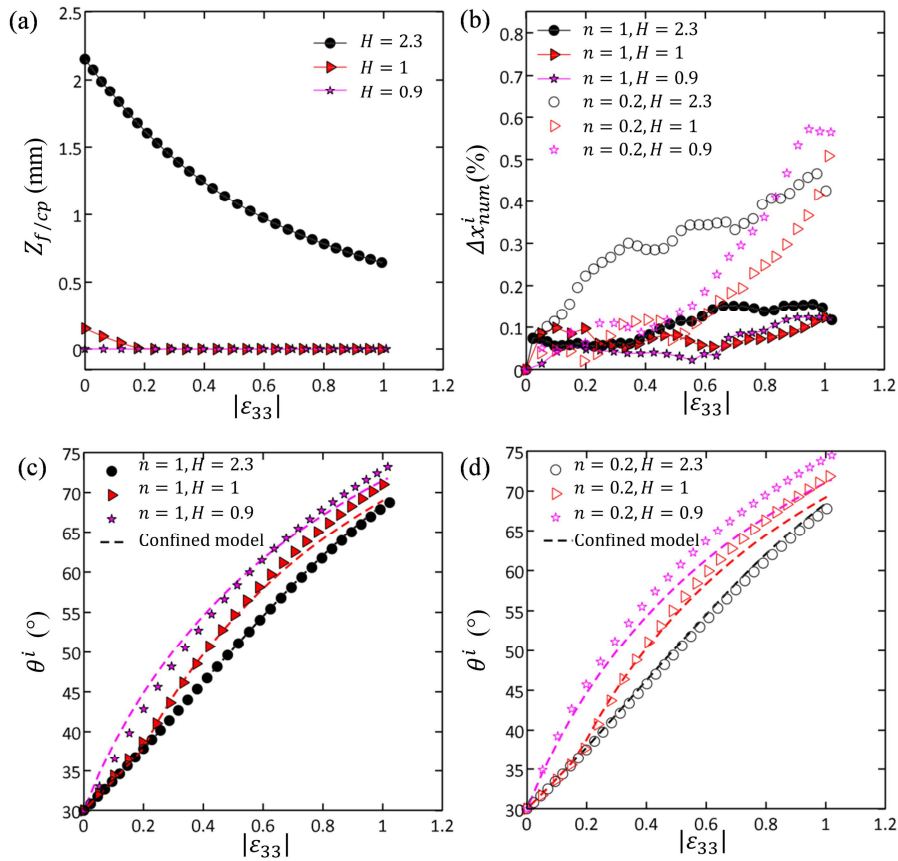


Figure 4.9 Compression of a fibre immersed in Newtonian and power-law fluid ($n = 1$ and 0.2 and $\dot{h} = -100 \mu\text{m/s}$) for various confinement parameters $H = h_0/l$: (a) Evolution of fibre/platens distance $Z_{f/cp}$ with $|\epsilon_{33}|$; (b) Evolution of the dispersion Δx_{num} with the compression strain $|\epsilon_{33}|$; Evolutions of orientation angle θ with $|\epsilon_{33}|$ and comparison between numerical computations (marks) and modified Jeffery's equations predictions (dotted line) for $n = 1$ (c) and $n = 0.2$ (d).

4.5.3.2 Non-symmetrical contact

Simulations have also been performed with a fibre located initially near the upper platen. The initial height of fluid sample h_0 was set to 7 mm , but the fibre is displaced vertically to a distance of 0.16 mm from the upper wall. The initial orientation was the same as in the previous section. Results are reported in Figure 4.10 in which the evolution of the out-of-plane angle θ and the dispersion Δx_{num} are presented even if the non-affinity is semi-quantitatively well captured by the analytical model. The deformation for which the fibre extremity entered in contact with the upper compression platens is indicated by an orange arrow ($|\varepsilon_{33}| \approx 0.2$). For Newtonian fluid ($n = 1$), the fibre rotates faster than Jeffery solution and a good agreement is obtained with the prediction of Jeffery's equations modified to non-symmetrical contacts. However, the numerical dispersion Δx_{num} is more important. For power-law fluid ($n = 0.2$), the behaviour is slightly different: the contact rotary velocity is less important and the fibre centre is subjected to a larger deviation (Figure 4.10c-d). That means that the modification of centre motion would not only be due to the fibre/wall contact (as stated by dumbbell approximation) but also to the modification of fluid motion induces by this contact (this modification is more important for power-law fluid).

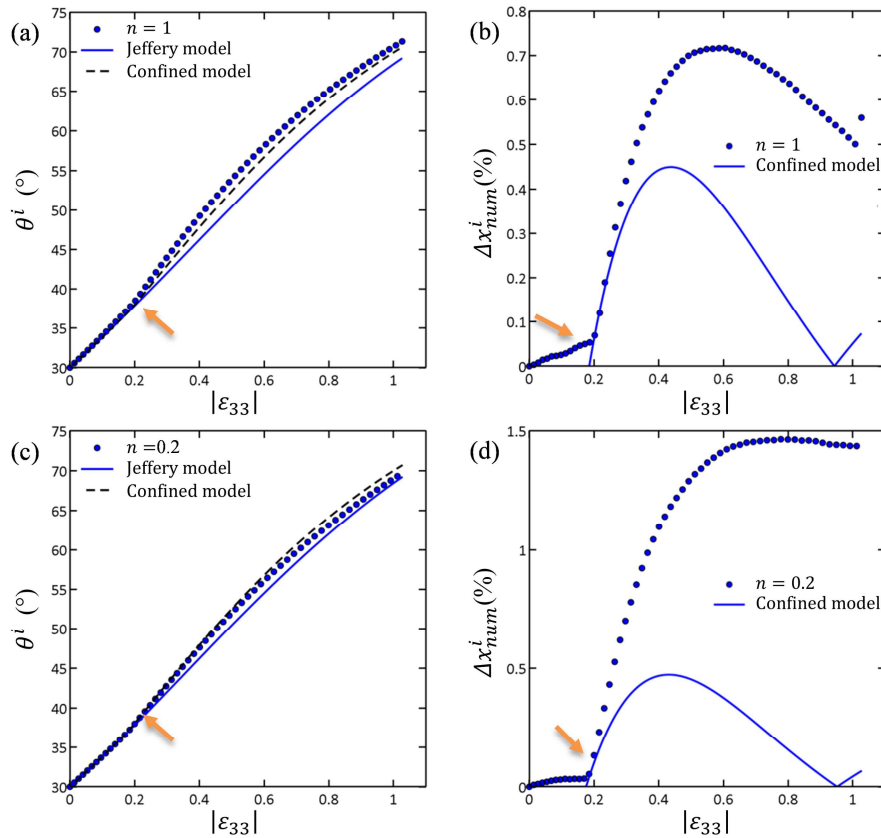


Figure 4.10 Compression of a fibre immersed in power-law fluids ($n = 1$ or 0.2 and $\dot{h} = -100 \mu\text{m/s}$). Evolutions with $|\varepsilon_{33}|$, of numerical (marks) and the modified Jeffery's equations predictions (dotted line) for the fibre orientation angles θ (left graphs) and dispersion Δx_{num} (right graphs) for $n = 1$ (a-b) and $n = 0.2$ (c-d).

4.6 Experimental and numerical comparisons

The experimental fibre kinematics previously observed by Laurencin and *al.* [LOD+16] are now compared with the numerical computations. Thus, initial experimental conditions such as sample sizes, fibre orientations and positions, punch velocities were used as numerical input data. Experimental results and numerical predictions are plotted in Figs. 4.11-14. Results with the suspensions that contained only one fibre (referenced as samples 1 to 6) are gathered in Figure 4.11. Figs. 4.12-14 respectively refer to dilute fibre suspensions labelled as sample 7 to 9. On these four figures, graphs (a) and (b) respectively plot the experimental and numerical evolutions of the angles θ^i and φ^i of each fibre i with the Hencky strain $|\epsilon_{33}|$. Furthermore, graphs (c) exhibit the evolution with the Hencky strain $|\epsilon_{33}|$ of the experimental and numerical dispersions Δx of fibre mass centre. Experimental and numerical dispersions were defined as $\Delta x_{exp}^i = \|\mathbf{x}_{exp}^i - \mathbf{x}_{Jeff}^i\|/h_0$ and $\Delta x_{num}^i = \|\mathbf{x}_{num}^i - \mathbf{x}_{Jeff}^i\|/h_0$, respectively. Minimal Δx_{min}^i and maximal Δx_{max}^i values of the dispersions are also listed in Tab. 1 for all tested samples. Experimental data were already compared with the standard Jeffery's solutions in [LOD+16] and are here compared with the predictions of numerical simulations and later with the dumbbell model, *i.e.*, the Jeffery's equations modified to the confined cases. From these first graphs the following comments can be made:

1. Regardless of the investigated, fibre initial orientation and aspect ratio or compression rate, fibre progressively aligned along the compression plane ($\mathbf{e}_1, \mathbf{e}_2$) as presented in Figure 4.11. Meanwhile, the in-plane angles φ^i practically remain unchanged during the compression experiments. In general, despite the highly shear-thinning rheology of the suspending fluid, the orientation evolutions were very well fitted by Jeffery's predictions. Indeed, the maximum deviations of the angles θ^i and φ^i from numerical and Jeffery's predictions remained below 2° . The experimental deviation Δx_{exp}^i on the position of fibre mass centre from the affine assumption increases with the compression strain $|\epsilon_{33}|$ but never exceeded 8%. These results validate, at first order, the use of Jeffery's theory for the prediction of the motion of single, centred, straight and cylindrical fibres within a shear-thinning fluid compressed in a narrow gap with $l/h=\mathcal{O}(1)$ as far as fibre do not touch the compression platens.
2. Also, Figure 4.11 shows the numerical predictions were in good accordance with experimental results. Indeed, numerical angles remained very close to Jeffery's predictions as expected from Section 4.5.1. Moreover, numerical departure Δx_{num}^i of fibre translations remained small with the compression strain and never exceeded 0.5%. On this point, simulations do not reproduce the experimental observations. As mentioned in [LOD+16] experimental deviations on fibre kinematics could be attribute to artefacts induces by unexpected rigid body motions of the compressed samples (that could not be measured) and potentially viscoelastic effect of the suspending fluid. Nonetheless, these results tend to validate the numerical code as a proper simulation tool to reproduce fibre kinematics immersed in power-law fluid submitted to squeeze flow.

3. For dilute suspensions (samples 7 to 9) results are qualitatively similar, as illustrated in Figs. 4.12-14. Experimental angles θ^i increased with increasing $|\varepsilon_{33}|$ and experimental angles φ^i remained more or less constant, except for some fibres for which the angle φ^i slightly varied with $|\varepsilon_{33}|$. However, these figures clearly show that Jeffery's predictions were less relevant than those obtained for single centred fibres (*cf.* Figure 4.11). The origins of these deviations are related to confinement effects rather than hydrodynamic interactions between fibres. Indeed, fibre concentration is low (see Tab. 1) for the studied dilute suspensions and no fibre-fibre contacts were detected from the 3D images. Moreover, the largest experimental deviations occur on fibres detected close the compression platen(s), *i.e.*, when the distance of the fibres from the platens was below one or twice the fibre diameter d , which corresponds to a typical distance below which short range hydrodynamic interactions could occur. These fibres and the evolution of their corresponding angles are exhibited in Figs. 4.13-14 with black arrow for fibres which are in close vicinity with compression platen(s) and with orange arrows for fibre which enters in contact with compression platen(s). During this stage, fibre orientations (*cf.* Figure 4.16) are affected by the platen and significantly deviated from Jeffery's predictions.

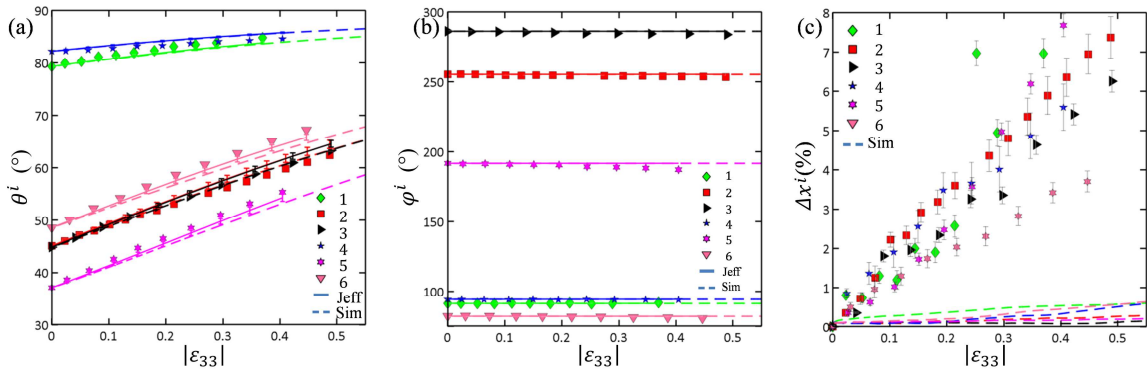


Figure 4.11 Experimental (marks), numerical (dotted lines) and theoretical (lines, standard Jeffery's predictions) evolutions of the angles θ^i (a) and φ^i (b) with $|\varepsilon_{33}|$ for samples 1 to 6. Experimental and numerical evolutions of dispersions Δx_{exp}^i and Δx_{num}^i as a function of $|\varepsilon_{33}|$ for samples 1 to 6.

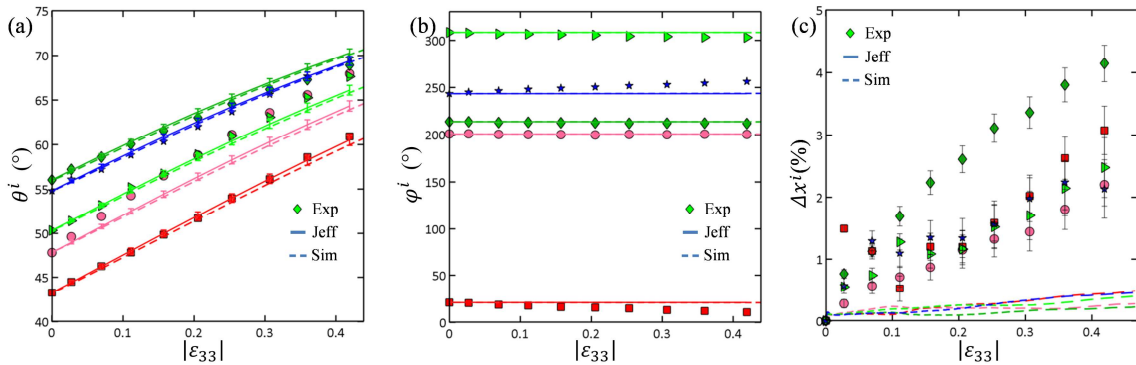


Figure 4.12 Simple compression test results obtained for the sample n°7. Experimental (marks), numerical (dotted lines) and theoretical (lines, standard Jeffery's predictions) evolutions of the angles θ^i (a) and φ^i (b) with $|\varepsilon_{33}|$. Experimental and numerical evolutions of dispersions Δx_{exp}^i and Δx_{num}^i with $|\varepsilon_{33}|$.

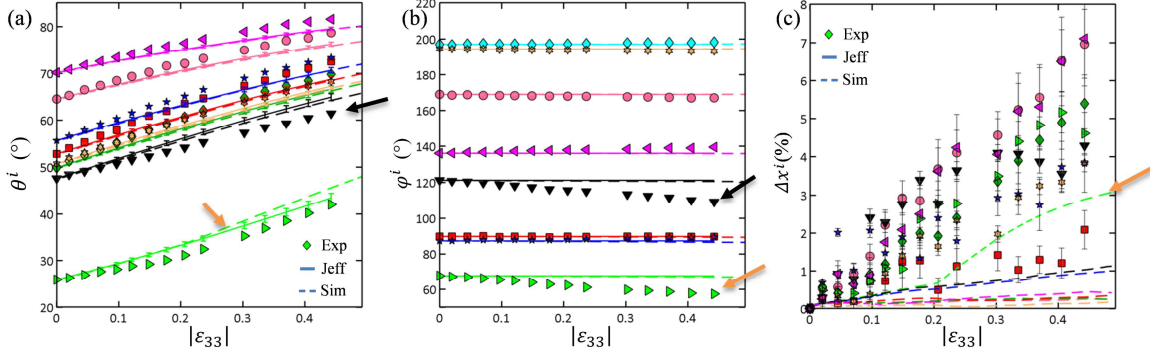


Figure 4.13 Simple compression test results for the sample n°8. Experimental (marks), numerical (dotted lines) and theoretical (lines, standard Jeffery's predictions) evolutions of the angles θ^i (a) and φ^i (b) with $|\varepsilon_{33}|$. Experimental and numerical evolutions of dispersions Δx_{exp}^i and Δx_{num}^i with $|\varepsilon_{33}|$.

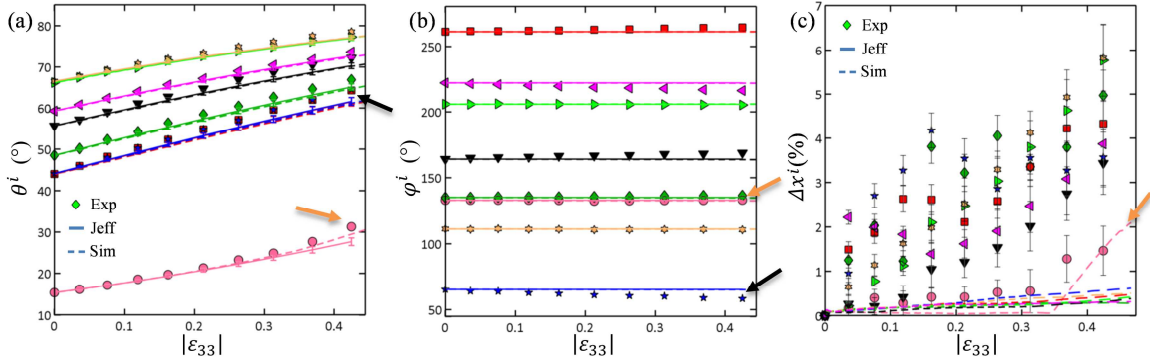


Figure 4.14 Simple compression test results for the sample n°9. Experimental (marks), numerical (dotted lines) and theoretical (lines, standard Jeffery's predictions) evolutions of the angles θ^i (a) and φ^i (b) with $|\varepsilon_{33}|$. Experimental and numerical evolutions of dispersions Δx_{exp}^i and Δx_{num}^i with $|\varepsilon_{33}|$.

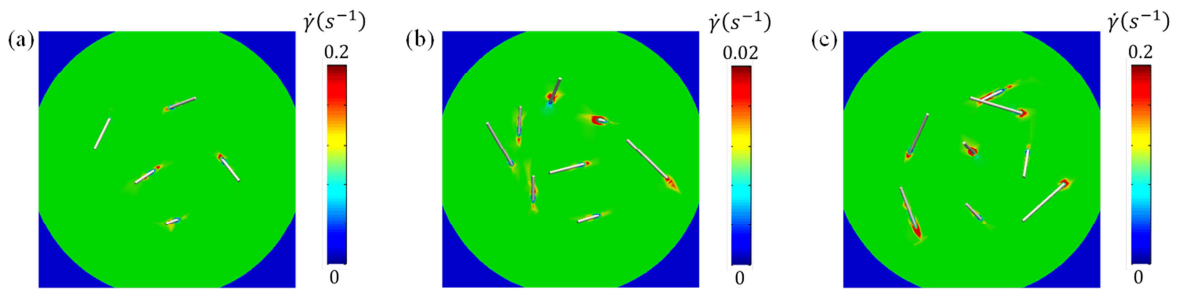


Figure 4.15 Horizontal slices in the middle of the numerical samples showing isovalues of the local shear rate $\dot{\gamma}$ at a compression Hencky strain $|\varepsilon_{33}| = 0.4$ for sample 7 to 9 respectively in pictures (a) to (c).

4. Apart for fibres in contact with compression platens, the numerical computations recover globally well the standard Jeffery's solutions and experimental results. (*cf.* Figs. 4.12-14 a-b). This is mainly because these considered suspensions are very dilute so that short range hydrodynamic interactions between neighbouring fibres remain weak. The last assumption is highlighted by the slices represented in Figure 4.15 (samples 7 to 9)

on which the local shear rate is displayed in $(\mathbf{e}_1, \mathbf{e}_2)$ plane at a compression Hencky strain $|\varepsilon_{33}| = 0.4$. Predicted shear rate gradient zones are located in the vicinity of fibres, *i.e.*, in zones of thicknesses close to one fibre diameter d : thus these zones do not affect the kinematic of neighbourhood fibres. An encouraging result is that both numerical fibre orientation and translation deviate from classical predictions when fibre enters in contact with compression platen(s). Fibre rotation and numerical dispersion increase when the contact appears.

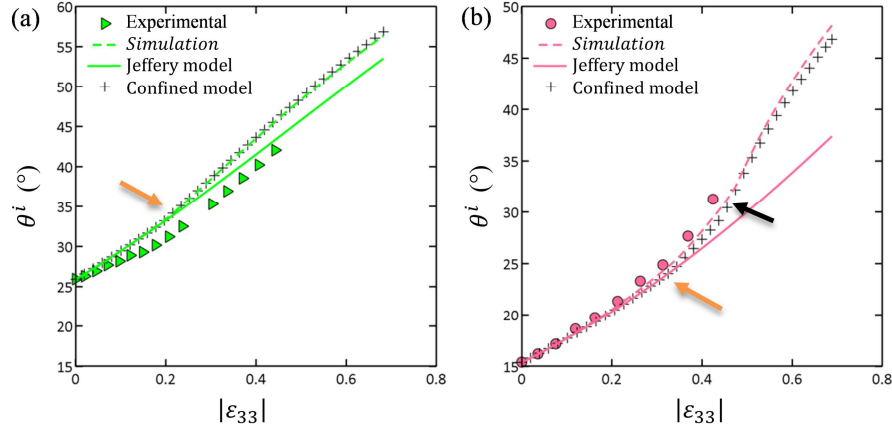


Figure 4.16 Evolutions of orientation angles θ^i for fibres in contact with compression platen from samples 8 (a) and 9 (b): experimental observations (marks); numerical computations (dotted lines); Jeffery's solutions (lines); contact model predictions (black cross).

5. In Figure 4.16a-b, experimental observations of confinement effects previously showed with the green triangles in Figure 4.13 and pink circles in Figure 4.14 are also compared respectively for each fibre with the prediction of the confined Jeffery's model deduced from the dumbbell approach. On these pictures, the orange arrow denotes the occurrence of contact between one fibre and a compression platen, while the black arrow denotes on the contact with both platens. In Figure 4.16a, the first contact occurs at $|\varepsilon_{33}| \sim 0.2$, whereas in Figure 4.16b the fibre extremity enters firstly in contact with the upper platen at $|\varepsilon_{33}| = 0.35$, then both fibre extremities are in contact with compression platens at $|\varepsilon_{33}| = 0.48$. Predictions of confined model are in good agreement with the numerical computations and show an increase of fibre rotation after the contact with the compression platen(s). Unfortunately, experimental observations could be checked so far due to the limitation on the reachable maximal strain coming from our apparatus. Nevertheless, when fibre enters in contact with the compression platen(s), the experimental, numerical and theoretical trends seem to be quite similar and they all confirm an increase of fibre rotation.

4.7 Concluding remarks

In this work, we studied the kinematics of fibres in dilute fibre suspensions with a non-Newtonian suspending fluid during their confined compression. For that purpose, we combined fibre scale FE numerical simulations and rheometry experiments with real time, 3D and *in situ* observations of their evolving fibrous microstructures. Thus, the objectives of this work were threefold.

- Firstly, we wanted to prove that fibre scale FE simulations with dedicated numerical procedures could constitute a proper and versatile methodology to study the rheology of these complex systems and flow situations. Hence, we used Eulerian FE code able to properly model, thanks to levelsets, transport and meshing algorithms, the motion of solids (fibres) immersed in non-Newtonian fluids. It was proved that the code was able to recover the well-known Jeffery's kinematics of a fibre in a Newtonian fluid under unconfined and homogeneous compression flow. The very good accordance between simulation and experimental results also proved the validity of the code in case of shear thinning fluids, for dilute fibrous systems, and for high confinements, *i.e.*, when fibres (nearly) touched the walls of compression platens.
- Therewith, the simulation was used in order to investigate the role of geometrical and mechanical parameters on the kinematics of fibres: shape of fibres (ellipsoid vs. cylindrical, fibre aspect ratio), size of the compressed sample (by changing the confinement ratio), rheology of the suspending fluid (Newtonian vs. shear-thinning), lubrication of the sample at the surfaces of compression platens. Within the investigated ranges, it was found that the shape of fibres had a minor effect; this should be further analysed, *e.g.* for a larger range of fibre aspect ratios. The effect of the shear-thinning rheology of the suspending fluid was rather weak. For instance, in unconfined situations, slight deviations of the motion of fibres were found with respect to the Newtonian case that followed the affine Jeffery's kinematics. This should be furthered investigated, *e.g.* by using shear-thickening or viscoelastic suspending fluids. The simulated (and observed) deviations were more important as fibres touched the platen. In this situation, the rheology of the lubricated layer was also found to increase fibre rotation, inducing slight bulk transverse shear stresses in the suspensions. Lastly, in accordance with the experiments, the role of confinement was astonishingly proved to be negligible when the distance between fibres and the compression platens was above one/two fibre diameters. However, below this threshold, very strong deviations of the Jeffery orbits could be observed: they reached the highest values in the case of fibres in contact with both the upper and lower platens. In the case of a unique contact, very strong deviations of the translation of fibre with respect to the affine assumption were also observed.
- From these numerical and experimental results, extensions of the Jeffery's equations to analytically predict the motion of fibres in the considered flow situations were proposed. Thus, we extended the dumbbell approach developed recently for Newtonian suspending fluids and symmetrical confinements by Perez et al. [PSAC+16], to both the

non-Newtonian case and to non-symmetrical confinement. Despite the simplicity of the micromechanical assumptions of the model, fairly good (semi-)quantitative predictions could be obtained with this heuristic model. Firstly, for unconfined situations, it was proved that Jeffery's equations as well as the affine motion assumption were valid for shear thinning fluids: despite the minor deviations observed numerically, this theoretical result suffice to properly capture the kinematics of fibres in these situations. Secondly, a set of analytical equations was established to bring the Jeffery's equations correctors in the case of fibre contacts with the compression platens, with very simple micromechanical assumptions. It was proved that such correctors (i) did not depend on the Newtonian or shear-thinning rheology, (ii) could capture semi-quantitatively trends observed numerically and experimentally.

Chapitre 5. Compression de suspensions semi-diluées

Sommaire

5.1 Introduction	91
5.2 Materials and Experimental procedure	95
5.2.1 Materials	95
5.2.2 Compression experiments with real-time 3D in situ X-ray imaging	96
5.3 Numerical code	98
5.3.1 Governing equations	98
5.3.2 Numerical resolution	99
5.3.3 Boundary conditions	100
5.3.4 Validation of the code	100
5.4 Results	100
5.5 Discussion	104
5.6 Conclusion	107

Assessing fibre kinematics in semi-dilute fibre suspensions with non-Newtonian suspending fluid using fast X-ray tomography and 3D Finite Element simulations

Abstract

Physical and mechanical properties of short fibre-reinforced polymer composites largely depend on the fibre orientation which drastically evolves during the forming operations. To analyse the flow-induced microstructure changes in these fibre suspensions, 3D in situ compression experiments were performed using model non-Newtonian semi-dilute fibre suspensions that were imaged by fast X-ray microtomography. In parallel, these experiments were numerically simulated using an Eulerian multi-domain FE code. Experimental and numerical kinematics of fibres were compared to the predictions of Jeffery's model. Experimental deviations between the experiments and the model were observed for fibre kinematics and they were related to hydrodynamic fibre interactions. The predictions of fibre kinematics using the Jeffery's theory and the associated assumption of affine fibre motions were not satisfactory in the semi-dilute concentration regime. Experimental and theoretical predictions of the stress level were not quantitatively found to be of the same order when the fibre concentration increase. Further, the numerical results were in good accordance with the predictions of Jeffery's theory. Some small deviations were observed for fibres which experienced fibre-fibre or fibre-platen contacts but the numerical deviations were not equivalent to the experimental measurements. The origin of this discrepancy was assumed to be related to the potential anisotropic behaviour of the suspending viscoelastic fluid.

Keywords: Fibre model suspensions; Rheology; X-ray Microtomography; Finite Element method; High Performance Computation.

5.1 Introduction

Short-fibre reinforced polymer composites are increasingly used as structural components thanks to their interesting mechanical and physical specific properties. Their processing routes are also cost-efficient. Several authors have reported that the composite properties are related to the fibre concentration, orientation distribution, and shape [Adv94, FL96, TCSA05, DMT06, ODV+12]. During their forming, the suspending fluid often exhibits a non-Newtonian rheology and flows in an anisotropic fibrous porous media. In addition, the fibrous microstructure undergoes large deformation phenomena that affect the final mechanical and physical properties of the produced parts. Hence, modelling the extremely complex rheology of these suspensions is an efficient way of improving manufacturing processes. However, several challenges are encountered because of the difficulty to properly observe and understand the evolving microstructures and the flow mechanisms of these suspensions at the fibre scale.

The studies of fibre kinematics in fibre suspensions for various types of flow situations were initiated by the pioneering study of Jeffery [Jef22] who determined the motion of an ellipsoidal particle immersed in a linear and infinite flow field consisting of an incompressible Newtonian flowing at low Reynolds number. The theory assumed that the velocity of the centre of mass of the particle was an affine function of the macroscale velocity gradient of the suspending fluid. Considering the particular case of homogeneous macroscale fluid flow situations without rigid

body motions, the position \mathbf{x}^i of the centre of mass of the ellipsoid can thus be predicted by integrating the equation:

$$\mathbf{v}^i = \nabla \mathbf{v} \cdot \mathbf{x}^i. \quad (\text{Eq. 5.1})$$

Using the first expansion of the fluid velocity field around the particle, the evolution of the particle orientation can be predicted from the well-known expression which describes the rate of the tangent vector \mathbf{p} to the main axis of the particle:

$$\dot{\mathbf{p}} = \boldsymbol{\Omega} \cdot \mathbf{p} + \lambda_b (\mathbf{D} \cdot \mathbf{p} - (\mathbf{p} \cdot \mathbf{D} \cdot \mathbf{p}) \mathbf{p}) \quad \lambda_b = 1 - \frac{16.35 \ln \beta}{4\pi\beta^2} \quad (\text{Eq. 5.2})$$

with λ_b the effective shape factor determined by Brenner [Bre74] for cylindrical particles where β is the fibre aspect ratio, $\boldsymbol{\Omega}$ the vorticity tensor, and \mathbf{D} the strain rate tensor. The validity of Jeffery's theory was reported by numerous authors [Tay23, Bin39, TM51, PKC00] and extended to any asymmetrical particles by Bretherton [Bre62], providing the use of an effective shape factor [AM67, AM68, Bur38, Cox71, Bre74].

Another way of describing the kinematics of a rigid rod in a Newtonian suspending fluid is to use the dumbbell approach developed by Bird [BAH87]. The rod is modelled as a dumbbell of length L with two massless beads at the rod extremities. Thus, in this model, the dumbbell inertia is neglected. Only hydrodynamic forces are applied on the dumbbell beads. Further, these forces are assumed to be isotropic and to depend on the relative velocity between the fluid and dumbbell beads. When the rod evolves in an unconfined flow, the resolution of the force and torque balance equations delivers the Jeffery's solution for the motion of a slender particle ($\lambda = 1$), as reported by Chinesta [Chi13].

Jeffery's model has been validated [RKC95, PKC00, SRFY13] to deal with the fibre kinematics in dilute Newtonian fibre suspensions, where the fibre volume fraction is $\phi \ll 1/\beta^2$ and the average distance between neighbouring fibres is larger than the fibre length l . When the fibre concentration is increased to the semi-dilute regime, defined as $1/\beta^2 \ll \phi \ll 1/\beta$, fibre kinematics is affected by the presence of neighbouring fibres. In this regime, the average distance between fibres ranges between one fibre length and one fibre diameter. Thus, fibre-fibre interactions can occur, especially long-range hydrodynamic interactions that play a leading role in the semi-dilute regime [SK88a, SKC92, RKC95]. In that case, the presence of a fibre within the suspensions disturbs the fluid flow, which affects the kinematics of fibres that are in its vicinity within a limited range of distance. The theoretical estimation of the fibre orientation disturbance induced by long-range hydrodynamic interactions was studied using slender body theory under extensional [SK90, RKC95] and squeeze flows [RKIC93, SKC92]. These studies showed an increase in this disturbance with the increase in fibre concentration. However, this effect was limited by short-range particle screening effects due to multiple interactions that occur with the surrounding fibres (the neighbouring fibres play the role of a cage) [FS89b, SF90]. Hence, long-range hydrodynamic interactions cannot be neglected in the semi-dilute suspensions. When the fibre concentration is over $\phi > 1/\beta$, the concentrated regime is reached, short-range interactions induced by fibre-fibre contacts have a predominant effect on the misalignment of fibre trajectories from Jeffery's predictions [Bay91, DVO+07, LDO+08, DLOF09].

In addition, Jeffery's theory was established to describe the fibre kinematics for a good scale separation, meaning that the fibre length should be small compared to the typical dimensions of the flow. However, considering the typical dimensions of the mould gaps, this restrictive condition scarcely occurs during composite forming. Thus, in most situations, the scale separation is low and the flow of short-fibre composites is confined [SS97, SGB12, Dia09]. Deviations from Jeffery's orbits for fibres in the vicinity of the mould walls or rheometer platens were reported by several authors for particles in suspension in Newtonian fluids [RH77] [MAR01, CLS06, Hol07], or non-Newtonian fluids [SC90, LOD+16]. Only few studies described the effects of fibre-mould mechanical interactions on the fibre kinematics by proposing a direct modification of Jeffery's model [OS14] or using a modified dumbbell approach [PSAC+16, LOD+16].

Considering the complex rheology of polymer composites, several authors also studied the non-Newtonian effects on the kinematics of single ellipsoidal particles immersed in viscoelastic fluids and subjected to shear flow [BGM75, IKC96, ICK96, JSF90, GSMV08]. A review about particle dynamics in viscoelastic liquids has been recently made by d'Avino *et al.* [DM14]. Deviations from the Jeffery's orbits were experimentally observed, showing bistable particle orientations that were related to the fluid elasticity. These observations were found to be in accordance with results of Direct Numerical Simulations (DNS) obtained by d'Avino *et al.* [GD14]. For low Weissenberg numbers, several theoretical studies described the kinematics under shear flow of rod in second order fluid such as for instance Leal [LEA75] and Borzacchiello *et al.* [BACCK16] for Rivlin-Ericksen fluids, and Brunn [Bru77] for Giesekus fluids. However, to the authors knowledge, only a few experimental and theoretical studies accounted for the shear-thinning behaviour of the suspending fluids for compressive or elongational flow situations [SRFY13, DVO+07], although these fluids are commonly encountered in short fibre-reinforced polymer composites.

Concerning the rheology of fibre suspensions, the macroscopic stress tensor of the suspension $\boldsymbol{\sigma}$ usually takes the following general expression [Eri60, Bat71, HL72, DA84, LDHB88, PTG91]:

$$\boldsymbol{\sigma} = -p\boldsymbol{\delta} + \boldsymbol{\sigma}^m + \boldsymbol{\sigma}^f \quad (\text{Eq. 5.3})$$

where the pressure p is related to the incompressibility of the suspension, $\boldsymbol{\delta}$ is the identity tensor, $\boldsymbol{\sigma}^m$ and $\boldsymbol{\sigma}^f$ are the contributions of the matrix and fibres, respectively. Most of theoretical studies for dilute and semi-dilute fibre suspensions led to a common expression for $\boldsymbol{\sigma}^f$ that is proportional to the fibre volume fraction which writes:

$$\boldsymbol{\sigma}^f = \eta_m \phi \left(a\mathbf{D} + b\mathbf{A}:\mathbf{D} + c(\mathbf{A}\cdot\mathbf{D} + \mathbf{D}\cdot\mathbf{A}) + 2dD_r \left(\mathbf{A} - \frac{1}{3}\boldsymbol{\delta} \right) \right) \quad (\text{Eq. 5.4})$$

with η_m the matrix viscosity, D_r the rotary diffusivity due to long-range hydrodynamic interactions [FTL84] and where the coefficients a, b, c, d are geometric shape factors. For slender particles, the coefficients a and c are zero. If the diffusion is weak, the last term in Eq. 5.4 can be ignored. Two approaches were used to determine the contribution of fibres to the stress tensor on the basis of Jeffery's [Jef22] and Bachelor's [Bat0a, Bat71] studies. The first approach was based on the use of Jeffery's solution for the velocity field around ellipsoidal particles which was used to determine the sheared viscosity of dilute suspensions made of

slender ellipsoidal particles [HL72] or slender cylinders [LDHB88]. However, the validity domain of these results was restricted to dilute suspensions since they were based on Jeffery's theory. The second approach was based on the use of the results of the slender body theory and cell model. This approach was proposed by Batchelor to determine the force applied on a particle and model the hydrodynamic perturbation due to the presence of the particle within a cell. Within the cell, the fluid perturbation created by the presence of a test fibre decays until a distance h which is of the same order as the average spacing between fibres.

Dinh and Armstrong [DA84] applied Batchelor's cell model theory and Jeffery's predictions for fibre kinematics and obtained a constitutive rheological model for semi-dilute suspensions of aligned or randomly oriented fibres under extensional or shear flow. The size of the fluid cell was estimated as a function of the fibre content. Later, Fredrickson and Shaqfeh [FS89a, SF90] considered multiple particle interactions in both dilute and semi-dilute regimes. In this approach, the size of the fluid cell was determined by the hydrodynamic screening length, *i.e.*, meaning that the presence of surrounding fibres screened the hydrodynamic disturbance of the test fibre. Slender body theory restricted the validity of the previous models to limited fibre aspect ratio ($\beta > 10$). Finally, from the phenomenological theory of transversely isotropic fluid introduced by Ericksen [Eri60], Phan-Thien and Graham [PTG91] proposed for a constitutive model for semi-dilute suspension of cylindrical fibres $\boldsymbol{\sigma}^f$ that is similar to that proposed by Dinh and Armstrong [DA84].

To deal with the rheology of concentrated fibre suspensions [DMT05, DLOF09, FAHC09], [NHC+13], most models include in Eq. 5.3(Eq. 5.3) a term which represents the contribution of the fibre-fibre contacts to the overall stress in the suspension. For large particle concentration, the contribution of fibre-fibre contacts to the rheology of the suspensions becomes predominant.

The viscoelasticity of the melt polymer during composite forming was taken in account by several authors [A-KGrm94a, Aza96, RAKG97, RAKG01] in the constitutive equations of fibre suspensions.

Further, Souloumiac *et al.* [SV98] extended the cell model approach of Batchelor and the pioneering study of Goddard [God78] by considering the effect of the shear-thinning behaviour of the suspending fluid. The fibre contribution $\boldsymbol{\sigma}^f$ to the overall stress of fibre suspensions with a power law suspending fluid was expressed as follows [FBK+16]:

$$\boldsymbol{\sigma}^f = \frac{2k\phi\beta^{n+1}}{n+2} \left(\frac{1-n}{n[1 - (r/h)^{(1-n)/n}]} \right)^n \mathbf{D} : \langle |\mathbf{D} : (\mathbf{p} \otimes \mathbf{p})|^{n-1} \mathbf{p} \otimes \mathbf{p} \otimes \mathbf{p} \otimes \mathbf{p} \rangle \quad (\text{Eq. 5.5})$$

where k and n are the consistency and the index of the power law model, respectively, r is the rod radius and h the radius of the interaction cell. The angular brackets denote the ensemble average with respect to the orientation distribution function. This model is sensitive to the size of the interaction cell and the fibre aspect ratio. This sensitivity is found to be a decreasing function of the power law index.

Because of the difficulty to properly observe and characterise in three dimensions the evolving fibrous microstructures during the flow of fibre suspensions, the complex flow mechanisms induced at the fibre scale still remain not well understood. Most of the experimental observations of fibre suspensions were performed using 2D optical techniques [Tay23, Bin39, TM51, AM68, YMN02, YKM04, DVO+07], 2D wide-angle X-ray diffraction [MW84], high

speed X-rays phase-contrast 2D imaging [SRFY13] and video camera with isorefractive systems [SKC92, RKC95, PKC00]. These techniques work well for studying dilute suspensions. However, they were limited to semi-dilute and concentrated fibre suspensions and did not provide any 3D characterisation of the fibrous microstructure.

In the two previous studies, 3D in situ observations in real time of non-Newtonian shear-thinning dilute fibre suspensions ($\phi \ll 1/\beta^2$) subjected to lubricated compression experiments were performed using 3D X-ray synchrotron images. Then, these experiments were numerically simulated using an Eulerian multi-domain Finite Element (FE) code. Experimental fibre kinematics were well reproduced by the numerical simulation. Despite the non-Newtonian fluid behaviour and regardless of the investigated experiment conditions, fibre aspect ratio and orientation, Jeffery's theory was found to be efficient for predicting fibre kinematic when fibres were far enough from compression platens (around 3 times a fibre diameter). Deviations from the affine motion of the fibre centre of mass were also observed experimentally but were not predicted by the simulation. These experimental deviations were attributed to unexpected rigid body motions of the compressed sample or fluid viscoelastic effects. Confinement effects were also observed experimentally and numerically on both rotational and fibre motion when fibres entered in contact with the compression platens. These effects affected the fibre kinematics and were taken into account using a confined Jeffery's model which derived from the dumbbell approach. Consequently, the numerical code was confirmed to be well suited to conduct numerical simulation of fine scale rheometry experiments for these complex systems. However, several limitations of these studies must be pointed out: (a) due to the geometric constraint the experimental compressions were restricted to a maximal Hencky strain below 0.6, (b) the 3D Finite Elements code should be improved to avoid numerical domain interpenetration, (d) the fibre concentration was low in the studied suspensions were dilute.

Hence, the first objective of this study is to experimentally investigate the rheology of semi-dilute fibre suspensions with non-Newtonian suspending fluid. These suspensions were subjected to confined compression experiments. The model semi-dilute suspensions were prepared using the same methodology as in our previous article [LOD+16]. They were compressed using the same micro-rheometer and their deformation was imaged in real time during synchrotron X-ray micro-tomography experiments. The 3D microstructure of fibre suspensions was extracted and tracked during sample compression. The kinematics of each fibre was compared to the predictions of Jeffery's model. Then, these experiments were numerically simulated using the multi domain Finite Element code where the initial fibrous microstructure was imported. Finally, the experimental measurements of compression stress applied on the semi-dilute suspensions were compared to the results of the numerical simulation and the predictions of Souloumiac's model for a shear-thinning suspending fluid.

5.2 Materials and Experimental procedure

5.2.1 Materials

A hydrocarbon gel was used as suspending fluid [GODR12]. At 120°C the gel behaved as a Newtonian fluid and its shear viscosity was approximately 1 Pa s. At room temperature, the gel was solid which enabled the fibrous microstructure to be "frozen" and facilitated the handling of the suspension. At 50°C, the gel exhibited a non-Newtonian behaviour close to that

of industrial polymer matrices used in composites. The gel viscosity was modelled as a shear-thinning fluid of power law type, *i.e.*, $\eta_m = K\dot{\gamma}^{n-1}$ with a consistency $K = 440 \text{ Pa}\cdot\text{s}^n$ and $n = 0.2$ the sensitivity to the generalized shear rate defined as $\dot{\gamma} = \sqrt{2\mathbf{D}:\mathbf{D}}$. The consistency and the power law index were determined using classical rheometry experiments (cone-plane rheometer, Anton Paar MCR301). Fibres used in the suspensions were extracted from continuous elastic fishing wire (diameter $d = 200 \mu\text{m}$, Young's modulus $E = 2 \text{ GPa}$) which presented a sufficiently contrasted X-ray absorption coefficient with the matrix. Model suspensions were hand-made layer by layer. Thanks to the transparency of the gel, the fibre placement could be controlled. The procedure consisted in picking each fibre in a thin layer a solid gel with a desired orientation and impregnating the as-obtained fibrous microstructure with a second layer of pre-heated gel at 120°C . Suspensions were fabricated in cylindrical moulds (radius of 6 mm, height of 7 mm). The characteristics of the fabricated samples are summarized in Table 5.1. Samples 1 and 2 contained only one fibre that was placed in their centres. Samples 3 and 4 contained five to eight fibres, the regime of concentration of these suspensions was dilute ($\phi \ll 1/\beta^2$). Samples 6 to 11 were composed of 18 to 41 fibres. They can be considered to belong to beginning of semi-dilute concentration regime ($\phi \cong 1/\beta^2$). Unfortunately, this preparation method did enable us to obtain model suspensions in the concentrated regime, these suspensions being porous because of air inclusion.

Concentration regime	Dilute					Semi-dilute					
Test number	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11
N	1	1	5	5	8	18	25	31	33	37	41
ϕ (%)	0.013	0.013	0.12	0.11	0.16	0.35	0.48	0.54	0.50	0.53	0.55
β	16.5	17.5	17.9	12.6	17.7	16.5	16	12.8	13.3	13.5	13.3
Δx_{min}^{Exp} (%)	-	-	2.1	2.0	1.5	1.6	1.1	2.9	1.7	3.1	1.1
Δx_{max}^{Exp} (%)	8	5.6	7.3	4.1	5.9	8.2	9.2	16.4	18	18.2	12.2
$\langle \Delta x^{Exp} \rangle$ (%)	8	5.6	3.5	2.8	4.1	4.2	4.4	7.5	8.2	6.5	4.8
$\langle \Delta x^{Num} \rangle$ (%)	0.5	0.5	0.4	-	0.74	-	1.4	-	1.4	-	1.2
$ D_{33}^0 $ (s^{-1})	0.004	0.03	0.004	0.03	0.03	0.004	0.004	0.004	0.027	0.024	0.02

Table 5.1 Test number with the characteristics of the corresponding suspensions and related compression experiments: number of fibres N and fibre aspect ratio β , initial strain rate D_{33}^0 used for the compression experiment, minimal Δx_{min}^i and maximal Δx_{max}^i recorded dispersion for the positions of the centres of mass of fibres with respect to the affine assumptions of Jeffery's theory.

5.2.2 Compression experiments with real-time 3D in situ X-ray imaging

Suspensions were subjected to lubricated compression loading at 50°C using a dedicated micro-rheometer. To maintain the suspension at a constant temperature of 50°C , heaters and thermocouples were inserted inside the compression platens. Before compression, the platens were lubricated with silicone oil and the suspensions were subjected to a small pre-compression to ensure the mechanical contact. After a stress relaxation and temperature homogenisation (~ 10 min) the mechanical loading was applied continuously through a piezoelectric actuator attached to lower compression platens. Compression experiments were performed at a constant

velocity $\dot{h} = 20$ and $160 \mu\text{m s}^{-1}$ of the lower platen, corresponding to an initial strain rate $D_{33} = \dot{h}/h_0$ along the \mathbf{e}_3 -direction (strain rate values are reported in Table 5.1). A load cell was also placed under the upper compression platen and used to measure precisely the force f_{33} exerted on the sample in the \mathbf{e}_3 -direction. The suspension flow was considered to be confined because of the poor scale separation such that $l/h = \mathcal{O}(1)$, with l the length of fibre and h the sample height. The specially designed micro-rheometer was mounted on the rotation stage of a synchrotron X-ray microtomograph (TOMCAT beamline, Swiss Light Source, Paul Scherrer Institute, Villigen, Switzerland) which enabled us to take 3D in situ images of the evolving fibrous microstructure in real-time conditions. The acquisition parameters were as follows: 601 X-ray projections (20 KeV, 400 mA) were acquired over a 180° rotation of the suspension for a short scanning time of 0.42 s. Using the Paganin reconstruction mode and suitable reconstruction algorithms, 3D images of the scanned specimen were obtained with a size of $1776 \times 1776 \times 450$ voxels for a voxel size of $11 \times 11 \times 11 \text{ mm}^3$.

To quantitatively analyse the fibrous microstructure evolution during compression, several image analysis operations were performed following the methodology that was reported by Latil *et al.* [LOG+11]. After a segmentation step of the images on the fibrous phase, the contacts between fibres did not allow each fibre to be clearly identified. In order to individualise the fibre, a 3D distance analysis between the two phases (fibre and gel) was done. This stage consists in calculating the distance of each voxel of the fibrous phase with the fluid phase and attributing a new grey level value (1 to 255) to the considered voxel. Then, the 3D distance map was segmented, this operation removed all the fibre-fibre contacts by reducing the fibre diameter. The fibre centrelines were extracted using a skeletonisation algorithm, namely the distance ordered homotopic thinning algorithm implemented in Avizo [Pud98]. Then, these centrelines were smoothed. Finally, the position of the centres of mass \mathbf{x}^i and the orientation \mathbf{p}^i of each fibre were determined from 3D images for each experiment. These data enabled us to calculate the orientation second and fourth orientation tensors \mathbf{A}^{Exp} and \mathbf{A}^{Exp} , respectively, as well as the orientation distribution function Ψ^{Exp} [FTL84].

In addition, fibre positions and orientations were tracked between each compression image. The rigid motion of fibre was tracked using a fibre centreline tracking algorithm based on a discrete correlation distance function [CLO+12].

The relevance of Jeffery's model was assessed by testing the validity of the affine assumption (Eq. 5.1) and the orientation (Eq. 5.2) equations for the predictions of the position of fibre mass centre \mathbf{x}_{eff}^i and the orientation vector \mathbf{p}_{eff}^i for each fibre i of the suspensions. Thus, the equations associated to Jeffery's model were numerically integrated using the fourth order Runge-Kutta integration scheme implemented in Matlab. From the previous measurements made on dilute fibre suspensions, we showed that the macroscale suspension flow was homogeneous, incompressible ($\nabla \cdot \mathbf{v} = 0$) and irrotational ($\boldsymbol{\Omega} = \mathbf{0}$). Therefore, the strain rate tensor \mathbf{D} was estimated from the height of the suspension h measured using the 3D images with a maximum error of ± 1 voxel. As initial conditions, the positions \mathbf{x}^i and the orientation vectors \mathbf{p}^i were taken from the initial undeformed configuration of the suspension measured on the 3D images, with maximum errors of ± 1 voxel and ± 0.15 , respectively. Then, two thousand integrations per experiments were computed using errors associated errors on h , \mathbf{x}_0^i and \mathbf{p}_0^i that were randomly chosen within the aforementioned ranges. This enabled the errors on the corresponding integrated parameters to be estimated. Here, the errors were considered to correspond to the difference between the 2nd and 98th percentile values of the computed

distributions. Finally, from these predictions the orientation second and fourth orientation tensors \mathbf{A}^{Jeff} and \mathbf{A}^{Jeff} , as well as the orientation distribution function Ψ^{Jeff} were calculated.

5.3 Numerical code

5.3.1 Governing equations

A numerical multiphase Eulerian code was used to simulate the squeeze flow experiments, as shown in Figure 5.1a. In this simulation, the finite element domain Ω was a global domain composed of all phases (die, punch, air and fibres immersed in the fluid/matrix). The overall motion of the incompressible domain Ω was governed by the continuum mechanics equations, assuming that the inertia and the gravity forces could be neglected:

$$\nabla \cdot \boldsymbol{\sigma} = \mathbf{0} ; \nabla \cdot \mathbf{v} = 0 \quad (\text{Eq. 5.6})$$

with $\boldsymbol{\sigma}$ the Cauchy stress tensor and \mathbf{v} the velocity.

A constitutive law was attributed to each phase. In the fluid phase, the stress tensor $\boldsymbol{\sigma}^m$ was expressed as follows:

$$\boldsymbol{\sigma}_m = -p\boldsymbol{\delta} + 2\eta_m \mathbf{D} \quad (\text{Eq. 5.7})$$

with p the hydrostatic pressure. In this study, the fluid was modelled as a shear-thinning fluid whose parameters were obtained elsewhere (referred to the previous chapters of this study).

Fibres were considered to be rigid particles. In the simulation, this condition was enforced using a Lagrange multiplier $\boldsymbol{\sigma}^*$ and a rigidity condition $\mathbf{D} = \mathbf{0}$ in the fibre domains. Thus, the stress tensor inside the fibre domains was expressed as follows:

$$\boldsymbol{\sigma}_f = -p\boldsymbol{\delta} + 2\eta_f \mathbf{D} + \boldsymbol{\sigma}^* \quad (\text{Eq. 5.8})$$

Similarly, the “viscosities” in the air and compression platens domains were adjusted at each time step in Eqs. 5.7-8, respectively, to recover plug flow motion at the fluid-air interface and solid motion inside the compression platens [LOD+16].

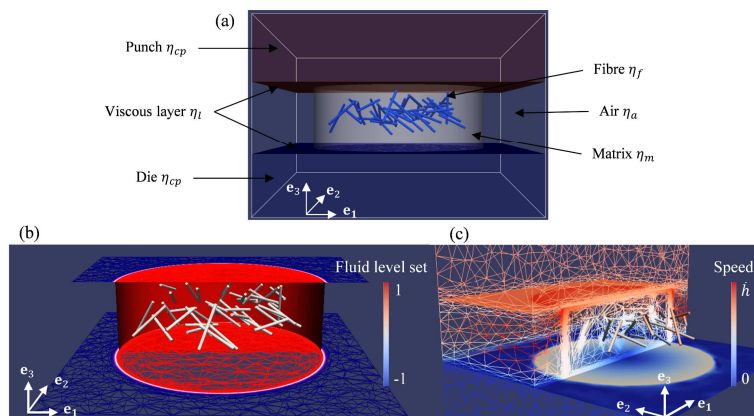


Figure 5.1 (a) Definition of the multi-domains of the numerical compression problem. (b) Iso-values of the fluid level-set function displayed on the platens and fluid domains. (c) Iso-values of the velocity magnitude on platens and view of the adaptative mesh used to accurately represent the transitions between the domains.

5.3.2 Numerical resolution

A general description of the method is given in this section. More details can be found in [CDH+10, LOD+16]. Stokes equations (Eq. 5.6) were computed in the entire computational domain using the Finite Element (FE) method. One Eulerian mesh was used to mesh the global domain Ω . Each subdomain was delimited in space using an implicit level-set function $\alpha(\mathbf{x}, t)$ within the mesh which represents a positive/negative distance to a boundary [OS88]. A picture of the level-set associated to the matrix displayed on the mesh grid is shown in Figure 5.1b. More details about the implementation and robustness of this technique are discussed in [CDH+10]. Level-set enables to associate specific physical properties to each phase (such as viscosity, density and so on) defined using smooth Heaviside function. Then, pressure and velocity were computed in Eq. 5.6. The weak formulation was solved using the augmented Lagrangian method and an Uzawa algorithm [FG83] to ensure a global convergence. Equations were discretized using mixed finite element method with MINI-element (P1+/P1). Once the velocity was computed, each level-set function α corresponding to one phase was convected, solving the following constitutive equations:

$$\begin{cases} \frac{\partial \alpha}{\partial t} + \mathbf{v} \cdot \nabla \alpha = 0 \\ \alpha(t = 0, \mathbf{x}) = \alpha_0(\mathbf{x}) \end{cases} \quad (\text{Eq. 5.9})$$

A re-initialization step was necessary to maintain the level-set function geometrical properties [VSC11]. Particles were displaced by interpolating the velocity field and the rotation vector at the centres of mass of particles. The position of the particles \mathbf{x}_i and their orientations \mathbf{p}_i were expressed by the following equations:

$$\begin{cases} \frac{d\mathbf{x}_i}{dt} = \mathbf{u}(\mathbf{x}_i) \\ \frac{d\mathbf{p}_i}{dt} = \frac{1}{2} \nabla \times \mathbf{u}(\mathbf{x}_i) \cdot \mathbf{p}_i \end{cases} \quad (\text{Eq. 5.10})$$

In practice, the previous equations were solved using a second order Adams-Bashforth scheme:

$$\mathbf{x}_i(t^{n+1}) = \mathbf{x}_i(t^n) + \frac{\Delta t}{2} [3 \mathbf{v}(\mathbf{x}_i(t^n), t^n) - \mathbf{v}(\mathbf{x}_i(t^{n-1}), t^{n-1})] \quad (\text{Eq. 5.11})$$

Once the new positions and orientations of a particle were calculated, the particle level-set function was reconstructed. Finally, an optimal mesh was obtained using an anisotropic mesh adaptation technique based on an a posteriori interpolation error [CDH+10, Cou11]. This technique enabled to capture discontinuities or gradients of the solution in flow with a good accuracy at a very low extra number of elements. An example of anisotropic mesh was plotted in Figure 5.1c. Our computations were made on a unit cube (the equations were scaled with a reference length), a number of nodes from 80 000 to 250 000 according to the number of fibres, the time step being equal to $0.5 \cdot 10^{-3}$ (scaled time).

5.3.3 Boundary conditions

The boundary conditions imposed on the external surfaces $\partial\Omega$ of our computational domain were as follows:

$$\begin{aligned} \mathbf{v} &= (0, 0, \dot{h}) & \text{if } \alpha_{punch}(\partial\Omega) > 0 \\ \mathbf{v} &= (0, 0, 0) & \text{if } \alpha_{die}(\partial\Omega) > 0 \\ \boldsymbol{\sigma} \cdot \mathbf{n}(\partial\Omega) &= 0 & \text{if } \alpha_{air}(\partial\Omega) > 0 \end{aligned} \tag{Eq. 5.12}$$

A constant velocity $\dot{h} < 0$ was imposed to the upper compression platen while the lower was fixed.

5.3.4 Validation of the code

In a previous study [LOD+16], the ability of the numerical method was proved to reproduce a purely elongation flow such as a homogeneous squeeze flow with perfect slip conditions at the compression platens interface using various power law suspending fluid. Both the rheological behaviour of power law fluid and squeeze flow kinematics were recovered. When dealing with one cylindrical particle and Newtonian suspending fluid, the numerical code replicated the fibre kinematic as predicted by Jeffery's model for a large deformation of the fluid cell (Hencky strain $|\boldsymbol{\varepsilon}_{33}| \approx 3$). Experiments on dilute fibre suspensions with a shear-thinning fluid were numerically simulated. Numerical results were found in good accordance with experimental ones concerning the kinematics of fibres.

5.4 Results

Figs. 5.2-8 show the experimental evolution of the microstructure and the rheology of the compressed semi-dilute fibre suspensions. Figure 5.2 shows the evolution of the experimental fibrous microstructure of samples 9 (Figure 5.2a) and 11 (Figure 5.2b) at various compression strains $|\boldsymbol{\varepsilon}_{33}|$ using 3D images segmented on the fibre phase. To deal with the average orientation of fibres in the suspensions, the experimental (marks) diagonal components of the second order orientation tensor \mathbf{A} are plotted in Figure 5.3 for samples 7 (Figure 5.3a), 9 (Figure 5.3b), 11 (Figure 5.3c), respectively. Note that the non-diagonal components were very small and were omitted in these graphs for clarity sake. To define more precisely the macroscopic fibre orientation state of the suspensions, the orientation distribution function was approximated using a series expansion of $\boldsymbol{\Psi}$ written as a function of the second and the fourth order orientation tensors that were experimentally measured [FTL84]. Both the experimental and fitted orientation distribution functions are shown in 3D in Figs. 5.4-5 for samples 9 and 11 at various Hencky strains $|\boldsymbol{\varepsilon}_{33}|$, respectively.

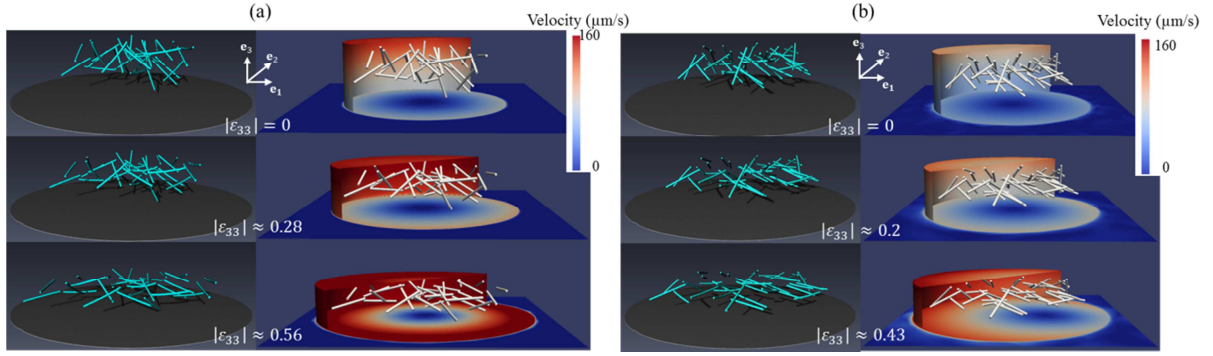


Figure 5.2 Motion of the experimental (3D segmented images on left-hand side) and numerical (Paraview images on right-hand side [Utk15]) fibre microstructure obtained at various compression strains $|\varepsilon_{33}|$ of suspensions 9 (a) and 11 (b).

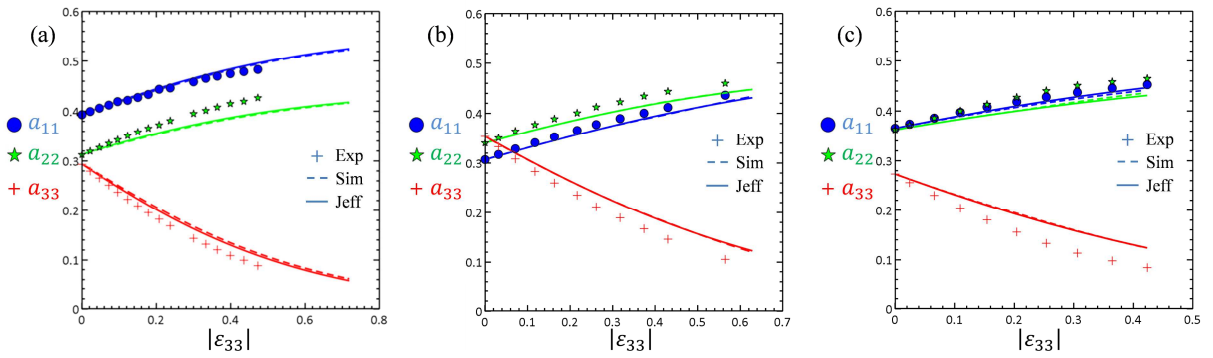


Figure 5.3 Experimental (marks), numerical (dotted lines) and theoretical (lines) diagonal components A_{ii} of the second order fibre orientation tensor \mathbf{A} as function of $|\varepsilon_{33}|$ for samples 7 (a), 9 (b) and 11 (c).

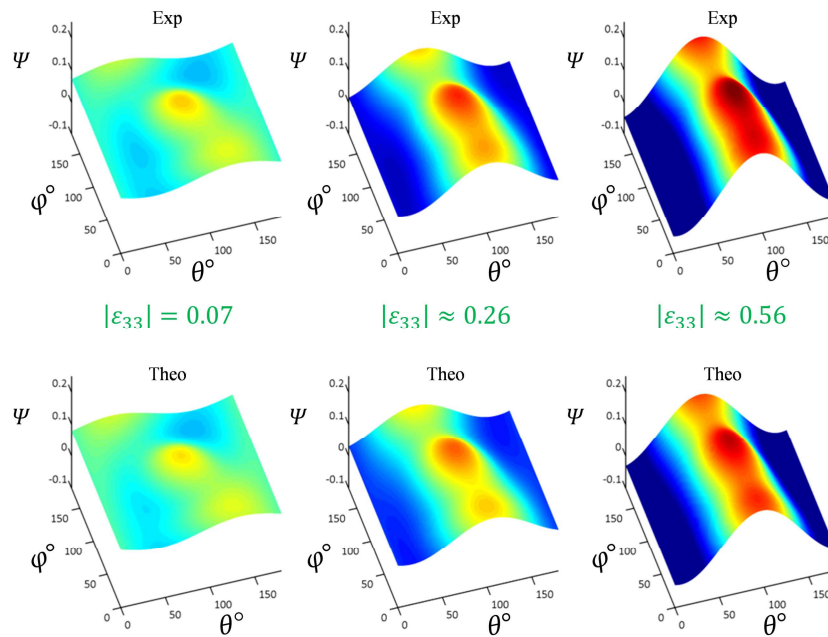


Figure 5.4 3D representations of the experimental ψ^{Exp} (upper figures) and theoretical ψ^{Jeff} (lower figures) fibre orientation distribution functions at various compression strains $|\varepsilon_{33}|$ for sample 9.

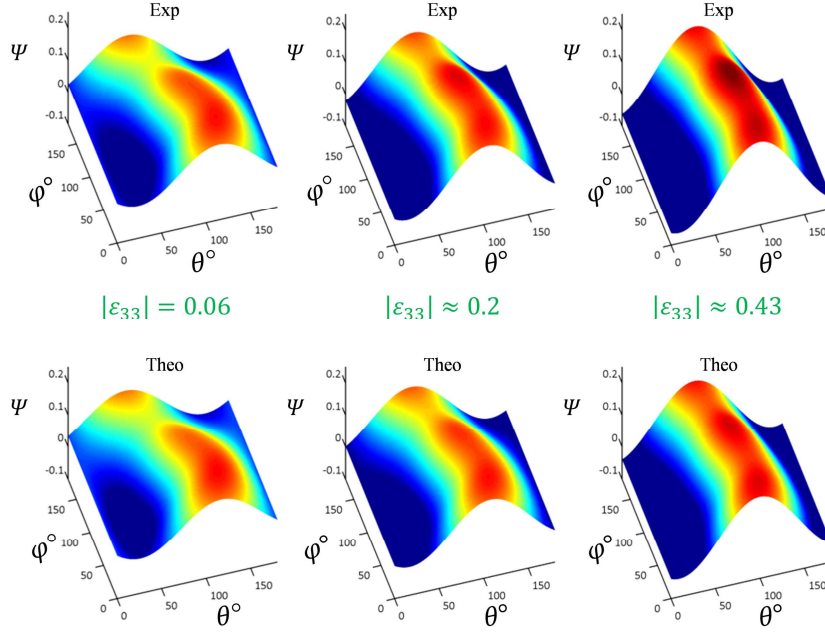


Figure 5.5 3D representations of the experimental Ψ^{Exp} (upper figures) and theoretical Ψ^{Jeff} (lower figures) fibre orientation distribution functions at various compression strains $|\varepsilon_{33}|$ for sample 11.

The kinematics of several fibres in suspensions 9 and 11 are shown in Figs. 5.6-7 a-c, that show the evolution of θ^i , φ^i and Δx as a function of the Hencky strain $|\varepsilon_{33}|$, respectively. The discrepancy between the experimental motion of the fibres and the assumption of affine motion with the macroscale velocity of the suspending fluid, as stated by Jeffery's theory, was assessed through a dispersion parameter $\Delta x = \|\mathbf{x} - \mathbf{x}_{Jeff}\|/h_0$, with \mathbf{x} and \mathbf{x}_{Jeff} , the position of the centre of mass of fibres and its prediction from Jeffery's model. The minimal and maximal values of the experimental Δx^{Exp} deviations are given in Table 5.1 for all the tested suspensions.

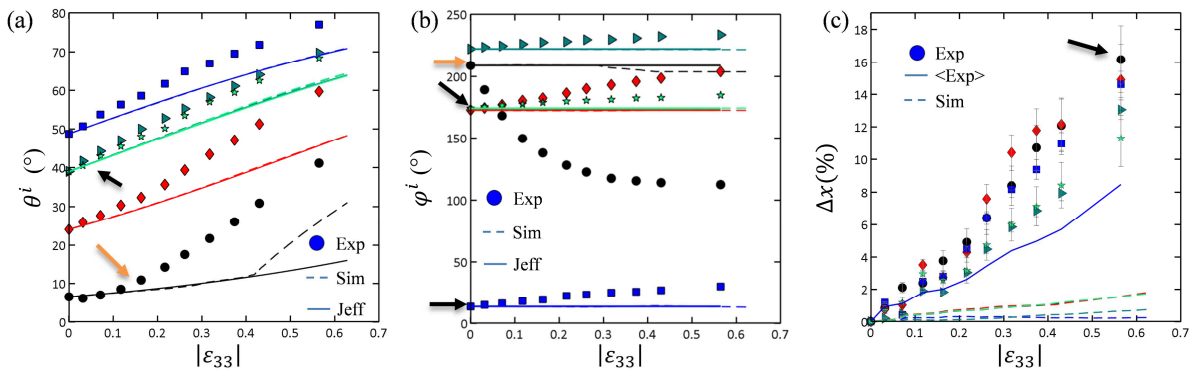


Figure 5.6 Kinematics of several specific fibres from sample 9 that exhibited the most important deviation from Jeffery's predictions for the evolutions of the angles θ^i (a), φ^i (b) and Jeffery's affine assumption for the motion of the centre of mass of fibres (c). Experimental, numerical (dotted lines) and theoretical (lines) evolutions are plotted using marks, dotted lines and lines, respectively. Fibres that were in contact with a neighbouring fibre or with a compression platen are shown with black and orange arrows, respectively.

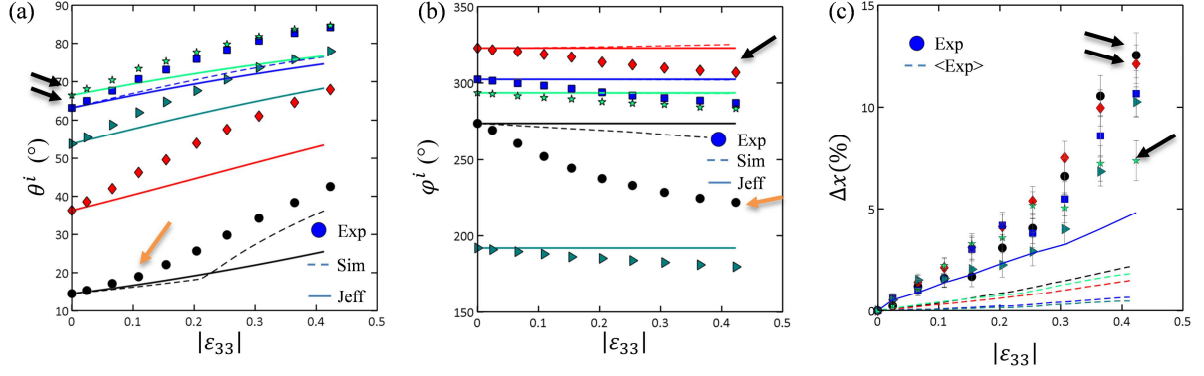


Figure 5.7 Kinematics of several specific fibres from sample 11 that exhibited the most important deviation from Jeffery's predictions for the evolutions of the angles θ^i (a), φ^i (b) and Jeffery's affine assumption for the motion of the centre of mass of fibres (c). Experimental, numerical (dotted lines) and theoretical (lines) evolutions are plotted using marks, dotted lines and lines, respectively. Fibres that were in contact with a neighbouring fibre or with a compression platen are shown with black and orange arrows, respectively.

Finally, the experimental stress σ_{33} applied during compression was calculated for all the tested samples using the forces that were experimentally measured and the areas of the surfaces of the compressed suspensions obtained from the analysis of 3D images. From these measurements a dimensionless stress was defined as follows:

$$\sigma_{33}^* = \sigma_{33}(N)/\sigma_{33}(N = 1), \quad (\text{Eq. 5.13})$$

with $\sigma_{33}(N = 1)$ the stress that was measured for suspensions that contained only one fibre. The stresses σ_{33} and σ_{33}^* are shown in Figure 5.8(a,c) and (b,d), respectively, as a function of the Hencky strain, the compression velocity $\dot{h} = 20$ (a), $160 \mu\text{ms}^{-1}$ (b) and N the number of fibres of the suspensions. The prediction of the evolution of the compression stresses exerted on an equivalent fluid cell (without any no fibre) is also shown in Figure 5.8(a,c) considering the two compression velocities that were used in the experiments and the non-Newtonian power-law behaviour of the gel (Section 5.2.1). In addition, the prediction for the dimensionless stresses σ_{33}^* from Souloumiac and Vincent's theory are shown in Figure 5.8(b,d) for suspensions 8 ($N = 31$) and 11 ($N = 41$) (the radius of the fluid cell was chosen as two fibre diameter).

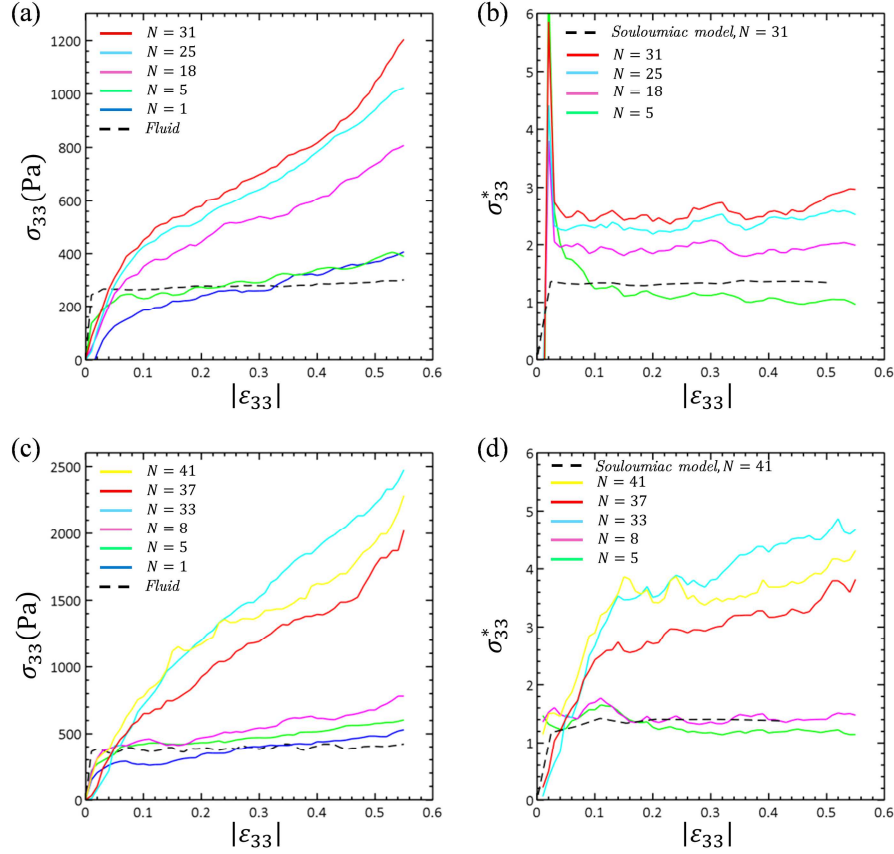


Figure 5.8 Evolution of the compression stress σ_{33} (a,c) and the dimensionless stress σ_{33}^* (b,d) as a function of the number of fibres N contained in the suspension, the Hencky strain $|\epsilon_{33}|$ and the compression velocity $\dot{h} = 20$ (upper graphs) and $160 \mu\text{m s}^{-1}$ (lower graphs) applied to the suspensions.

5.5 Discussion

Regardless of the initial positions, orientations and aspect ratios of fibres and the investigated macroscale strain rates, the fibrous microstructure aligned along the compression plane ($\mathbf{e}_1, \mathbf{e}_2$) as shown in 3D segmented images of Figure 5.2. This behaviour is also quantitatively confirmed at the macroscopic scale by the strong decrease of the component A_{33} of the second order orientation tensor during compression (Figure 5.3). It is also worth to note that the experimental values of the diagonal components of the second orientation tensor deviated all the more from the predictions of Jeffery's model as the fibre concentration of the suspensions increased (Figure 5.3). For the highest fibre concentrations (Figure 5.3c), non-negligible departures from the Jeffery's predictions were observed over $|\epsilon_{33}| = 0.2$. The 3D representations of the orientation distribution functions also showed an increase in the probability of finding a fibre with angle θ close to 90° with the increase in the Hencky strain, regardless of the fibre angle φ (Figures 5.4-5). Despite the initial complex shapes of the experimental distribution functions, their evolution was rather well fitted by the calculated distribution functions obtained from the predictions of Jeffery's model, *i.e.*, the approach where the positions and orientations of each fibre within the suspensions were updated by solving Jeffery's equations. However, slight differences between both the experimental and theoretical

functions are apparent. The global experimental departures from Jeffery's model was also observed for the kinematics of individual fibres, as shown in Figs. 5.6-7. In Figs. 5.6-7a and c, the largest deviations for the fibre orientations and positions were plotted. These deviations were large as for these specific fibres $|\theta^{Exp} - \theta^{Jeff}| > 8^\circ$, $|\varphi^{Exp} - \varphi^{Jeff}| > 10^\circ$, $\Delta x > 7\%$ at $|\varepsilon_{33}| > 0.4$. In general, Jeffery's prediction was less relevant to predict fibre kinematics in semi-dilute concentration regime. The fibre centrelines of suspensions 9 (upper images) and 11 (lower images) are shown at the initial state in blue lines in Figure 5.9. Fibres which experimentally deviated ($|\theta^{Exp} - \theta^{Jeff}| > 4^\circ$, $|\varphi^{Exp} - \varphi^{Jeff}| > 5^\circ$) from the Jeffery's predictions are shown in green (Figure 5.9), revealing that most of them exhibited a departure from the predictions of this model. Furthermore, the fibres exhibited a large departure from the affine trajectory of the centre of mass of fibres with the fluid macroscale velocity gradient predicted by Jeffery's theory, as shown in Table 5.1 with the average dispersion $\langle \Delta x^{Exp} \rangle$ calculated for all the fibres of the tested suspensions.

Several studies have reported that fibre-fibre hydrodynamic interactions and possibly fibre-fibre mechanical contacts can be responsible for orientation departure from Jeffery's orbits in semi-dilute fibre suspensions. Therefore, the local distance between fibre centrelines was calculated. First, this showed that some fibres were in contact during compression. The centrelines of these fibres are shown in red in Figure 5.9c-d. It is interesting to note that the fibres which were in contact at the initial state of the suspension remained in contact during compression. Further, no fibre mechanical contacts were found to appear during compression if the fibres were not already in contact at the initial state of the compression. Because of the hand-made preparation of samples, the number of contacts was not related to the fibre concentration of the tested samples. However, more fibre-fibre mechanical contacts were found in sample 11 than in sample 9. Second, many fibres were found to be close to each other at a typical distance where hydrodynamic interactions could appear (approximately three times the fibre diameter). The centrelines of these fibres are shown in black in Figure 5.9c-d. Confinement effects were also detected: several fibres entered in contact with the compression platens during compression. These fibre centrelines are shown in yellow in Figure 5.9c,d. By a simple identification of the fibre centrelines between graphs a-b and c-d in Figure 5.9, the previous analysis revealed that the departures from Jeffery's predictions were in general related to hydrodynamic interactions, as well as fibre-fibre and fibre-platen contacts. Figs. 5.6-7 show some fibre-fibre and fibre-platen(s) mechanical interactions that were detected in the suspensions using black and orange arrows, respectively.

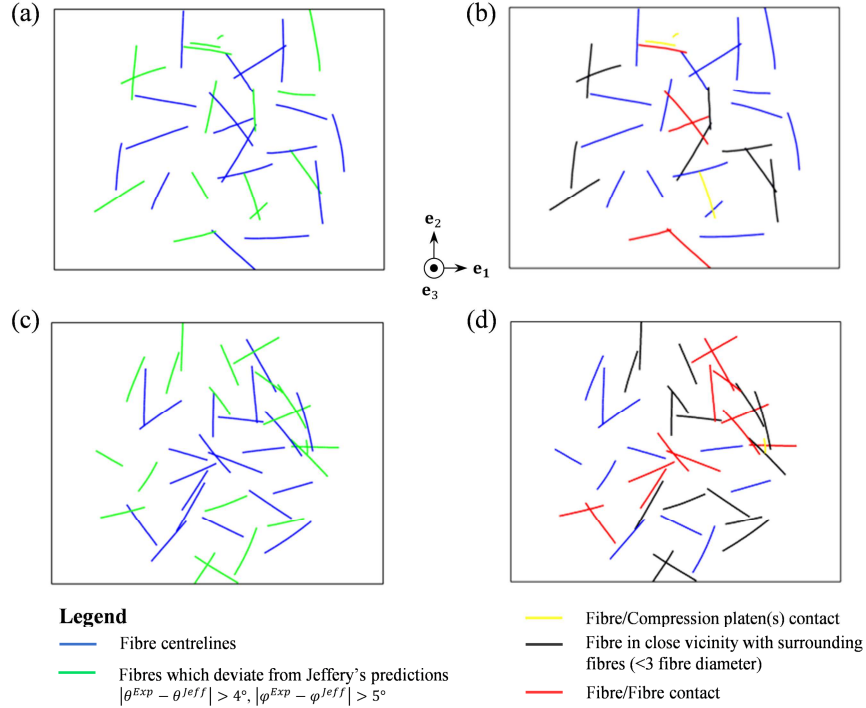


Figure 5.9 Representation of the fibre centrelines in the $(\mathbf{e}_1, \mathbf{e}_2)$ plane at the initial state of samples 9 (a,b) and 11 (c,d). (a,c) Green lines are associated to fibres that shows a departure from Jeffery's predictions for orientation ($|\theta^{Exp} - \theta^{Jeff}| > 4^\circ, |\varphi^{Exp} - \varphi^{Jeff}| > 5^\circ$), (b,d) red lines to fibres that are in contact with another fibre, yellow lines to fibres in contact with a compression platen fibres-platen contacts (yellow lines) and black lines to fibres subjected to hydrodynamic interactions (distance between fibres < 3 times the fibre diameter).

In Figure 5.8, the rheological response of dilute to semi-dilute suspensions was also assessed. Due to the very low concentration of dilute fibre suspensions (samples 1-5), both the experimental and theoretical stress levels that were determined using an equivalent fluid cell model were similar for the investigated range of strain rates (Figure 5.8a,c). For a better comparison, Figure 5.8(b,d) clearly show an increase in the dimensionless stress levels σ_{33}^* as a function of the increase in the suspension concentration and strain rates. At a fixed concentration, σ_{33}^* was found to be nearly constant with the Hencky strain. These results were compared to the prediction of Souloumiac and Vincent's theory, using for that the experimental measurements of the power law viscosity ($K = 440 \text{ Pa} \cdot \text{s}^n, n = 0.2$), fibre orientation evolution and macroscopic strain rate. The predictions of this model showed an increase in the dimensionless stress level. However, this increase was too low compared to the experimental results. This discrepancy should not be related to an erroneous prediction of this model as the prediction of Dinh and Armstrong's model, which was also implemented using an average viscosity for the suspension extracted from the numerical simulation results, gave similar values for the stress for the studied suspensions.

The compression experiments that were performed on the semi-dilute fibre suspensions (samples 7, 9, 11) were also simulated using the aforementioned Finite Element code. Figure 5.2 shows the evolution of the fibrous microstructure of samples 9 and 11 for various Hencky

strains. These evolutions were visually similar to the experimental results. Figure 5.3 shows that the computed components of the second orientation tensor were in very good accordance with those predicted by Jeffery’s model, regardless of the investigated fibre concentration for the suspensions. At the microscale, the results were qualitatively similar. The kinematics of fibres remained very close to the orientation model predictions for both the θ and φ angles. Some deviations were observed when fibre-fibre contacts occurred but were not as large as experimental departures. Further, the dispersion of the fibre centre of mass with the affine motion assumption (Δx^{Num}), average over all fibres remained very low during the suspensions compression (Table 5.1). In general, the numerical simulation did not reproduce the experimental departure from Jeffery’s model except for fibres that were in contact with the compression platens as shown in Figs. 5.6-7 (a) with an orange arrow. However, even in this case, the contact appearances were delayed from experimental observations. The origin of this discrepancy between the experimental observations and numerical results for both the fibre kinematic and stress levels could be related to the need of modelling the complex rheology of the suspending fluid used to prepare the model suspensions (e.g. viscoelastic effects could play a role on these phenomena). Confinement effects could also play a key role on the macroscopic stress level by introducing hydrodynamic and mechanical interactions at a microscopic scale between several fibres of the suspensions and the compression platens. The complex rheology of the suspending fluid and related complex hydrodynamic interaction effects could also be at the origin of some deviations of the fibre trajectories which appeared for fibre-fibre distance below $3d$ (where d is the fibre diameter). In addition, the FE code should also be enhanced to better model the mechanical behaviour fibre-fibre contacts that could also be at the origin of fibre kinematic deviations.

5.6 Conclusion

We performed lubricated compression experiments on model semi-dilute fibre suspensions with a non-Newtonian suspending fluid coupled with unprecedented real-time 3D in situ observations of the evolution of the fibrous microstructure during flow. These observations were made possible by using a dedicated micro-rheometer mounted in a synchrotron X-rays microtomograph, enabling very short scanning times (< 0.5 s) at high spatial resolution ($11 \mu\text{m}$). The rheology of these model fibre suspensions and confined flow conditions imposed in our experiments were close to those encountered in short-fibre reinforced polymer composite during their forming stage. The method was particularly efficient for extracting and following the position and orientation of each individual fibre during compression of these model suspensions. Regardless of the investigated conditions, *i.e.*, the strain rate and the initial fibres orientation, Jeffery’s model and its associated affine assumption for the motion of the centre of mass of fibres were not found to be relevant to describe the fibre kinematics in semi-dilute regime. Large deviations between both experimental measurements of fibre orientations and trajectories and predictions of Jeffery’s model were observed and related to hydrodynamic interactions between fibres and, in some cases, to the effect of contacts between fibres and neighbouring fibres and/or compression platens. These experiments were also simulated using a multi-domain FE code. This code used as input the initial geometry of the fibrous microstructures that were obtained from the 3D images, experimental boundary conditions and shear-thinning behaviour of the suspending fluid. Despite the non-linear behaviour of the

suspending fluid (represented as a power-law shear thinning fluid), the semi-dilute concentrations and the confined flow situations, both the predictions of the numerical FE model and Jeffery's model were in very good accordance. As expected, some deviations were observed when fibres were in contact with the compression platen. These deviations were qualitatively similar to the experimental observations. In addition, the effects of hydrodynamic interactions on the deviations of fibre trajectories were also observed, but these deviations remained limited. The numerical simulation could not reproduce the experimental deviations. The potential origin of this discrepancy could be related to viscoelastic effects that are not accounted for in the FE code.

Chapitre 6. Vers l'étude du régime concentré

Sommaire

6.1 Méthodes.....	111
6.1.1 Élaboration des suspensions.....	111
6.1.2 Essais de compression et dépouillement.....	111
6.2 Résultats préliminaires.....	113
6.2.1 À l'échelle de l'échantillon.....	113
6.2.2 À l'échelle des fibres.....	116
6.3 Discussion et conclusion.....	118

Dans ce chapitre, nous avons voulu montrer les premiers résultats expérimentaux que nous avons obtenus en comprimant des suspensions concentrées de fibres selon la méthodologie utilisée dans les chapitres précédents. Ces expériences sont originales. Elles ont permis de suivre pour la première fois les microstructures fibreuses de ces milieux en 3D et en temps réel. Ceci a été rendu possible grâce à la microtomographie à rayons X rapide et aux procédures d'analyse d'images développées au cours de la thèse que nous avons adaptées à l'étude de ce régime de concentration.

6.1 Méthodes

6.1.1 Élaboration des suspensions

Plusieurs échantillons ont été préparés en utilisant le même fluide suspensif et les mêmes fibres que dans les chapitres précédents. Tout en essayant d'élaborer des suspensions initialement plutôt isotropes, nous avons visé des taux volumiques et des élancements de fibres tels que les fibres soient connectées les unes avec les autres. Connaissant les élancements des fibres β et en supposant une orientation de fibres 3D et aléatoire, nous avons choisi la fraction volumique de fibres ϕ de sorte à ce que les suspensions élaborées se positionnent dans le régime dit concentré, i.e., lorsque le nombre de coordination moyen z de la suspension, ou nombre moyen de contacts fibre-fibre par fibre, soit en moyenne supérieur à 1. Pour cela, nous avons utilisé le modèle statistique de tube [Tol93], dont les estimations de z pour ce genre de milieux fibreux semblent raisonnables [ODV+12, GODR12]:

$$z = 4\phi \left(\frac{2}{\pi} \beta \Phi_1 + \Phi_2 + 1 \right) \quad (\text{Eq. 6.1})$$

où, connaissant les vecteurs tangents des fibres \mathbf{p}_i , leur nombre N , les fonctions d'orientation Φ_1 et Φ_2 peuvent être estimées selon expressions suivantes :

$$\Phi_1 = \frac{1}{N^2} \sum_{i=1}^N \sum_{j=1}^N \|\mathbf{p}_i \times \mathbf{p}_j\| \quad \text{et} \quad \Phi_2 = \frac{1}{N^2} \sum_{i=1}^N \sum_{j=1}^N |\mathbf{p}_i \cdot \mathbf{p}_j| \quad (\text{Eq. 6.2})$$

Ces fonctions valent respectivement $\pi/4$ et $1/2$ pour des structures dont l'orientation des fibres est 3D et aléatoire [TA93]. Dans la suite, nous présenterons les résultats issus de l'écoulement d'une seule de ces suspensions, c'est-à-dire contenant environ 40% volumique de fibres d'un diamètre de 180 μm et d'un élancement de 7.5, soit un échantillon contenant $N = 2770$ fibres.

6.1.2 Essais de compression et dépouillement

Pour déformer ces suspensions, nous avons suivi exactement les protocoles d'essais et d'imagerie présentés dans les chapitres précédents. Dans l'exemple choisi, la suspension a été soumise à une compression en déformation plane selon la direction \mathbf{e}_3 à une vitesse de compression constante de 11 $\mu\text{m} \cdot \text{s}^{-1}$, soit une vitesse de déformation initiale de 5.10^{-3}s^{-1} . Durant ces essais, une vingtaine d'images 3D ont été réalisés en temps réel, c'est-à-dire sans interrompre les essais au cours de la compression (les paramètres d'imagerie étant que ceux donnés dans les chapitres précédents).

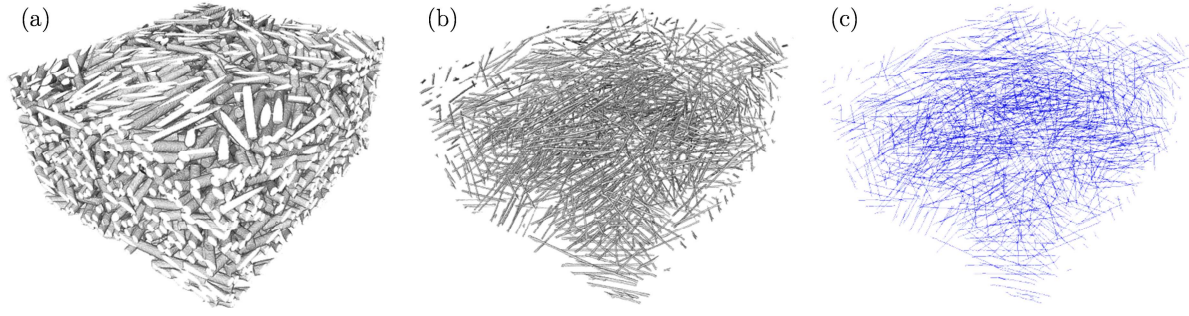


Figure 6.1 Illustration de la procédure d'individualisation des fibres dans le cas des suspensions concentrées : image 3D initiale segmentée sur la phase fibre (a), après segmentation sur la carte des distances euclidienne calculée sur la phase fibre (b), après squelettisation sous Avizo et lissage (c).

Une fois les essais réalisés, plusieurs opérations d'analyse d'images ont été effectuées au moyen des logiciels Fiji, Avizo et Matlab pour détecter puis suivre quantitativement les évolutions de la microstructure fibreuse au cours des essais de compression. Par rapport au travail réalisé dans les chapitres précédents, la difficulté majeure réside en l'individualisation de fibres du fait de leur forte concentration. Le reste des opérations, *i.e.*, le suivi des fibres est identique à ce qui a été développé en amont. Ainsi, dans la mesure où les fibres choisies ont une géométrie très simple et quelles sont quasi-identiques (cylindres à section droite circulaire de même diamètre et pratiquement de même longueur), nous avons pu utiliser la méthodologie simple proposée dans [ODV+12] et résumée sur la Figure 6.1. Une carte des distances euclidiennes 3D [Bor96] a été calculée dans un premier temps sur les images binarisées, en ayant réalisé auparavant une segmentation sur la phase fibreuse (Figure 6.1a). Cette opération consiste à calculer la distance de chaque voxel de la phase fibreuse par rapport à l'interface fibre-matrice et à attribuer au voxel considéré la valeur de distance, comprise entre 0 et 255. Cette carte de niveau de gris est ensuite utilisée pour réaliser une réduction du diamètre des fibres pour séparer les nombreuses fibres en contacts, par simple seuillage (typiquement de la moitié de l'histogramme, Figure 6.1b). Les fibres sont alors individualisées et leurs lignes moyennes sont ensuite extraites à partir d'un algorithme de squelettisation implémenté dans le logiciel Avizo (Figure 6.1c). Ces lignes moyennes sont alors lissées et discrétisées par une courbe paramétrique linéaire de coordonnées $\mathbf{x}_i(s)$ le long de l'abscisse curviligne s de chaque fibre i considérée. À chaque ligne moyenne a été associé un repère de Frenet mobile comprenant respectivement les vecteurs tangents, normaux et binormaux $[\mathbf{t}_i(s), \mathbf{n}_i(s), \mathbf{b}_i(s)]$ calculés le long de l'abscisse curviligne grâce à un schéma aux différences finies. Ainsi, l'ensemble $(\mathbf{x}_i, \mathbf{t}_i, \mathbf{n}_i, \mathbf{b}_i)$ permet de caractériser la géométrie locale des fibres et notamment de déterminer leurs orientations (moyenne \mathbf{p}_i du vecteur \mathbf{t}_i le long de l'abscisse curviligne) ainsi que la position et l'orientation de leurs contacts discrets. Enfin, les \mathcal{C} contacts fibre-fibre présents dans le volume scanné sont extraits grâce aux méthodes développées dans [LOG+11] et [ODV+12], *i.e.*, par calcul de distance entre lignes moyennes des fibres. Ils permettent d'abord d'estimer le nombre de coordination moyen z dans la suspension. Dans le cas qui nous concerne, où les fibres peuvent être en première approximation considérées comme droites, il est possible de ce fait d'obtenir une estimation de la normale au contact $\mathbf{c}_\alpha = \mathbf{p}_i \times \mathbf{p}_j$ entre deux fibres i et j se touchant. Dès lors, une description compacte de l'orientation des fibres et de leurs contacts au sein de la suspension peut être formulée par les tenseurs d'orientation d'ordre 2, \mathbf{A} et \mathbf{C} [GODR12]:

$$\mathbf{A} = \frac{1}{N} \sum_{i=1}^N \mathbf{p}_i \otimes \mathbf{p}_i \quad \text{et} \quad \mathbf{C} = \frac{1}{C} \sum_{\alpha=1}^C \mathbf{c}_\alpha \otimes \mathbf{c}_\alpha \quad (\text{Eq. 6.3})$$

6.2 Résultats préliminaires

Les résultats typiques obtenus lors d'un essai avec imagerie 3D *in situ* et en temps réel sont illustrés sur les figures suivantes, tirées de l'essai de compression en canal de la suspension contenant 2770 fibres. Les dimensions du canal sont les suivantes $l \times L \times h = 8 \times 20 \times 8 \text{ mm}$ et le taux de déformation initiale est $D_{33}^0 = 0.004 \text{ s}^{-1}$.

6.2.1 À l'échelle de l'échantillon

La Figure 6.2 présente l'évolution de la force mesurée selon l'axe \mathbf{e}_3 lors de la compression de la suspension. Nous avons également reporté sur cette figure des représentations 3D de la structure fibreuse au cours de l'écoulement de la suspension.

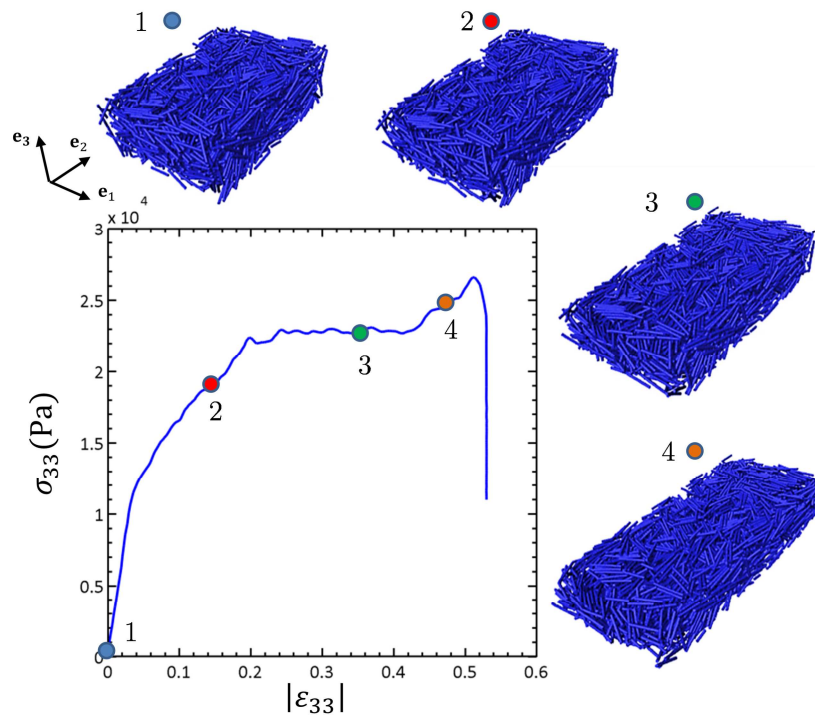


Figure 6.2 Compression en déformation plane d'une suspension concentrée de 2770 fibres. Force mesurée expérimentalement selon l'axe \mathbf{e}_3 en fonction de la déformation de Henchy $|\epsilon_{33}|$ de l'échantillon, dont la structure fibreuse est représentée sur les images 3D à diverses valeurs de déformation.

- Cette figure montre l'augmentation de la contrainte de compression, selon des évolutions semblables à celles observées dans le chapitre précédent pour le régime semi-dilué. Cependant, les efforts requis ici pour faire s'écouler la suspension sont bien supérieurs à ceux relevés précédemment dans le régime semi-dilué, d'un facteur 10.

- La Figure 6.2 montre également que la structure fibreuse est comprimée selon l'axe \mathbf{e}_3 mais qu'elle s'écoule également selon l'axe du canal, dans les directions \mathbf{e}_2 et $-\mathbf{e}_2$. L'écoulement de la suspension est macroscopiquement homogène, de type bouchon, sans séparation entre fibres et matrice. Comme pour les régimes dilué et semi-dilué, il se produit pratiquement de manière isovolume : cela tend à montrer que malgré la concentration élevée de la suspension et l'état de contrainte compressif auquel elle est soumise, l'enchevêtrement du réseau fibreux est suffisamment faible pour laisser s'écouler les fibres les unes par rapport aux autres.

Le premier point est plus précisément illustré sur la Figure 6.3, où nous avons reporté les contraintes de compression mesurées à une déformation de compression de 0.3, adimensionnalisées par la valeur de contrainte obtenue dans les mêmes conditions pour la matrice, pour les deux vitesses de déformation étudiées et tous les taux de fibres investigués (à même élanement de fibres). Cette figure souligne bien la faible influence de la vitesse de déformation sur les contraintes adimensionnalisées, et le fort effet du taux de fibres.

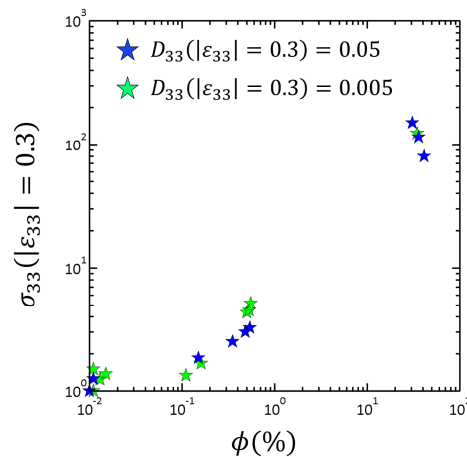


Figure 6.3 Comparaison de la contrainte adimensionnelle σ_{33}^* évaluée à une déformation de Hencky $|\epsilon_{33}| = 0.3$ au cours d'essai de compression simple en fonction de la concentration en fibres ϕ des suspensions étudiées et du taux de déformation $\dot{\epsilon}$ appliquée.

La Figure 6.4 donne quant à elle quelques tendances moyennes relatives à l'évolution globale de la microstructure fibreuse de la suspension.

- Les graphes reportés sur les figures 6.4ab montrent respectivement les évolutions des composantes diagonales des tenseurs \mathbf{A} et \mathbf{C} (qui sont pratiquement les composantes principales de ces tenseurs). Initialement, l'orientation de la structure fibreuse est isotrope transverse, tandis que l'isotropie transverse initiale des normales aux contacts fibre-fibre est bien plus marquée, avec une forte densité d'orientation selon l'axe \mathbf{e}_3 . Ceci est probablement lié au mode de fabrication des échantillons, où les fibres sont introduites dans le fluide suspensif par le haut, le long de l'axe \mathbf{e}_3 . Les évolutions des termes diagonaux des tenseurs \mathbf{A} et \mathbf{C} montrent une réorientation naturelle des fibres selon l'axe du canal \mathbf{e}_2 , qui se répercute par un léger accroissement de l'orientation des contacts selon l'axe \mathbf{e}_1 . Enfin, il est intéressant de noter qu'à l'inverse, la densité de contacts alignés selon l'axe \mathbf{e}_3 n'évolue que très peu.

- La Figure 6.4c montre l'évolution du nombre de coordination z en fonction de la déformation. Les barres d'erreur correspondent à l'erreur de plus ou moins un voxel liée à la détermination de la ligne moyenne des fibres. Le nombre z est initialement égal à 2, ce qui montre que la suspension étudiée est dans le régime concentré et que les fibres forment un réseau bien connecté. Ce graphe montre aussi que z diminue très légèrement au cours de la compression. Cette tendance est à mettre au regard de l'évolution de l'orientation des fibres (voir les commentaires précédents) dont la connectivité a tendance à diminuer quand celles-ci s'orientent, comme le prévoit également le modèle de tube (Eq. 6.1). À ce sujet, nous avons également reporté dans cette figure les évolutions prévues par le modèle de tube [Tol93], en calculant explicitement son expression Eq. 6.1 au moyen de l'orientation de chaque fibre pour estimer les fonctions d'orientation Φ_1 et Φ_2 (Eq. 6.2). La Figure 6.4c montre que, quantitativement, les prévisions du modèle de tube reproduisent plutôt très bien les évolutions expérimentales bien que les prévisions théoriques soient légèrement plus élevées. Ce résultat est en accord avec les observations faites précédemment sur quelques images 3D par [ODV+12] [GODR12].

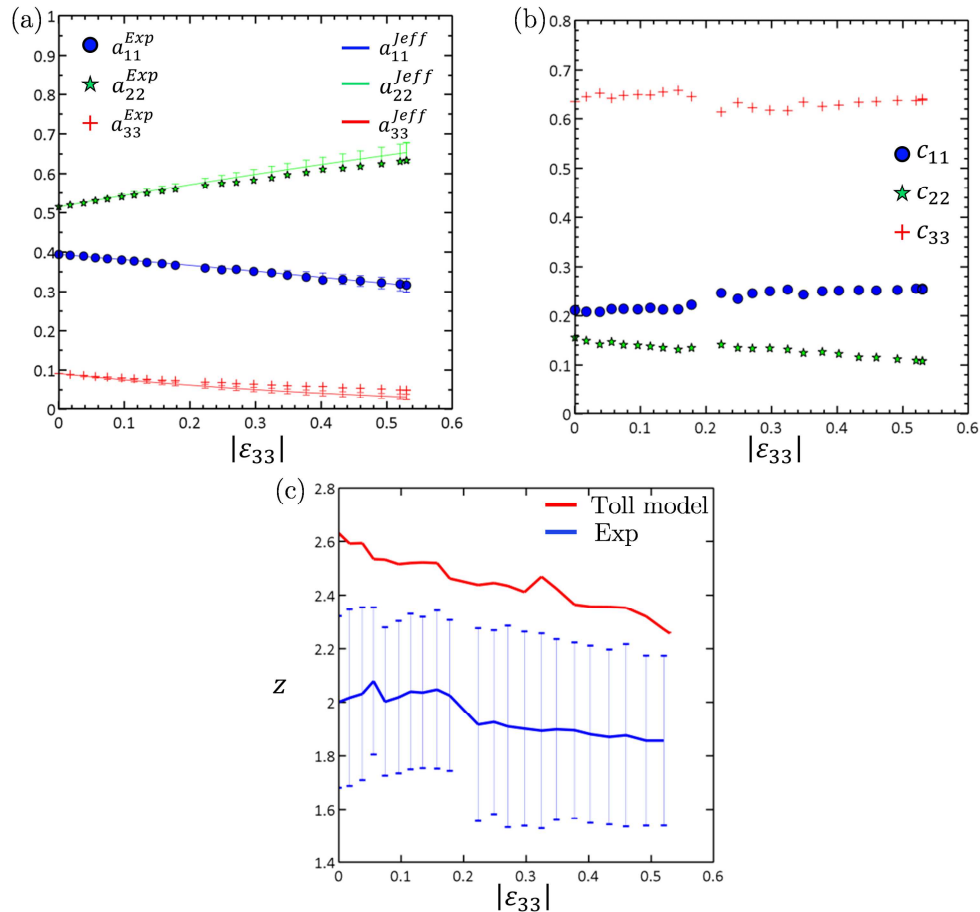


Figure 6.4 Évolution en fonction de la déformation de Henchy $|\epsilon_{33}|$ de l'échantillon, des termes diagonaux des tenseurs d'orientation d'ordre deux des fibres a_{ii} (a, les courbes en trait continu représentent les prévisions du modèle de Jeffery) et de leur contact c_{ii} (b) et du nombre moyen de coordination z (c, la courbe en rouge donne les prévisions issues du modèle de tube (Eq. 6.1)).

6.2.2 À l'échelle des fibres

Les méthodes d'analyse d'images que nous avons mises en place nous permettent d'étudier plus précisément les microstructures à l'échelle des fibres. Avec la méthode de corrélation semi-discrète des positions spatiales des lignes moyennes de fibres (annexe B), il est également possible d'analyser finement les mécanismes d'écoulement aux mêmes échelles, en particulier les cinématiques des fibres qui ont pu être reconnues, identifiées et suivies au cours de la compression de l'échantillon.

- Le graphe (a) de la Figure 6.6 illustre la performance de l'algorithme de corrélation semi-discrète dans l'exemple de compression étudié dans ce chapitre. Ce graphe donne l'évolution du pourcentage de bonne association de fibres par corrélation entre une image discrétisée à un état de déformation $|\varepsilon_{33}|$ et celle à $|\varepsilon_{33}| + \Delta|\varepsilon_{33}|$. Grâce à la possibilité d'acquérir sur la ligne synchrotron les images à une fréquence suffisamment élevée, c'est-à-dire avec des incréments de déformation entre images $\Delta|\varepsilon_{33}| < 0.03$, un pourcentage d'association de fibres élevé, supérieur à 90%, a été obtenu.
- De là, nous avons par exemple pu suivre précisément la position et l'orientation de fibres voisines prises au centre de l'échantillon ainsi que la position et le nombre des contacts associés à ces fibres. Ces résultats sont en partie représentés sur la Figure 6.5. Sur les images 3D de gauche sont représentées en bleu les lignes moyennes de toutes les fibres au cours de la compression, tandis que les images de droite donnent un zoom au cœur de l'échantillon où les lignes moyennes des fibres suivies sont représentées en couleur en trait épais et leurs contacts discrets associés avec les fibres environnantes en trait fin noir sont symbolisés par des points rouges.

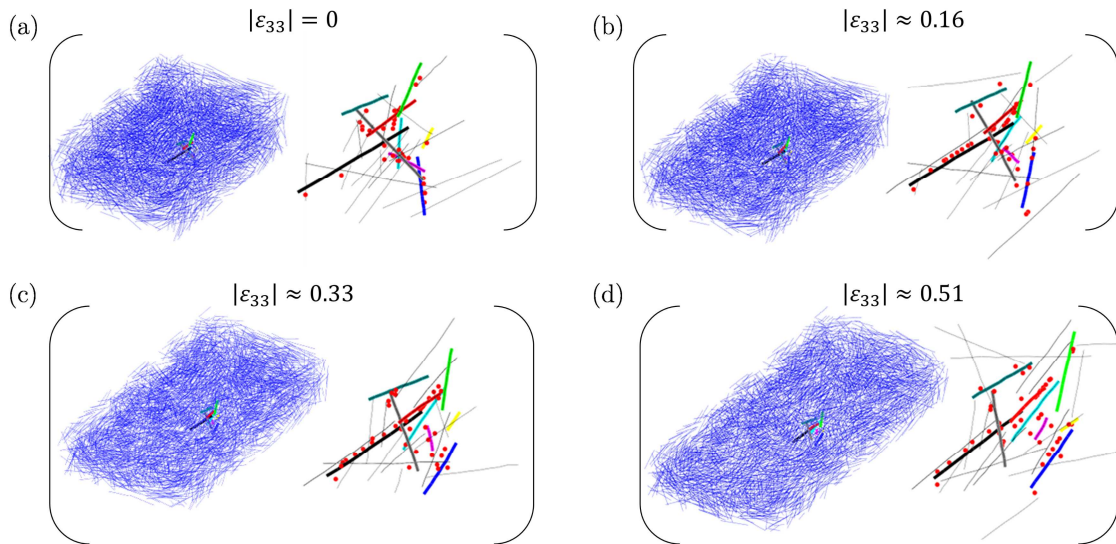


Figure 6.5 Représentation des lignes moyennes des fibres au cours de la compression de la suspension (à gauche) et suivi de la cinématique de neuf fibres prises au centre de l'échantillon (à droite) dont les lignes moyennes sont individuellement représentées d'une couleur différente et en traits épais. Leurs contacts discrets avec les fibres environnantes (de couleur noire en trait fin) sont également représentés par des points rouges.

- Les graphes (b-d) de la Figure 6.6 exposent quant à eux les évolutions, en fonction de la déformation de compression macroscopique, des déviations du mouvement des centres de gravité vis-à-vis d'un champ de translation affine $\Delta\mathbf{x}_i$ (b), et des angles θ_i (c) et φ_i

(d) des fibres suivies. Ces trois graphes illustrent bien le mouvement très chaotique des fibres dans leur réseau. Par exemple, le graphe (b) montre que les mouvements des centres de gravité des fibres présentent de très fortes déviations par rapport aux mouvements qu'ils devraient avoir sous l'hypothèse de champ affine. Ces déviations sont bien plus prononcées que celles qui ont été observées dans les régimes de concentration dilué et semi-dilué (chapitres précédents). Cette observation est également transposable au cas des rotations des fibres : si le mouvement général des fibres montre qu'elles s'alignent dans la direction de l'écoulement, le mouvement individuel de chacune des fibres est très bruité, et surtout, il est très éloigné du mouvement de rotation prévue par l'équation de Jeffery, comme le montrent les courbes en traits continus reportés sur la Figure 6.6a,b. Ces résultats, obtenus au cœur de l'échantillon, soit dans une zone éloignée des bords, sont à l'opposé de ceux enregistrés dans les régimes dilué et semi-dilué (chapitres précédents). Pour autant, il est important de noter ces mouvements chaotiques de translation et de rotation, induits par les multiples interactions entre fibres, sont tels qu'au final (i) la déformation macroscopique de l'échantillon reste homogène (Figure 6.2) et (ii) l'orientation moyenne des fibres suit particulièrement bien les prévisions données par l'équation de Jeffery, comme le montrent les courbes en traits continus de la Figure 6.4a.

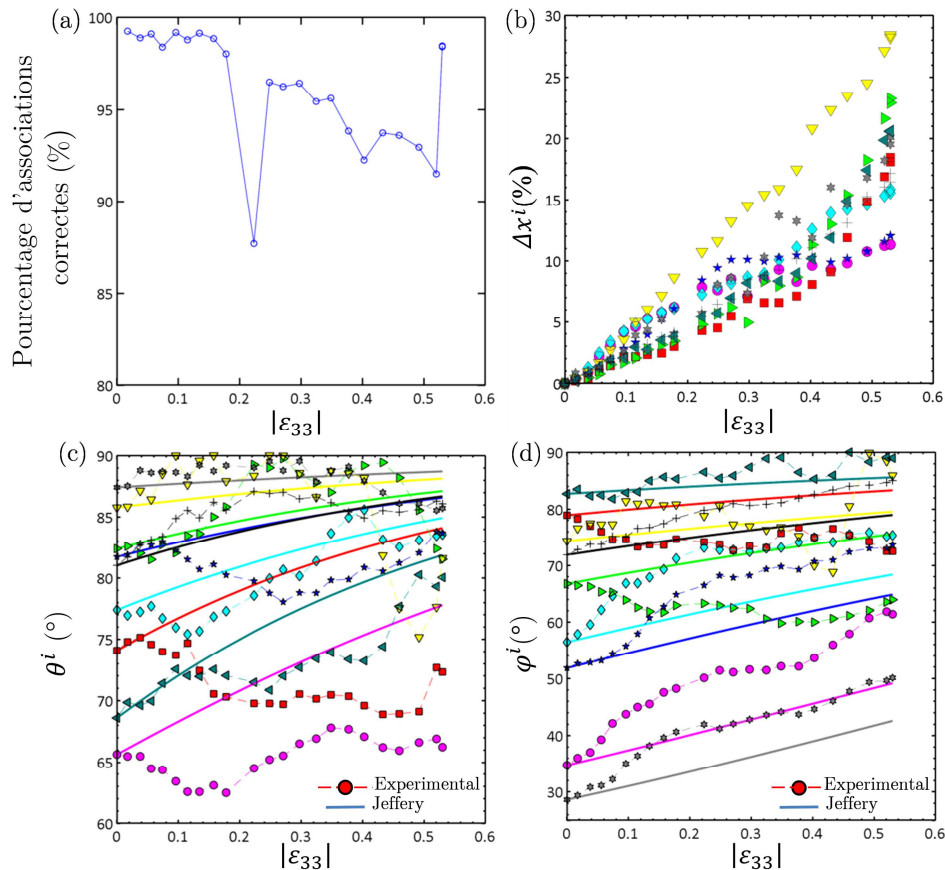


Figure 6.6 Le graphe (a) donne le pourcentage d'association de fibres par corrélation semi-discrète des lignes moyennes des fibres, en fonction de la déformation de l'échantillon. Les graphes (b-d) représentent les évolutions des déviations Δx_i (b), des angles θ_i (c) et φ_i (d) associés à ces neuf fibres en fonction de $|\epsilon_{33}|$. Discussion et conclusion

6.3 Discussion et conclusion

Dans ce court chapitre, nous avons voulu tester et montrer les possibilités apportées par les procédures expérimentales mises en place dans ce travail pour étudier la rhéologie des suspensions concentrées de fibres. Avec un minimum de modifications (au niveau de l'individualisation des fibres seulement), ces procédures semblent très efficaces et ont permis d'obtenir quelques résultats expérimentaux préliminaires tout à fait originaux, mettant en exergue un net changement dans les cinématiques 3D des fibres vis-à-vis de celles observées dans les régimes de concentration dilué et semi-dilué. S'ils doivent être confirmés (expériences en cours de dépouillement), ces résultats montrent à l'évidence le rôle important joué par les interactions entre fibres sur la rhéologie de ces systèmes : effets « stériques » et interactions hydrodynamiques à courtes distances. Nous avons montré que le modèle de tube pouvait raisonnablement être utilisé pour estimer le nombre de ces interactions dans les suspensions concentrées. En outre, il ressort que ces interactions, notamment celles d'origine stérique, induisent localement des mouvements de fibres très fortement perturbés et que nous avons caractérisés en 3D ; ces cinématiques sont loin des prévisions standard de type champ affine et équation locale de Jeffery. En quelque sorte, ces perturbations ont des origines similaires à celles que nous avons mises en évidence précédemment dans les cas de confinement. Malgré cela, nous avons également montré qu'à l'échelle supérieure, l'équation de Jeffery restait suffisamment et étonnamment robuste. À l'évidence, au regard des travaux de modélisation de la littérature, ces premiers résultats ouvrent de nombreuses voies de réflexion pour l'amélioration des modèles micromécaniques et des processus de changement d'échelles destinés à modéliser la rhéologie des systèmes fibreux concentrés.

Conclusion générale et perspectives

Grâce à leurs propriétés physiques et mécaniques spécifiques remarquables, les matériaux composites à matrice polymère et renforts fibreux tendent, depuis quelques dizaines d'années, à remplacer les produits métalliques des industries aéronautiques, nautiques et automobiles, ainsi que du sport et des loisirs. La qualité et les performances de ces matériaux sont directement liées à la nature et à la géométrie des renforts employés (par exemple fibres continues ou discontinues) mais également à leur distribution spatiale et leur orientation. Ces paramètres microstructuraux sont bien souvent étroitement corrélés aux procédés d'élaboration et de mise en forme de ces matériaux. Dans ce contexte, notre étude s'est focalisée sur la compréhension et la modélisation des mécanismes d'écoulement complexes se produisant au cours de la mise en forme de composites polymères renforcés par des fibres courtes. Ces systèmes se comportent comme des suspensions de fibres dans des régimes de concentration semi-dilués à très concentrés. Dans ces milieux, les fibres se déplacent, se réorientent voire se déforment ou se cassent, sous l'action à la fois du fluide suspensif, le plus souvent au comportement rhéologique non-newtonien, et des fibres voisines par le biais d'interactions de types hydrodynamiques ou plastiques qu'elles induisent et des effets d'encombrement stérique (cas de fibres de tailles millimétriques). Dans la plupart des situations d'écoulements industriels, ces mécanismes sont d'autant plus complexes, car ils se déroulent dans zones dites confinées, dont la taille caractéristique est du même ordre de grandeur que celle des fibres.

Comme nous l'avons mis en évidence dans la revue bibliographique non-exhaustive du chapitre 1, la caractérisation, la compréhension et la modélisation de la rhéologie des suspensions de fibres non-newtoniennes ainsi que des évolutions de leur microstructure fibreuse posent encore des problèmes ouverts, qui plus est dans les régimes d'écoulement confinés. Plusieurs verrous peuvent expliquer un tel constat. Sur le plan théorique, le fait de vouloir tenir compte dans un processus de changement d'échelles du caractère non-newtonien du fluide suspensif, ou du mouvement non-affine des fibres, par exemple dans les régimes concentrés où les situations d'écoulements confinés, n'est pas une opération triviale. De la même manière, nous avons vu que, sur les plans numériques et expérimentaux, vouloir simuler numériquement ou caractériser expérimentalement en 3D les mécanismes d'écoulement se produisant aux échelles des fibres reste encore très difficile et délicat. Toutefois, divers travaux de mécanique numérique et expérimentale récents sur d'autres matériaux ont montré que ces dernières approches pouvaient potentiellement donner de nombreuses données pertinentes aux petites échelles permettant de construire des modèles micromécaniques plus adaptés.

C'est en suivant cette approche que nous avons abordé l'analyse de la rhéologie et des microstructures de suspensions de fibres en écoulement, c'est-à-dire en combinant simulations numériques avancées et imagerie 3D en temps réel, réalisées toutes les deux à l'échelle des fibres. Dans le premier cas, nous avons utilisé un code de calculs éléments finis 3D particulièrement bien approprié au problème, dont le formalisme eulérien est capable de décrire finement des objets dans des fluides (fibres, parois) par des fonctions level-sets et des techniques de remaillage anisotrope, les fluides ayant eux-mêmes la possibilité d'avoir un comportement non-newtonien. Dans le deuxième cas, afin d'observer et de caractériser

expérimentalement les mécanismes d'écoulement, nous avons élaboré des suspensions de fibres modèles dans différents régimes de concentration et avec un fluide suspensif non-newtonien. Ces suspensions ont été déformées dans des écoulements dits confinés, en réalisant des essais continus dans un rhéomètre de compression monté sur un microtomographe à rayons X synchrotron, ce dernier permettant l'acquisition de clichés 3D à forte résolution spatiale pour un temps de scan inférieur à la demi-seconde. Cette méthode s'est montrée particulièrement efficace pour analyser les micromécanismes de déformation des suspensions au cours de leur écoulement. Pour cela, une procédure d'analyse d'images dédiée a également été mise au point pour permettre l'extraction de descripteurs microstructuraux tels que les positions et les orientations des fibres et de leurs contacts. L'évolution de ces descripteurs a été suivie en utilisant pour cela une méthode de corrélation semi-discrète des positions spatiales des lignes moyennes des fibres.

Grâce à cette approche couplée, plusieurs études expérimentales, numériques ont été réalisées et présentées. En premier lieu, nous avons expérimentalement observé et caractérisé en 3D la cinématique de fibres de suspensions diluées soumises à un écoulement confiné et lubrifié de compression simple (Chapitre 3). Ces essais ont ensuite été modélisés par simulation numérique directe offrant une vision inédite des propriétés des écoulements (Chapitre 4), permettant d'étendre les modèles analytiques de la littérature pour la cinématique de fibres en milieux confinés aux cas d'écoulements non-newtoniens et confinés non-symétriquement. Puis, des observations expérimentales et des prédictions numériques des évolutions microstructurales et des contraintes macroscopiques de suspensions semi-diluées dans une situation de compression simple lubrifiée et confinée ont été comparées (Chapitre 5). Enfin, les premiers résultats issus du dépouillement des images de microtomographie acquises lors d'un essai de compression en déformation plane confinée d'une suspension concentrée de fibres sont présentés (Chapitre 6). Plusieurs résultats importants ont été mis en évidence dans l'ensemble de ces études tant sur le plan méthodologique que sur le comportement rhéologique des suspensions étudiées. Les principaux résultats sont listés ci-dessous, leur validité étant restreinte aux gammes de taux de déformation imposés (10^{-3} - 10^{-2} s⁻¹), de déformation maximale de compression explorée (0,5) et d'éclancements et de taux de fibres utilisés (1% – 40%) :

- **Sur le plan méthodologique**, une des originalités de cette étude a été de coupler l'imagerie 3D en temps réel et la simulation numérique pour étudier finement la rhéologie des suspensions fibreuses. Dans un premier temps, les expériences réalisées en régime dilué ont été simulées en utilisant directement comme conditions initiales et conditions aux limites celles mesurées expérimentalement. Ce dialogue expérience-simulation a montré la pertinence des simulations numériques dans ce régime de concentration. De là, l'utilisation de la simulation numérique a permis d'affiner l'analyse des évolutions microstructurales et de les relier au caractère non-newtonien de la matrice en accédant directement aux propriétés intrinsèques de l'écoulement telles que les champs de vitesses et de contraintes. Avec l'apport de la simulation numérique, nous avons également pu proposer des extensions des modèles heuristiques de la littérature pour la cinématique de fibres en régime confiné (*cf.* Annexe F). Nous avons également mis en évidence une corrélation quantitativement moins bonne entre expériences et simulations dans les régimes semi-dilués. Le choix d'un modèle rhéologique simple pour le fluide suspensif peut en grande partie expliquer ces

divergences. Enfin, du fait des schémas numériques actuellement utilisés dans le code de simulation, il n'a pas été possible de réaliser ces comparaisons dans le régime concentré.

- **Sur le plan de la mécanique des suspensions de fibres**

- Dans les cas de suspensions constituées d'une seule fibre, nous avons montré que le confinement de l'écoulement et le comportement rhéofluidifiant du fluide suspensif avaient une influence mineure sur la cinématique des fibres, si ces dernières restaient suffisamment éloignées des plateaux de compression, c'est-à-dire à d'une distance de l'ordre d'une à deux fois leur diamètre. Nous avons également vu que si la condition précédente était respectée, ces conclusions restaient valables pour des suspensions de fibres dans le régime dilué, c'est-à-dire dans le cas où les interactions hydrodynamiques entre fibres voisines (par écrantage) sont rares. Dans toutes ces situations, l'hypothèse de champ affine pour le mouvement de translation des fibres est raisonnable, et le modèle de Jeffery suffisamment robuste pour décrire leur rotation.
- Quel que soit le régime de concentration étudié, des effets de confinement ont été clairement mis en évidence expérimentalement et numériquement pour des fibres entrant en contact avec un seul ou bien les deux plateaux de compression, engendrant de fortes déviations sur leurs déplacements et leurs rotations au cours de l'écoulement de la suspension. Dans les cas d'une seule fibre ou du régime dilué, nous avons repris les travaux récents de la littérature [per16] qui se basent sur une description idéalisée des fibres vues comme des haltères, pour étendre la validité du modèle de Jeffery au cas des fluides newtoniens généralisés et pour lui adjoindre des correcteurs dans les situations de confinements symétrique ou asymétrique. Ce modèle s'est avéré donner de bons résultats pour décrire les phénomènes de confinement observés.
- Des déviations de la cinématique de fibres ont été observées pour des suspensions semi-diluées, même à distance des plateaux de compression. L'origine de ces déviations est due à des interactions hydrodynamiques entre fibres suffisamment voisines (effet d'écrantage). Dans ces systèmes, les hypothèses locales de champs affines et d'orbite de Jeffery sont éloignées des conditions expérimentales et les niveaux de contraintes prévus par les modèles de suspensions dilués sous-estiment ceux obtenus expérimentalement.
- Dans le régime concentré, les premiers résultats que nous avons obtenus montrent de très importantes fluctuations des champs de translation et de rotation des fibres. L'ordre de grandeur de ces fluctuations est identique à celui des champs moyens. Ces fluctuations sont à imputer aux nombreux contacts entre fibres. Toutefois, malgré les mouvements chaotiques des fibres, la déformation macroscopique de la suspension reste homogène et l'orientation générale de la suspension est suffisamment bien décrite par l'équation de Jeffery moyennée (tenseur d'orientation d'ordre 2). Nous avons également montré que le modèle de tube était lui aussi suffisamment robuste pour donner une bonne estimation du nombre moyen de coordination, c'est-à-dire du nombre de contacts entre fibres, dans la suspension.

À l'issue de ce travail, de nombreuses **perspectives** se dégagent. Parmi celles-ci, on peut mentionner les points suivants :

- Le comportement viscoélastique de la matrice polymère, son influence sur les micro-mécanismes de déformation et les niveaux de contraintes atteints dans les suspensions devraient être plus précisément étudiés, en intégrant par exemple la viscoélasticité de la matrice dans le code de simulation numérique. La prise en compte de cet aspect améliorerait certainement grandement les prévisions numériques.
- Dans le cas de fluides newtoniens généralisés et de régimes de concentration dilués voire semi-dilués, l'outil de simulation numérique a montré ses capacités et sa pertinence. Les validations que nous avons réalisées dans des situations diluées montrent qu'il est désormais envisageable d'utiliser cet outil pour réaliser un ensemble d'expériences numériques sur volumes élémentaires représentatifs, confinés ou non, afin de constituer ainsi une base de données enrichie et de proposer des extensions aux modèles multi-échelles de la littérature des suspensions.
- Si elles sont délicates à réaliser et longues à dépouiller, les expériences de rhéométrie avec imagerie 3D en temps réel ont constitué une source inégalée d'informations. Il serait opportun de tester la réponse des suspensions pour d'autres sollicitations mécaniques, comme le cisaillement ou la traction ou d'autres fluides suspensifs (fluides à seuil par exemple) et d'autres fibres (plus élancées et plus flexibles, par exemple).
- Les premiers résultats expérimentaux que nous avons obtenus dans le régime concentré sont extrêmement prometteurs : de nombreux essais, non présentés dans ce manuscrit, ont été réalisés et il conviendrait de mener un dépouillement approfondi pour mieux comprendre la micromécanique complexe de ces systèmes concentrés. Par exemple, l'analyse préliminaire présentée dans le chapitre précédent n'a pas été menée jusqu'à une caractérisation détaillée de la cinétique des sous-structures de fibres apparaissant dans ces suspensions (Figure 0.6), c'est-à-dire d'agrégats qui jouent vraisemblablement un rôle-clé dans les évolutions chaotiques observées pour le mouvement des fibres. Ce pan de recherche est à ouvrir.

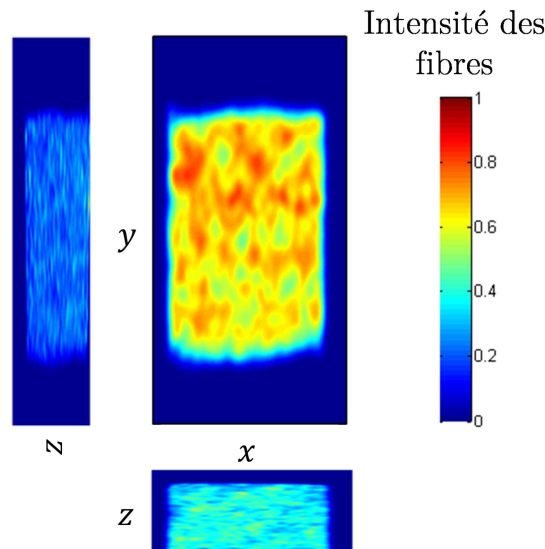


Figure 0.6 Carte 2D de densité des fibres obtenues par la fonction « Bivariate Kernel Density Estimator » codée dans Matlab [Botev10] à partir de leurs lignes moyennes projetées dans les plans $(\mathbf{e}_2, \mathbf{e}_3)$, $(\mathbf{e}_1, \mathbf{e}_2)$ et $(\mathbf{e}_1, \mathbf{e}_3)$ pour une déformation de Hencky en compression de 0.2 de l'échantillon. Ces cartes montrent l'existence d'agrégats dans la suspension, notamment dans le plan $(\mathbf{e}_1, \mathbf{e}_2)$.

Annexe A. Matériaux et méthodes expérimentales

A.1 Rhéologie de la matrice

Le fluide utilisé dans cette étude est un gel hydrocarboné. La transparence de ce gel a permis de contrôler l'architecture fibreuse de la suspension au cours de son élaboration. Sa viscosité μ est facilement ajustable avec la température comme le montre la Figure A-1.1. À 120°C, sa viscosité en cisaillement est de l'ordre de 1 Pa.s à 1 s⁻¹, ce qui favorise l'imprégnation du réseau fibreuse ainsi que la saturation de la suspension au cours de l'élaboration du composite. À température ambiante, ce gel est sous forme « solide » permettant ainsi de figer la structure fibreuse. À 50°C, les propriétés rhéologiques non linéaires du gel sont proches de celles des matrices polymères utilisées dans l'industrie des composites. À cette température, le caractère rhéofluidifiant de la matrice est modélisé par une loi puissance:

$$\mu = K\dot{\gamma}^{n-1} \quad (\text{Eq. A.1})$$

où $K = 440 \text{ Pa}\cdot\text{s}^{1-n}$ est la consistance du fluide et $n = 0.2$ la sensibilité à la vitesse de déformation généralisée $\dot{\gamma} = \sqrt{2\mathbf{D}:\mathbf{D}}$. Ces paramètres sont ajustés à partir des données expérimentales obtenues à 50°C (rhéomètre cône-plan, Anton Paar MCR301).

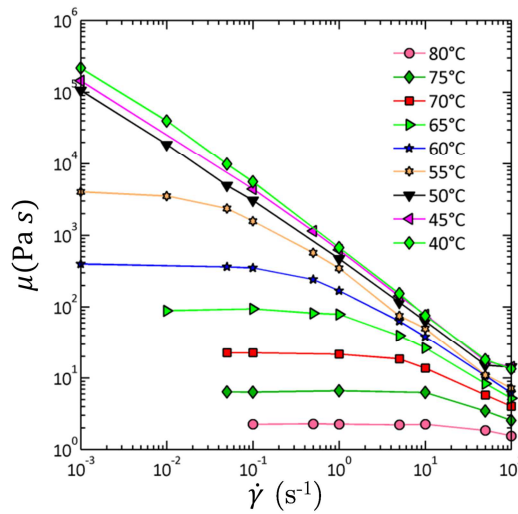


Figure A-1.1 Évolution de la viscosité du gel en fonction de la vitesse de déformation généralisée $\dot{\gamma}$ et de la température.

A.2 Fabrication des suspensions modèles

Les fibres utilisées comme renforts ont été extraites d'un fil de pêche possédant un revêtement à base de fluorocarbure ce qui leur confère un bon contraste d'absorption aux rayons X avec la matrice. Des essais de traction ont été effectués à différentes vitesses d'élongation afin d'obtenir les propriétés mécaniques du fil. Les propriétés sont les suivantes pour un diamètre de fil de 200 μm : le module d'Young est égal à 2.5 GPa, la contrainte à la rupture vaut 0.95 GPa et la déformation à la rupture est de l'ordre de 20%. La méthode pour extraire des fibres du fil continu nécessite de constituer un faisceau d'une centaine de files qui est glissé et maintenu de

manière stable dans un tube en plastique comme représenté sur la Figure A-2.1a. L'ensemble des fils est coupé à l'aide d'une lame de rasoir permettant ainsi d'obtenir des coupes franches aux extrémités des fibres comme le montre le cliché obtenu par microscopie électronique à balayage (M.E.B) de la Figure D-2.1b.

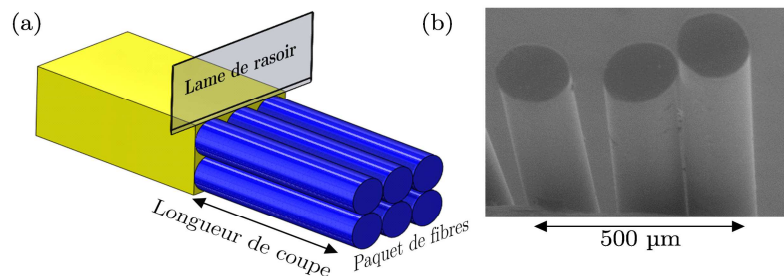


Figure A-2.1 (a) Schéma du dispositif de coupe des fibres. (b) Image MEB des extrémités des fibres.

Les suspensions diluées et semi-diluées étudiées ont ensuite été préparées en suivant trois étapes comme le résume la Figure A-2.2. Tout d'abord une fine couche de gel préalablement chauffé à 120°C, a été déposée au fond d'un moule circulaire maintenu à température ambiante (Figure A-2.2a). Une fois le gel refroidi, les fibres ont été piquées à la main dans le gel solidifié ce qui permet de contrôler leur orientation (Figure A-2.2b). Enfin, les deux précédentes étapes ont été ensuite répétées afin d'imprégner le réseau fibreux et d'obtenir la concentration en fibres souhaitée.

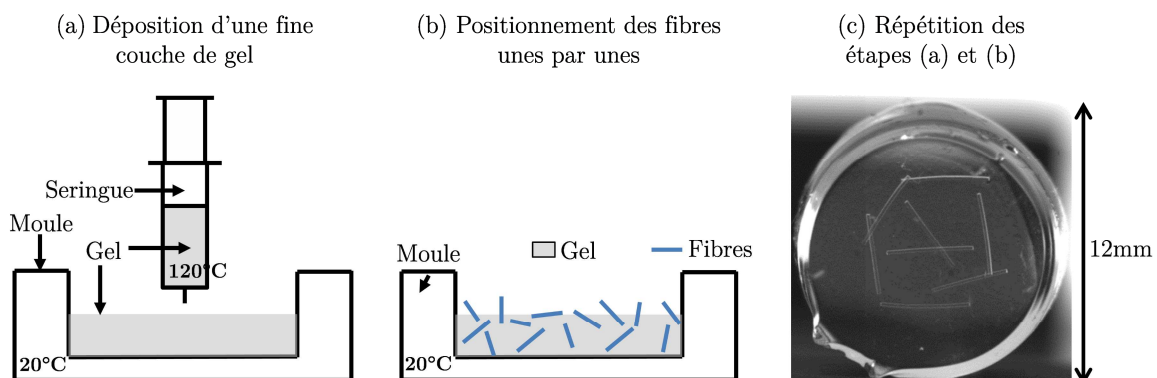


Figure A-2.2 (a) Schéma montrant le dépôt d'une fine couche de gel au fond du moule d'élaboration des suspensions. (b) Ajouts des fibres par piquage dans le gel. (c) Photographie d'une suspension modèle.

Pour les suspensions concentrées, la méthode d'élaboration est légèrement différente. Celle-ci a nécessité qu'un mâts de fibre soit déposé par projection aléatoire de fibres au fond d'un moule froid. Grâce à cette méthode, l'orientation de la structure fibreuse obtenue était principalement isotrope transverse. Puis, la structure fibreuse a été imprégnée par le gel préalablement chauffé à 120°C. L'ensemble a été ensuite maintenu quelques heures à 120°C et soumis à une vibration constante afin de permettre aux bulles d'air emprisonnées par la structure fibre de s'échapper de la suspension.

A.3 Récapitulatifs des essais réalisés

Les échantillons fabriqués ont été soumis à des chargements mécaniques de compression simple et de compression en déformation plane. Le type de compression ainsi que les caractéristiques des suspensions de fibres telles que le nombre de fibres N , la concentration ϕ et l'élanement moyen des fibres β (rapport entre la longueur et le diamètre des fibres) sont regroupés dans les Tableaux A.3.1-3 établis respectivement pour les régimes de concentration dilués, semi-dilués et concentrés des suspensions créées. Les essais ont été réalisés à faible taux de compression (*cf.* Tableaux A.3.1-3 grâce à un micro-rhéomètre spécialement conçu, représenté sur la Figure A-3.1. Le chargement mécanique est appliqué grâce à un moteur piézoélectrique qui permet de comprimer l'échantillon par la translation du plateau de compression inférieur. Un capteur de force, d'une capacité maximale de 5 N, placé en arrière du plateau supérieur fixe permet d'enregistrer l'évolution de la force de compression F_3 au cours des essais. Un capteur de déplacement permet également de mesurer la hauteur l_3 de l'échantillon au cours des essais. La température des plateaux est régulée à 50°C par l'intermédiaire de cartouches chauffantes et de thermocouples assurant un contrôle de la température de l'échantillon et ainsi de sa viscosité (*cf.* Figure A-3.1b). La chambre de compression est construite en PMMA qui est un matériau peu absorbant aux rayons X. Avant d'entamer les essais, les plateaux de compression ont été lubrifiés puis les suspensions ont été soumises à une légère pré-compression pour assurer un bon contact avec les plateaux du micro-rhéomètre. Cet état définit l'état initial de la suspension. La Figure A-3.2 montre un exemple de suspension concentrée à la sortie du moule de mise en forme (a) et suite à un essai de compression en canal (b) ainsi que leurs volumes segmentés (images obtenues par microtomographie à rayons X) sur les fibres (c,d).

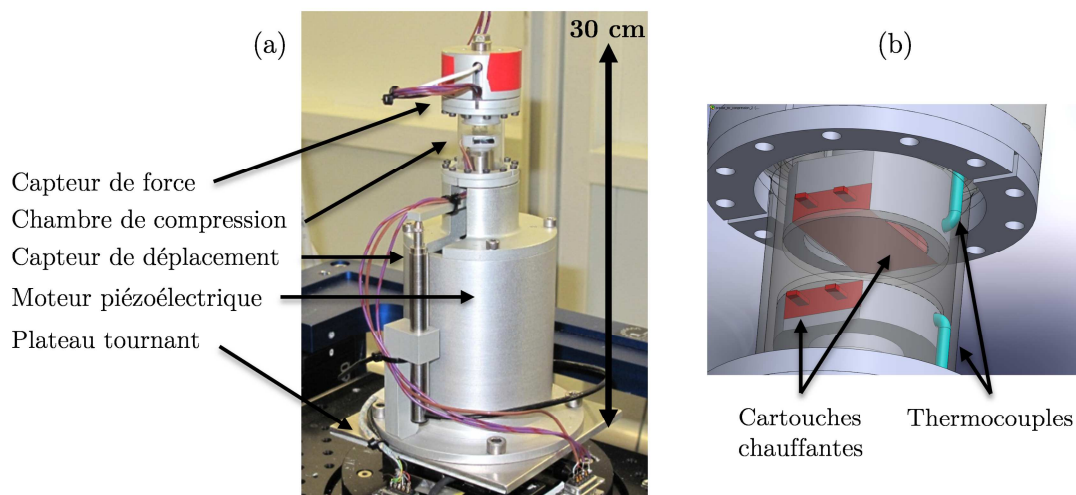


Figure A-3.1 Vue globale du micro-rhéomètre et représentation de la chambre de compression (b).

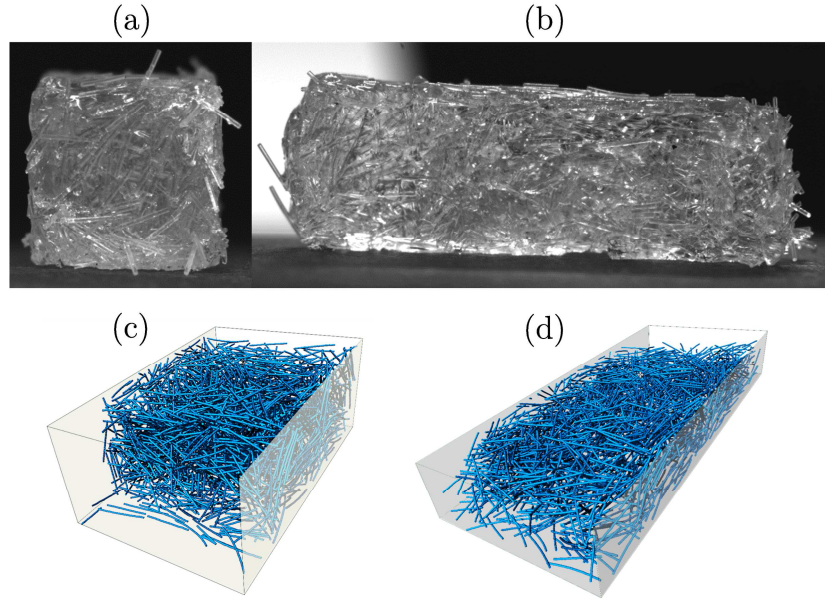


Figure A-3.2 Photographie et volume après segmentation sur les fibres d'une suspension concentrée dans son état initial (a,c) et suite à une compression en déformation plane (b,d).

Numéro du test	1	2	3	4	5	6	7	8	9
Compression	S	S	S	S	S	S	S	S	S
N	1	1	1	1	1	1	5	8	8
ϕ (%)	0.013	0.013	0.015	0.013	0.011	0.011	0.11	0.21	0.16
β	16.5	17	19.5	17.5	14.5	14.5	12.6	17.9	17.7
θ_0 (°)	79	45	45	82	37	48	-	-	-
$ D_{33}^0 $ (s^{-1})	0.004	0.004	0.03	0.03	0.03	0.03	0.03	0.004	0.03

Tableau A.3.1 Suspensions diluée de fibres. Numéro du test et type de compression (simple en canal), nombre de fibres N , concentration ϕ , élargissement moyen des fibres β , orientation initiale de la fibre θ_0 , et taux de déformation initiale de la suspension $|D_{33}^0|$.

Numéro du test	1	2	3	4	5	6	7	8	9
Compression	S	S	S	S	S	S	S	S	S
N	12	18	24	25	27	31	33	37	41
ϕ (%)	0.3	0.35	0.41	0.48	0.50	0.54	0.50	0.53	0.55
β	17.2	16.5	13.6	16	13.3	12.8	13.3	13.5	13.3
a_{11}^0	0.5	0.27	0.44	0.4	0.24	0.42	0.31	0.43	0.37
a_{22}^0	0.41	0.33	0.43	0.31	0.53	0.25	0.34	0.37	0.36
a_{33}^0	0.09	0.4	0.13	0.29	0.23	0.33	0.35	0.2	0.27
$ D_{33}^0 $ (s^{-1})	0.034	0.004	0.034	0.004	0.028	0.004	0.027	0.024	0.02

Tableau A.3.2 Suspensions semi-diluée de fibres. Numéro du test et type de compression (simple et en canal), nombre de fibres N , concentration ϕ , élargissement moyen des fibres β , composantes diagonales a_{ii} du tenseur d'orientation d'ordre 2, et taux de déformation initiale de la suspension $|D_{33}^0|$.

<i>Numéro du test</i>	1	2	3	4	5	6
Compression	C	C	S	S	S	S
N	2670	2770	2890	2660	1810	1010
ϕ (%)	40.1	39.7	41.3	36.3	34.8	30.7
β	6.6	7.5	7.1	8.5	11.1	12.8
a_{11}^0	0.37	0.4	0.47	0.46	0.44	0.41
a_{22}^0	0.51	0.51	0.44	0.41	0.43	0.51
a_{33}^0	0.13	0.09	0.09	0.13	0.13	0.08
$ D_{33}^0 $ (s^{-1})	0.045	0.005	0.007	0.009	0.04	0.01

Tableau A.3.3 Suspensions concentrées de fibres. Numéro du test et type de compression (simple et en canal), nombre de fibres N , concentration ϕ , élanement moyen des fibres β , composantes diagonales a_{ii} du tenseur d'orientation d'ordre 2, et taux de déformation initiale de la suspension $|D_{33}^0|$.

Annexe B. Analyse d'images

L'objectif de cette annexe est d'introduire les outils et méthodes utilisées pour extraire et suivre les descripteurs microstructuraux des suspensions fibreuses à partir des images 3D de microtomographie.

B.1 Extraction des descripteurs microstructuraux

À partir des radiographies obtenues par microtomographie à rayons X sur des suspensions de fibres modèles, la microstructure fibreuse est extraite par des opérations de filtrage et de segmentation standard (implémentées dans le logiciel FIJI) sur la carte des niveaux de gris des images. La radiographie de la Figure B-1.1a montre que les trois phases air, matrice et fibres possèdent un bon contraste d'absorption aux rayons X. Une représentation binaire de la structure fibreuse de la suspension peut ainsi être obtenue comme illustrée sur la Figure B-1.1b, où les fibres sont représentées en bleu (la matrice étant choisie transparente). Une fois la microstructure fibreuse binarisée, les fibres sont individualisées par la procédure suivante [Mas09, Lat12] :

- Une carte des distances euclidiennes 3D est réalisée par le logiciel FIJI [Bor96]. Celle-ci consiste à calculer pour chaque voxel de la phase fibreuse la distance avec la phase matrice. Selon cette distance, une nouvelle valeur de niveau de gris est attribuée au voxel considéré. Afin de se prémunir de contacts potentiels entre fibres, un seuil est appliqué sur la carte des distances réduisant ainsi le diamètre des fibres. Cette méthode permet ainsi d'individualiser chacune des fibres présentes au sein de la suspension.
- Les lignes moyennes de chaque fibre ont ensuite été extraites à partir d'un algorithme de squelettisation implémenté dans le logiciel Avizo (*cf.* Figure B-1.1c). Cette méthode est basée sur l'amincissement itératif des objets [Pud98].

Les lignes moyennes ont ensuite été lissées par une courbe paramétrique linéaire de coordonnées $\mathbf{x}_i(s_k)$ le long de l'abscisse curviligne s_k pour chaque fibre i considérée (Figure B-1.1d) puis sous échantillonnées de manière régulière en un nombre de points N_{pt} afin de minimiser le bruit. La longueur l_i d'une fibre i est définie comme :

$$l_i = \sum_{k=2}^{N_{pt}} \|\mathbf{x}_i(s_{k-1}) - \mathbf{x}_i(s_k)\| \quad (\text{Eq. B.1})$$

À chaque ligne moyenne a été associé un repère de Frenet $[\mathbf{t}_i(s_k), \mathbf{n}_i(s_k), \mathbf{b}_i(s_k)]$ calculé le long de l'abscisse curviligne grâce à un schéma aux différences finies. L'ensemble $(\mathbf{t}_i, \mathbf{n}_i, \mathbf{b}_i)$ permet de caractériser la géométrie locale des fibres [LOG+11]. Les vecteurs tangents, normaux et binormaux de la base de Frenet sont définis par les équations suivantes pour chaque fibre i (pas de sommation sur i) :

$$\mathbf{t}_i(s_k) = \frac{\mathbf{x}_i(s_{k+1}) - \mathbf{x}_i(s_{k-1})}{s_{k+1} - s_{k-1}}, \quad , \quad 2 \leq k \leq N_{pt} - 1 \quad (\text{Eq. B.2})$$

$$\mathbf{n}_i(s_k) = \frac{1}{C_i(s_k)} \frac{\mathbf{x}_i(s_{k+1}) - 2\mathbf{x}_i(s_k) + \mathbf{x}_i(s_{k-1}))}{[(s_{k+1} - s_{k-1})/2]^2}, \quad 2 \leq k \leq N_{pt} - 1 \quad (\text{Eq. B.3})$$

$$\mathbf{b}_i(s_k) = \mathbf{t}_i(s_k) \times \mathbf{n}_i(s_k), \quad 2 \leq k \leq N_{pt} - 1 \quad (\text{Eq. B.4})$$

La courbure des fibres \mathcal{C} est estimée à partir de l'expression :

$$C_i(s_k) = \left\| \frac{\mathbf{x}_i(s_{k+1}) - 2\mathbf{x}_i(s_k) + \mathbf{x}_i(s_{k-1}))}{[(s_{k+1} - s_{k-1})/2]^2} \right\|, \quad 2 \leq k \leq N_{pt} - 1 \quad (\text{Eq. B.5})$$

Au vu de la faible courbure des fibres considérées le vecteur tangent \mathbf{p}_i d'une fibre i a été défini comme la moyenne du vecteur \mathbf{t}_i défini le long de l'abscisse curviligne et le centre de masse de la fibre \mathbf{x}^g est choisie portée par la ligne moyenne de la fibre.

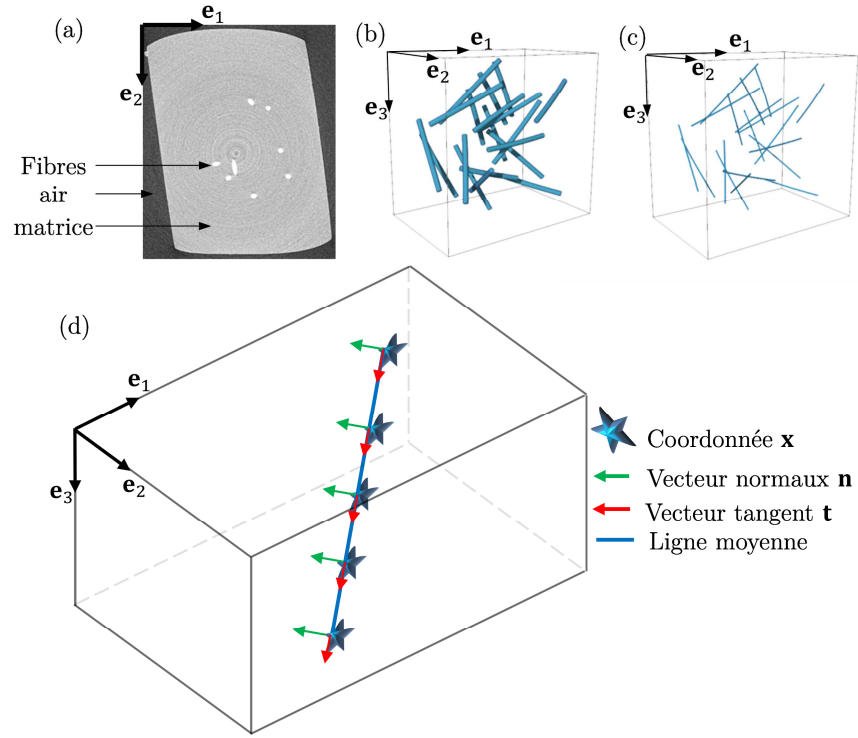


Figure B-1.1 Illustrations des diverses opérations d'analyse d'images utilisées pour estimer les descripteurs microstructuraux. (a) Reconstitution d'une coupe de la suspension en niveau de gris dans le plan $(\mathbf{e}_1, \mathbf{e}_2)$. (b) Volume après la segmentation sur les fibres. (c) Lignes moyennes des fibres après segmentation sur carte des distances euclidiennes et squelettisation. (d) Repère de Frenet associé aux lignes moyennes des fibres.

Les images de microtomographies obtenues sont cependant bruitées et possèdent dans notre cas particulier des artefacts créant des discontinuités sur les lignes moyennes. Afin de corriger ces défauts sur les interruptions des lignes moyennes entre une fibre i et j (formant deux segments d'une même fibre devant être rejoints dans ce cas) une procédure dédiée a été mise en place (Figure B-1.2). Tout d'abord, la distance $\Delta_{A-B} = \|\mathbf{x}_i(s_A) - \mathbf{x}_j(s_B)\|$ entre les points A et B est calculée à l'aide des coordonnées spatiales des fibres comme le présente la Figure B-1.2. Cette distance doit être inférieure au diamètre de la fibre. La distance entre les centres de masse

$\Delta_{\mathbf{x}^g} = \|\mathbf{x}_i^g - \mathbf{x}_j^g\|$ des deux segments est calculée grâce aux coordonnées du centre des fibres \mathbf{x}^g et doit être supérieure à la somme des demi-longueurs des segments considérées. La colinéarité des vecteurs locaux \mathbf{v}_i^{loc} et \mathbf{v}_j^{loc} est vérifiée. Afin d'éviter la jonction de fibres distinctes parallèles, la jonction entre le segment i et j est validée si le vecteur \overrightarrow{AB} est également colinéaire aux vecteurs locaux.

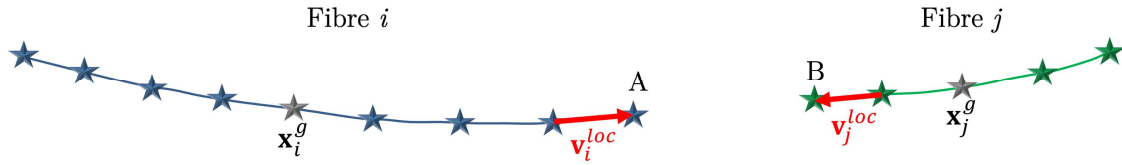


Figure B-1.2 Réparation des lignes moyennes des fibres interrompues.

Afin de détecter les contacts entre fibres, la distance entre les lignes moyennes de deux fibres est calculée. La méthode est reprise des travaux initialement développés par Latil [Lat12]. Ainsi, la distance entre la coordonnée d'une fibre testée et le segment constituée de deux coordonnées consécutives d'une fibre candidate au contact est établie, le calcul revenant à calculer la distance entre un point et un segment droit de l'espace. Lorsque cette distance est inférieure ou égale à la somme des rayons des fibres considérées, la position du contact discret est établie et un vecteur contact \mathbf{q}_i défini.

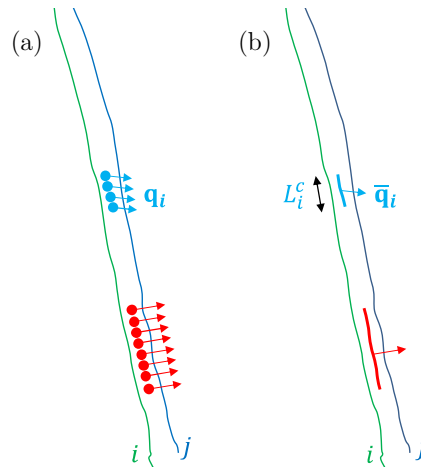


Figure B-1.3 Exemple de deux fibres en contact (reproduit d'après Latil [Lat12]). (a) Contacts discrets le long des fibres. (b) Contacts moyens et longueurs associées.

À partir de contacts discrets consécutifs (Figure B-1.3a) sont définis des contacts dits « moyens » (*cf.* Figure B-1.3b). Leurs propriétés sont calculées comme les moyennes des propriétés des contacts discrets. Ainsi, sont établis pour ces contacts une position moyenne $\bar{\mathbf{x}}_i^c$, une direction moyenne $\bar{\mathbf{q}}_i$ et une longueur L_i^c définie comme la longueur curviligne entre les points des contacts discrets. L'orientation macroscopique des contacts entre fibres au sein de la suspension est caractérisée par le tenseur d'orientation d'ordre 2 appliqué aux vecteurs contacts:

$$\mathbf{A}^c = \frac{1}{N_c} \sum_{i=1}^{N_c} \bar{\mathbf{q}}_i \otimes \bar{\mathbf{q}}_i \quad (\text{Eq. B.6})$$

B.2 Suivi des fibres

Afin de reconnaître les fibres au cours de la compression de la suspension, et ainsi de suivre l'évolution des paramètres microstructuraux de la suspension, une stratégie d'identification des fibres basée sur une technique de corrélation semi-discrète des positions spatiales des lignes moyennes des fibres a été utilisée [CLO+12]. Le principe de la méthode de corrélation est illustré sur la Figure B-2.1a. Il consiste à reconnaître une fibre i issue d'une configuration dite initiale de la suspension au temps t (cf. Figure B-2.1a) parmi les n fibres j d'un état dit comprimé de la suspension au temps $t+dt$ (cf. Figure B-2.1b). Cette méthode repose sur la minimisation d'une fonction de corrélation \mathbf{C}_{ij} définie comme suit :

$$\mathbf{C}_{ij} = \sum_i^n \sum_j^n \sum_k \|\mathbf{x}_i^t(s_k) - \mathbf{x}_j^{t+dt}(s_k)\| \quad (\text{Eq. B.7})$$

Pour chaque couple (i, j) , le paramètre \mathbf{C}_{ij} représente la distance inter fibre calculée à l'aide des coordonnées spatiales des fibres le long de l'abscisse curviligne s_k (cf. Figure B-2.1c).

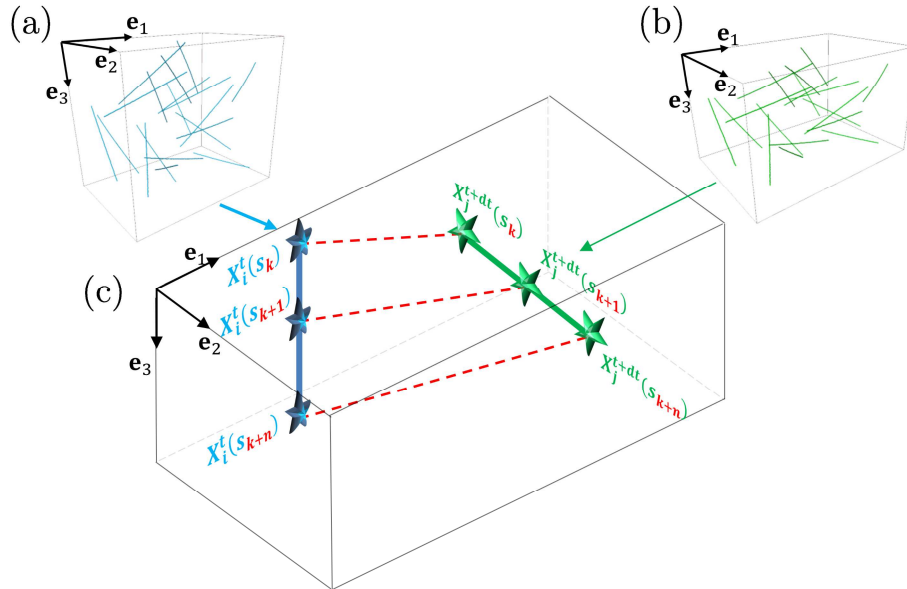


Figure B-2.1 Méthode de suivi de fibres. (a) Lignes moyennes des fibres dans l'état initial de la suspension. (b) Lignes moyennes des fibres dans un état comprimé de la suspension. (c) Paramètre de corrélation entre une fibre i issue de la configuration initiale de la suspension et une fibre j issue d'une configuration comprimée de la suspension.

La minimisation de la fonction \mathbf{C}_{ij} pour chaque fibre i permet de trouver la fibre j lui correspondant à l'instant $t + dt$. La confirmation de l'obtention d'un couple (i, j) correcte est ensuite obtenue en effectuant le calcul d'un second paramètre de corrélation \mathbf{C}_{ji}^* consistant à reconnaître chaque fibre j à l'instant $t + dt$ parmi les n fibres i de l'instant t . La minimisation de la fonction \mathbf{C}_{ji}^* permet également de trouver pour chaque fibre j , la fibre i lui correspondant. La corrélation est ensuite validée si les couples (i, j) issus des minimisations des fonctions \mathbf{C}_{ji}^* et \mathbf{C}_{ij} sont identiques.

Annexe C. Rod kinematic in Newtonian fluid

In the following, the kinematic of the rod immersed in Newtonian suspending fluid under squeeze confined flow is developed by using the dumbbell approach [BAH87, BCK15, PSAC+16]. As the symmetric contact is completely described in [PSAC+16], we report here the situation where the fibre is in contact with the lower platen as represented in Figure C-1. The methodology is basically the same in this situation and details can be found in [PSAC+16].

Assuming that the contact between the rod and the lower platen (locate at $\mathbf{x}_3 = 0$) is reached and the vertical position of dumbbell centre of gravity is:

$$x_3(G) = \frac{l}{2} p_3 \quad (\text{Eq. C.1})$$

Therefore, the rod vertical velocity at the contact point is given by:

$$v_3\left(\mathbf{x}(G) - \frac{l}{2} \mathbf{p}\right) = v_3(G) - \frac{l}{2} \dot{p}_3 \quad (\text{Eq. C.2})$$

The no-penetration condition imposed that $v_3(-l/2 \mathbf{p}) \geq 0$.

As introduced in Bird and *al.* [BAH87], hydrodynamic forces acting on each dumbbell bead are assumed to be dependent on the relative velocity between the fluid and the bead, the first one is given by $\mathbf{V}(G) + l/2 \nabla \mathbf{V} \cdot \mathbf{p}$ and the second one by $\mathbf{v}(G) + l/2 \dot{\mathbf{p}}$. Moreover, we assume as in Perez et *al.* [PSAC+16] that the contact force acts in the direction perpendicular to the wall. Thus, the forces acting on the lower bead are the following:

$$\begin{aligned} \mathbf{f}^{H-} &= \xi \left(\mathbf{V}(G) - \frac{l}{2} \nabla \mathbf{V} \cdot \mathbf{p} - \mathbf{v}(G) + \frac{l}{2} \dot{\mathbf{p}} \right) \\ \mathbf{f}^{C-} &= k \mathbf{e}_3 \end{aligned} \quad (\text{Eq. C.3})$$

ξ is the friction coefficient and the labels H and C refer respectively to hydrodynamic and contact forces. There is only the hydrodynamic force which acts on the upper bead:

$$\mathbf{f}^{H+} = \xi \left(\mathbf{V}(G) + \frac{l}{2} \nabla \mathbf{V} \cdot \mathbf{p} - \mathbf{v}(G) - \frac{l}{2} \dot{\mathbf{p}} \right) \quad (\text{Eq. C.4})$$

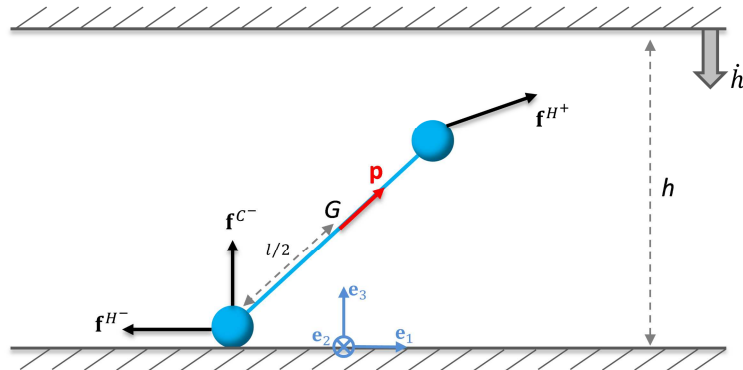


Figure C-1 Hydrodynamic and contact forces acting on rod modelled by a dumbbell which is in contact with lower wall and subjected to a squeeze flow

Applying the force balance implies the following condition on the velocity of rod mass centre:

$$\mathbf{v}(G) = \mathbf{V}(G) + \frac{k}{2\xi} \mathbf{e}_3 \quad (\text{Eq. C.5})$$

The resulting torque at the gravity centre has also to be null and therefore the following term has to be co-linear to the rod orientation vector:

$$\xi l (\nabla \mathbf{V} \cdot \mathbf{p} - \dot{\mathbf{p}}) - k \mathbf{e}_3 = \alpha \mathbf{p} \quad (\text{Eq. C.6})$$

Premultiplying the last equation by \mathbf{p} and taking into account that $\mathbf{p} \cdot \mathbf{p} = 1$ and consequently $\dot{\mathbf{p}} \cdot \mathbf{p} = 0$, we obtain:

$$\begin{aligned} \dot{\mathbf{p}} &= \nabla \mathbf{V} \cdot \mathbf{p} - (\nabla \mathbf{V} : \mathbf{p} \otimes \mathbf{p}) \mathbf{p} - \frac{k}{\xi l} (\mathbf{e}_3 - p_3 \mathbf{p}) \\ \dot{\mathbf{p}} &= \dot{\mathbf{p}}^J + \dot{\mathbf{p}}^C \end{aligned} \quad (\text{Eq. C.7})$$

Where $\dot{\mathbf{p}}^J$ denotes the Jeffery rotary velocity component:

$$\dot{\mathbf{p}}^J = \nabla \mathbf{V} \cdot \mathbf{p} - (\nabla \mathbf{V} : \mathbf{p} \otimes \mathbf{p}) \mathbf{p} \quad (\text{Eq. C.8})$$

While the contact contribution $\dot{\mathbf{p}}^C$ is defined as $-k(\mathbf{e}_3 - p_3 \mathbf{p})/\xi l$. Neglecting the lubrication force, the contact contribution is activated when rod and the lower platen are in contact. Under this condition, Eq. C.2 can be developed as:

$$v_3 \left(\mathbf{x}(G) - \frac{l}{2} \mathbf{p} \right) = \dot{\varepsilon} \frac{l}{2} p_3 + \frac{k}{2\xi} - \frac{l}{2} \dot{p}_3 \quad (\text{Eq. C.9})$$

Enforcing the no-penetration condition $v_3(\mathbf{x}(G) - l/2 \mathbf{p}) = 0$ leads to:

$$\frac{k}{\xi l} = \frac{1}{2 - p_3^2} (\dot{p}_3^J - \dot{\varepsilon} p_3) \quad (\text{Eq. C.10})$$

Thus, the contact contribution $\dot{\mathbf{p}}^C$ and velocity of the rod mass centre \mathbf{v}^{C^-} take the following forms:

$$\dot{\mathbf{p}}^C = -\frac{\dot{p}_3^J - \dot{\varepsilon} p_3}{2 - p_3^2} (\mathbf{e}_3 - p_3 \mathbf{p}) \quad (\text{Eq. C.11})$$

$$\mathbf{v}^{C^-}(G) = \mathbf{V}(G) + \frac{l}{2} \frac{(\dot{p}_3^J - \dot{\varepsilon} p_3)}{2 - p_3^2} \mathbf{e}_3 \quad (\text{Eq. C.12})$$

Finally, a set of equation is obtained under the following conditions:

$$\left\{ \begin{array}{lll} \dot{\mathbf{p}} = \dot{\mathbf{p}}^J & \mathbf{v}(G) = \mathbf{V}(G) & \text{if } x_3(G) > \frac{l}{2} p_3 \\ \dot{\mathbf{p}} = \dot{\mathbf{p}}^J & \mathbf{v}(G) = \mathbf{V}(G) & \text{if } x_3(G) = \frac{l}{2} p_3 \text{ and } v_3 \left(\mathbf{x}(G) - \frac{l}{2} \mathbf{p} \right) \geq 0 \\ \dot{\mathbf{p}} = \dot{\mathbf{p}}^J + \dot{\mathbf{p}}^C & \mathbf{v}^{C^-}(G) & \text{if } x_3(G) = \frac{l}{2} p_3 \text{ and } v_3 \left(\mathbf{x}(G) - \frac{l}{2} \mathbf{p} \right) < 0 \end{array} \right. \quad (\text{Eq. C.13})$$

The case in which the rod is in contact with the upper wall gives similar results on the contact rotary velocity $\dot{\mathbf{p}}^C$ follows Eq. 4.23 whereas the velocity of the rod gravity centre $\mathbf{v}^{C^+}(\mathbf{G})$ satisfies:

$$\mathbf{v}^{C^+}(\mathbf{G}) = \mathbf{v}(\mathbf{G}) - \frac{l}{2} \frac{(\dot{p}_3^J - \dot{\epsilon} p_3)}{2 - p_3^2} \mathbf{e}_3 \quad (\text{Eq. C.14})$$

Annexe D. Rod kinematics in power-law fluid

We extend here the dumbbell approach [BAH87, BCK15, PSAC+16] considering the rod kinematics in a power-law suspending fluid under unconfined and confined flows. The rod is idealized by a dumbbell of length l , two points mass joined by a massless rod as depicted in Figure D-1(a).

By analogy with Brusckhe *et al.* [BA93] and Spelt *et al.* [SSLL05], the hydrodynamic force is assumed to depend on the power-law index and the magnitude of the relative velocity between the dumbbell and the fluid. Thus, the hydrodynamic force applied on the upper bead is assumed to take the following form:

$$\mathbf{f}^{H^+} = \xi \Delta v^+ \Delta \mathbf{v}^+ \quad (\text{Eq. D.1})$$

ξ is again a hydrodynamic friction coefficient and for sake of simplicity and improve the legibility, the vector $\Delta \mathbf{v}^+$ and the scalar Δv^+ are defined by:

$$\Delta \mathbf{v}^+ = \mathbf{V}(G) + \frac{l}{2} \nabla \mathbf{V} \cdot \mathbf{p} - \mathbf{v}(G) - \frac{l}{2} \dot{\mathbf{p}} \quad \text{and} \quad \Delta v^+ = \|\Delta \mathbf{v}^+\|^{n-1} \quad (\text{Eq. D.2})$$

In the same way, the hydrodynamic force on the lower bead is expressed as followed:

$$\mathbf{f}^{H^-} = \xi \Delta v^- \Delta \mathbf{v}^- \quad (\text{Eq. D.3})$$

where the vector $\Delta \mathbf{v}^-$ and the scalar Δv^- are defined by:

$$\Delta \mathbf{v}^- = \mathbf{V}(G) - \frac{l}{2} \nabla \mathbf{V} \cdot \mathbf{p} - \mathbf{v}(G) + \frac{l}{2} \dot{\mathbf{p}} \quad \text{and} \quad \Delta v^- = \|\Delta \mathbf{v}^-\|^{n-1} \quad (\text{Eq. D.4})$$

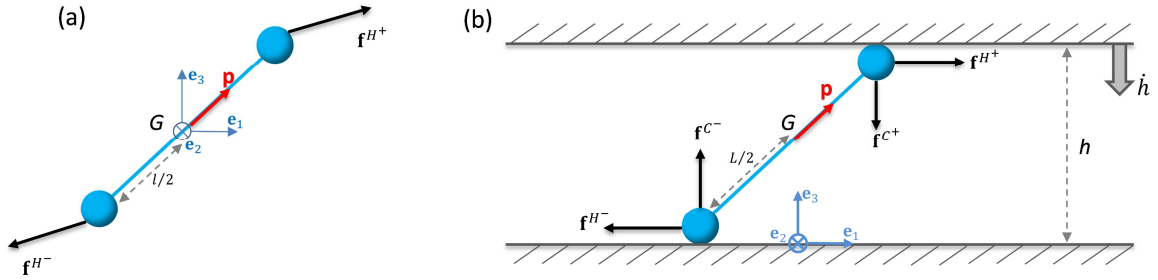


Figure D-1 Rod modelled by a dumbbell: (a) hydrodynamic forces applied on two beads surrounded by a fluid; (b) hydrodynamic and contact forces acting on a confined rod subjected to a squeeze flow.

Firstly, we considered that the rod evolves in an infinite flow field (*cf.* Figure D-1a). Applying the force balance on the dumbbell implies:

$$\mathbf{f}^{H^-} = -\mathbf{f}^{H^+} \Leftrightarrow \mathbf{v}(G) = \mathbf{V}(G) + \frac{l}{2} \nabla \mathbf{V} \cdot \mathbf{p} \left(\frac{\Delta v^+ - \Delta v^-}{\Delta v^+ + \Delta v^-} \right) + \frac{l}{2} \dot{\mathbf{p}} \left(\frac{\Delta v^- - \Delta v^+}{\Delta v^+ + \Delta v^-} \right) \quad (\text{Eq. D.5})$$

The resulting torque at the gravity centre has to be null and therefore the forces have to be co-linear with the orientation vector:

$$\mathbf{f}^{H^+} = \alpha \mathbf{p} \Leftrightarrow \xi \Delta v^+ \left(\frac{l}{2} \nabla \mathbf{V} \cdot \mathbf{p} \left(1 - \frac{\Delta v^+ - \Delta v^-}{\Delta v^+ + \Delta v^-} \right) - \frac{l}{2} \dot{\mathbf{p}} \left(1 + \frac{\Delta v^- - \Delta v^+}{\Delta v^+ + \Delta v^-} \right) \right) = \alpha \mathbf{p} \quad (\text{Eq. D.6})$$

Premultiplying the last equation by \mathbf{p} and taking into account that $\mathbf{p} \cdot \mathbf{p} = 1$ and consequently $\mathbf{p} \cdot \dot{\mathbf{p}} = 0$, we obtain:

$$\alpha = \xi \Delta v^+ \left(\frac{l}{2} \nabla \mathbf{V} : \mathbf{p} \otimes \mathbf{p} \left(1 - \frac{\Delta v^+ - \Delta v^-}{\Delta v^+ + \Delta v^-} \right) \right) \quad (\text{Eq. D.7})$$

Replacing the expression of α in Eq. D.6:

$$\begin{aligned} \xi \Delta v^+ \left(\frac{l}{2} \nabla \mathbf{V} \cdot \mathbf{p} \left(1 - \frac{\Delta v^+ - \Delta v^-}{\Delta v^+ + \Delta v^-} \right) - \frac{l}{2} \dot{\mathbf{p}} \left(1 + \frac{\Delta v^- - \Delta v^+}{\Delta v^+ + \Delta v^-} \right) \right) \\ = \xi \Delta v^+ \left(\frac{l}{2} (\nabla \mathbf{V} : \mathbf{p} \otimes \mathbf{p}) \mathbf{p} \left(1 - \frac{\Delta v^+ - \Delta v^-}{\Delta v^+ + \Delta v^-} \right) \right) \end{aligned} \quad (\text{Eq. D.8})$$

Despite the consideration of power law suspending fluid in the previous development the last equation leads to an equivalent expression of the rotary velocity of the rod as predicted by Jeffery's model (with $\lambda = 1$) :

$$\dot{\mathbf{p}} = \nabla \mathbf{V} \cdot \mathbf{p} - (\nabla \mathbf{V} : \mathbf{p} \otimes \mathbf{p}) \mathbf{p} \Leftrightarrow \dot{\mathbf{p}} = \dot{\mathbf{p}}^J \quad (\text{Eq. D.9})$$

Nevertheless the motion of the rod centre of mass expressed in Eq. D-5 differs from the affinity assumption of Jeffery's theory.

In the sequel, we apply the same methodology developed by Perez and al. [PSAC+16] to describe a rod kinematic in power-law fluids and in collision with compression platens as represented in Figure D-1(b). Using the expression of the contact force provided in Perez and al. [PSAC+16] and assuming that the contact between the rod extremities and compression platens is reached, the vanish force balance implies:

$$\begin{aligned} \mathbf{f}^{H^-} = -\mathbf{f}^{H^+} \\ \Rightarrow \mathbf{v}(G) = \mathbf{V}(G) + \frac{l}{2} \nabla \mathbf{V} \cdot \mathbf{p} \left(\frac{\Delta v^+ - \Delta v^-}{\Delta v^+ + \Delta v^-} \right) + \frac{l}{2} \dot{\mathbf{p}} \left(\frac{\Delta v^- - \Delta v^+}{\Delta v^+ + \Delta v^-} \right) \end{aligned} \quad (\text{Eq. D.10})$$

The resulting torque at the gravity centre has to be null and therefore the forces have to be co-linear to the orientation vector:

$$\begin{aligned} \mathbf{f}^{H^+} + \mathbf{f}^{C^+} = \alpha \mathbf{p} \\ \xi \Delta v^+ \left(\frac{l}{2} \nabla \mathbf{V} \cdot \mathbf{p} \left(1 - \frac{\Delta v^+ - \Delta v^-}{\Delta v^+ + \Delta v^-} \right) - \frac{l}{2} \dot{\mathbf{p}} \left(1 + \frac{\Delta v^- - \Delta v^+}{\Delta v^+ + \Delta v^-} \right) \right) - k \mathbf{e}_3 = \alpha \mathbf{p} \end{aligned} \quad (\text{Eq. D.11})$$

Premultiplying the last equation by \mathbf{p} and taking into account that $\mathbf{p} \cdot \mathbf{p} = 1$ and consequently $\mathbf{p} \cdot \dot{\mathbf{p}} = 0$, we obtain:

$$\alpha = \xi \Delta v^+ \left(\frac{l}{2} \nabla \mathbf{V} : \mathbf{p} \otimes \mathbf{p} \left(1 - \frac{\Delta v^+ - \Delta v^-}{\Delta v^+ + \Delta v^-} \right) \right) - k p_3 \quad (\text{Eq. D.12})$$

Replacing the expression of α in Eq. D.11 leads to:

$$\begin{aligned} & \xi \Delta v^+ \left(\frac{l}{2} \nabla \mathbf{V} : \mathbf{p} \left(1 - \frac{\Delta v^+ - \Delta v^-}{\Delta v^+ + \Delta v^-} \right) - \frac{l}{2} \dot{\mathbf{p}} \left(1 + \frac{\Delta v^- - \Delta v^+}{\Delta v^+ + \Delta v^-} \right) \right) - k \mathbf{e}_3 \\ & = \xi \Delta v^+ \left(\left(\frac{l}{2} \nabla \mathbf{V} : \mathbf{p} \otimes \mathbf{p} \right) \mathbf{p} \left(1 - \frac{\Delta v^+ - \Delta v^-}{\Delta v^+ + \Delta v^-} \right) \right) - k p_3 \end{aligned} \quad (\text{Eq. D.13})$$

The expression of the rotary velocity of the rod can deduced as:

$$\dot{\mathbf{p}} = \nabla \mathbf{V} \cdot \mathbf{p} - (\nabla \mathbf{V} : \mathbf{p} \otimes \mathbf{p}) \mathbf{p} - \frac{2k(\mathbf{e}_3 - p_3 \mathbf{p})}{\xi L \Delta v^+ \left(1 + \frac{\Delta v^- - \Delta v^+}{\Delta v^+ + \Delta v^-} \right)} \Leftrightarrow \dot{\mathbf{p}} = \dot{\mathbf{p}}^J + \dot{\mathbf{p}}^C \quad (\text{Eq. D.14})$$

Neglecting the lubrication force, the contact contribution is activated when rod and platens are in contact. Enforcing the no interpenetration condition $v_3(\mathbf{x}(G) - l/2 \mathbf{p}) = 0$ and $v_3(\mathbf{x}(G) + l/2 \mathbf{p}) = \dot{h}$ leads to:

$$\frac{2k}{\xi l} = \frac{\dot{p}_3^J - \dot{\varepsilon} p_3}{1 - p_3^2} \Delta v_+^+ \left(1 + \frac{\Delta v^- - \Delta v^+}{\Delta v^+ + \Delta v^-} \right) \quad (\text{Eq. D.15})$$

And the contact contribution $\dot{\mathbf{p}}^C$ of rotary velocity of the rod is:

$$\dot{\mathbf{p}}^C = - \frac{\dot{p}_3^J - \dot{\varepsilon} p_3}{1 - p_3^2} (\mathbf{e}_3 - p_3 \mathbf{p}) \quad (\text{Eq. D.16})$$

Thus, in this particular confinement configuration (*cf.* Figure D-1b), a set of equation is obtained with the following conditions:

$$\left\{ \begin{array}{ll} \dot{\mathbf{p}} = \dot{\mathbf{p}}^J & \mathbf{v}(G) = \mathbf{V}(G) \quad \text{if } x_3(G) > \frac{l}{2} p_3 \text{ and } x_3(G) < h - \frac{l}{2} p_3 \\ \dot{\mathbf{p}} = \dot{\mathbf{p}}^J & \mathbf{v}(G) = \mathbf{V}(G) \quad \text{if } h = l p_3 \text{ and } v_3 \left(\mathbf{x}(G) - \frac{l}{2} \mathbf{p} \right) \geq 0, \text{ and } v_3 \left(\mathbf{x}(G) + \frac{l}{2} \mathbf{p} \right) \leq \dot{h} \\ \dot{\mathbf{p}} = \dot{\mathbf{p}}^J + \dot{\mathbf{p}}^C & (\text{Eq. D.10}) \quad \text{if } h = l p_3 \text{ and } v_3 \left(\mathbf{x}(G) - \frac{l}{2} \mathbf{p} \right) < 0, \text{ and } v_3 \left(\mathbf{x}(G) + \frac{l}{2} \mathbf{p} \right) > \dot{h} \end{array} \right. \quad (\text{Eq. D.17})$$

Finally, employing the methodology presented in Annexe C, we report here the rod kinematic in power-law fluid with the dumbbell approach in the situation where the rod is in contact with the lower platen (*cf.* Figure C-1). The contact condition between the rod and the lower platen as well as the contact force were expressed in Eqs. D-2-4. Applying the force balance implies the following condition on the velocity of rod mass centre:

$$\mathbf{v}(G) = \mathbf{V}(G) + \frac{l}{2} \nabla \mathbf{V} \cdot \mathbf{p} \left(\frac{\Delta v^+ - \Delta v^-}{\Delta v^+ + \Delta v^-} \right) + \frac{l}{2} \dot{\mathbf{p}} \left(\frac{\Delta v^- - \Delta v^+}{\Delta v^+ + \Delta v^-} \right) + \frac{k \mathbf{e}_3}{\xi l (\Delta v^+ + \Delta v^-)} \quad (\text{Eq. D.18})$$

The resulting torque at the dumbbell centre has to be null and therefore the forces have to be co-linear to the orientation vector:

$$\begin{aligned} \mathbf{f}^{H^+} - \mathbf{f}^{H^-} - \mathbf{f}^{C^-} &= \alpha \mathbf{p} \\ \frac{l}{2} \nabla \mathbf{V} \cdot \mathbf{p} \left(\frac{4\Delta v^+ \Delta v^-}{\Delta v^+ + \Delta v^-} \right) - \frac{l}{2} \dot{\mathbf{p}} \left(\frac{4\Delta v^+ \Delta v^-}{\Delta v^+ + \Delta v^-} \right) - \frac{k \mathbf{e}_3}{\xi} \frac{2\Delta v^-}{(\Delta v^+ + \Delta v^-)} &= \alpha \mathbf{p} \end{aligned} \quad (\text{Eq. D.19})$$

Premultiplying the last equation by \mathbf{p} and taking into account that $\mathbf{p} \cdot \mathbf{p} = 1$ and consequently $\mathbf{p} \cdot \dot{\mathbf{p}} = 0$, we obtain:

$$\alpha = \frac{l}{2} \nabla \mathbf{V} : \mathbf{p} \otimes \mathbf{p} \left(\frac{4\Delta v^+ \Delta v^-}{\Delta v^+ + \Delta v^-} \right) - \frac{k p_3}{\xi} \frac{2\Delta v^-}{(\Delta v^+ + \Delta v^-)} \quad (\text{Eq. D.20})$$

Replacing the expression of α in Eq. D-19 leads to:

$$\dot{\mathbf{p}} = \dot{\mathbf{p}}^J - \frac{k}{\xi l \Delta v^-} (\mathbf{e}_3 - p_3 \mathbf{p}) \Leftrightarrow \dot{\mathbf{p}} = \dot{\mathbf{p}}^J + \dot{\mathbf{p}}^C \quad (\text{Eq. D.21})$$

Enforcing the no-penetration condition $v_3(\mathbf{x}(G) - l/2\mathbf{p}) = 0$ imposes:

$$\frac{k}{\xi l} = \frac{\dot{p}_3^J - \varepsilon p_3}{\frac{\Delta v^+ + \Delta v^-}{\Delta v^+} - p_3^2} \Delta v^- \quad (\text{Eq. D.22})$$

Thus, the contact contribution $\dot{\mathbf{p}}^C$ on the rod rotary velocity can be expressed:

$$\dot{\mathbf{p}}^C = - \frac{(\dot{p}_3^J - \varepsilon p_3)}{\frac{\Delta v^+ + \Delta v^-}{\Delta v^+} - p_3^2} (\mathbf{e}_3 - p_3 \mathbf{p}) \quad (\text{Eq. D.23})$$

The expression of the contact contribution $\dot{\mathbf{p}}^C$ was also developed for a rod in contact with the upper platen. The symmetry condition enforces that the contact with the upper platen will give similar fibre rotation and consequently gives the equality $\Delta v^+ = \Delta v^-$. Thus, the expressions of the contact rotary velocity as well as the velocity of the rod mass centre when the contact occurs were found equivalent to the expressions developed using a Newtonian suspending fluid.

Annexe E. Influence of the fibre shape on fibre motion in power-law fluids

In this section the influence of fibre shape on the fibre kinematics was assessed numerically considering the evolution of a single fibre immersed in power-law fluids which were submitted to unconfined and lubricated squeeze flow. The power law indexes were chosen equal to 1 or 0.2. The computations were made for four different shapes of fibre as depicted in Figure E-1: an ellipsoid; a cylindrical fibre; a cylindrical fibre with rounded ends and a curved one (radius of curvature is around 25 mm). Fibre aspect ratio was chosen equal to 15 and the initial orientation $\theta_0 = 30^\circ$. The compressions were imposed by applying a motion of the upper compression platen with a constant vertical velocity $\dot{h} = -100 \mu\text{m/s}$.



Figure E-1 Shapes of fibres used in our computations: (a) straight cylindrical fibre; (b) cylindrical fibre with rounded ends; (c) curved cylindrical fibre (curvature radius is around 25 mm); (d) ellipsoidal fibre.

The evolution of angle θ with the Hencky strain for various fibre shapes were compared to the prediction of Jeffery's model using the appropriate shape factor λ depending on the fibre shape. Figure E-2 shows the evolution of the orientation deviations $\delta\theta = \theta^{Num} - \theta^{Jeff}$ as function of the Hencky strain $|\epsilon_{33}|$ and the power-law indexes ($n = 1$ (a); $n = 0.2$ (b)). Figure E-3 deals with the affinity of the numerical position \mathbf{x}_{num} of fibre mass centre with the motion of the macroscale suspending kinematics \mathbf{x}_{Jeff} for the considered fibre shapes. The departure between the numerical and theoretical position were quantified with the dispersion $\Delta\mathbf{x}_{num} = \|\mathbf{x}_{num} - \mathbf{x}_{Jeff}\|/h_0$.

Whatever the investigated power-law index, both orientation deviations $\delta\theta$ and dispersion $\Delta\mathbf{x}_{num}$ remained small at the end of compression ($|\epsilon_{33}| = 1$), meaning that the kinematics of ellipsoidal and cylindrical fibre were well reproduced numerically.

A small effect on orientation was found for curved fibre in both power-law fluids.

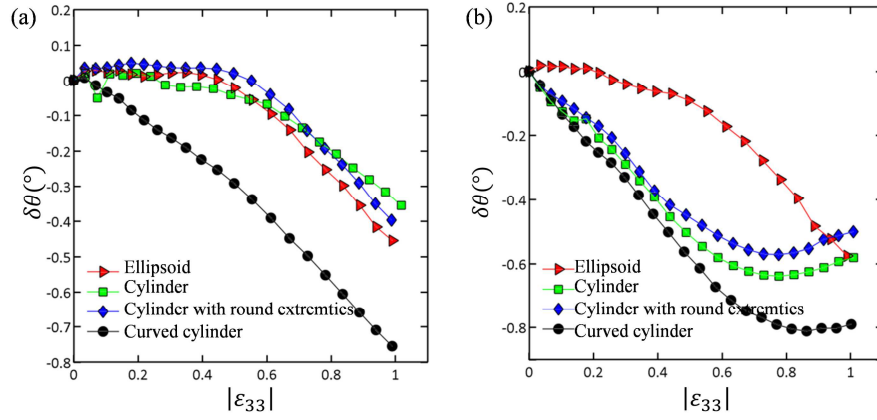


Figure E-2 Compression of a fibre immersed in power-law fluids ($\dot{h} = -100 \mu\text{m/s}$) for various fibre shapes. Evolution of the orientation deviation $\delta\theta = \theta^{Num} - \theta^{Jeff}$ with Hencky strain $|\epsilon_{33}|$ and power-law indexes: (a) $n = 1$; (b) $n = 0.2$.

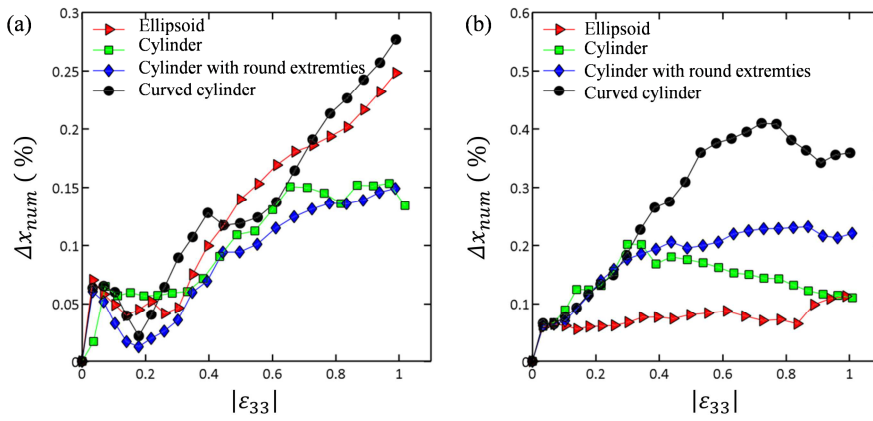


Figure E-3 Compression of one fibre immersed in power-law fluids ($\dot{h} = -100 \mu\text{m/s}$) for various fibre shapes. Evolution of the dispersion Δx_{num} with Hencky strain $|\epsilon_{33}|$ and power-law indexes: (a) $n = 1$; (b) $n = 0.2$.

Références bibliographiques :

- [ACCF⁺15] E. Abisset-Chavanne, F. Chinesta, J. Férec, G. Ausias, and R. Keunings. On the multiscale description of dilute suspensions of non-brownian rigid clusters composed of rods. *J. Non-Newtonian Fluid Mech.*, 222:34–44, 2015.
- [Adv94] S.G. Advani. *Flow and Rheology in Polymer Composites Manufacturing*, volume 10 of *Composite Materials Series*. Elsevier, 1994.
- [AFT06] G. Ausias, X.J. Fan, and R.I. Tanner. Direct simulation for concentrated fibre suspensions in transient and steady state shear flows. *J. Non-Newtonian Fluid Mech.*, 135:46–57, 2006.
- [A-KG94a] A. Ait-Kadi and M. Grmela. The rheological behaviour of fibre suspensions in viscoelastic media. *J. Non-Newtonian Fluid Mech.*, 53:65–81, 1994.
- [A-KG94b] A. Ait-Kadi and M. Grmela. Modelling the rheological behavior of fibre suspensions in viscoelastic media. *J. Nen-Newtonian Fluid Mech.*, 53:65–81, 1994.
- [AM67] E. Anczurowski and S.G. Mason. The kinetics of flowing dispersions II. Equilibrium orientations of rods and discs. *J. Colloid Int. Sci.*, 23:522–532, 1967.
- [AM68] E. Anczurowski and S.G. Mason. Particle motions in sheared suspensions XXIV. Rotation of rigid spheroids and cylinders. *Trans. Soc. Rheol.*, 12:209, 1968.
- [AT87] S.G. Advani and C.L. Tucker. The use of tensors to describe and predict fiber orientation in short fiber composites. *J. Rheol.*, 3:751–784, 1987.
- [AT90] S.G. Advani and C. L. Tucker. Closure approximations for three-dimensional structure tensors. *Journal of Rheology*, 34:367–386, 1990.
- [Aur91] J.-L. Auriault. Heterogeneous medium. Is an equivalent macroscopic description possible? *Int. J. Eng. Sci.*, 29(7):785–795, 1991.
- [Aus15] J. Férec and G. Ausias. *Rheology of non-spherical particle suspensions*, chapter 4. Rheological modeling of non-dilute rod suspensions, pages 77–117. Elsevier, 2015.
- [Aza96] J. Azaiez. Constitutive equations for fiber suspensions in viscoelastic media. *J. Non-Newtonian Fluid Mech.*, 66:35–54, 1996.
- [BA93] M.V. Brusckhe and S.G. Advani. Flow of generalized newtonian fluid across a periodic array of cylinders. *J. Rheol.*, 37(3):479–498, 1993.
- [BACCK16] D. Borzacchiello, E. Abisset-Chavanne, F. Chinesta, and R. Keunings. Orientation kinematics of short fibres in a second-order viscoelastic fluid. *Rheol. Acta*, 55:397–409, 2016.
- [BAH87] R.B. Bird, R.C. Armstrong, and O. Hassager. *Dynamics of Polymeric Liquids, Volume 1: Fluid Mechanics 2nd Edition*. Wiley, 1987.
- [Bat70a] G.K. Batchelor. The stress system in a suspension of force-free particles. *J. Fluid Mech.*, 41 (3):545–570, 1970.
- [Bat71] G.K. Batchelor. The stress generated in a non-dilute suspension of elongated particles by pure straining motion. *J. Fluid Mech.*, 46(4):813–829, 1971.
- [Bay91] R.S. Bay. *Fiber Orientation in Injection Molded Composites : A Comparison of Theory and Experiments*. PhD thesis, University of Illinois, USA, 1991.
- [BC86] M.R. Barone and D.A. Caulk. A model for the flow of a chopped fiber reinforced polymer compound in compression molding. *J. Appl. Mech.*, 53(191):361–370, 1986.

- [BGM75] E. Bartram, H. L. Golflsmith, and S. G. Mason. Particle motions in non-newtonian media III. Further observations in elasticsoviscous fluids. *Rheol. Acta*, 14:776–782, 1975.
- [BI92] S.R. Bay and C.L. Tucker III. Fiber orientation in simple injection moldings. Part II: experimental results. *Polymer Composites*, 13 (4):332–341, 1992.
- [Bin39] A. Binder. The motion of cylindrical particles in viscous flow. *J Appl Phys*, 10:711, 1939.
- [Bor96] G. Borgefors. On digital distance transforms in three dimensions. *Computer vision and image understanding*, 63:368–376, 1996.
- [Bre62] F.P. Bretherton. The motion of rigid particles in a shear flow at low reynolds number. *J. Fluid Mech.*, 14:284–304, 1962.
- [Bre74] H. Brenner. Rheology of a dilute suspension of axisymmetric brownian particles. *Int. J. Multiphase Flow*, 1:195–341, 1974.
- [Bru77] P. Brunn. The slow motion of a rigid particle in a second-order fluid. *J. Fluid Mech.*, 82:529–547, 1977.
- [BS04] A.S. Burbidge and C. Servais. Squeeze flow of apparently lubricated thin films. *J. Non-Newtonian Fluid Mech.*, 124:115–127, 2004.
- [Bur38] J.M. Burgers. *On the motion of small particles of elongated form suspended in a viscous liquid, Second Report on Viscosity and Plasticity, Chapter 3*. 1938.
- [CDH⁺10] T. Coupez, H. Digonnet, E. Hachem, P. Laure, L. Silva, and R. Valette. *Multidomain Finite Element Computations: Application to Multiphase Problems, Arbitrary Lagrangian-Eulerian and Fluid-Structure Interaction. Numerical Simulation*. Wiley, 2010.
- [Chi13] F. Chinesta. From single-scale to two-scales kinetic theory descriptions of rods suspensions. *Computational Methods in Engineering*, 20:1–29, 2013.
- [CK01] D.H. Chung and T.H. Kwon. Improved model of orthotropic closure approximation for flow induced fiber orientation. *Polym. Compos.*, 22:636–649, 2001.
- [CK02] D.H. Chung and T.H. Kwon. Invariant-based optimal fitting closure approximation for the numerical prediction of flow-induced fiber orientation. *J. Rheology.*, 46 (1):169–194, 2002.
- [CLO⁺12] S. Le Corre, P. Latil, L. Orgéas, P.J.J. Dumont, S. Rolland du Roscoat and C. Geindreau. A 3d image analysis for fibrous microstructures: discretization and fiber tracking. In *ECCM15, 15th European conference on composite materials*, 2012.
- [CLS06] A. Carlsson, F. Lundell, and D. Soderberg. The wall effect on the orientation of fibres in a shear flow. In *Annual transactions of the nordic rheology society*, 2006.
- [Cou05] P. Coussot. *Rheometry Of Pastes, Suspensions And Granular Materials: Applications In Industry And Environment*. John Wiley & Sons Inc, 2005.
- [Cou11] T. Coupez. Metric construction by length distribution tensor and edge based error for anisotropic adaptive meshing. *J. Comp. Phys.*, 230:2391–20405, 2011.
- [Cox71] R.G. Cox. The motion of long slender bodies in a viscous fluid. II : Shear flow. *Journal of Fluid Mechanics*, 45:625, 1971.
- [CT95] J.S. Cintra and C.L. Tucker. Orthotropic closure approximations for flow-induced fiber orientation. *J. Rheol.*, 39(6):1095–1122, 1995.

- [DA84] M. S. Dinh and R.C. Armstrong. A rheological equation of state for semiconcentrated fiber suspensions. *J. Rheol.*, 28 (3):207–227, 1984.
- [DCLS] H. Digonnet, T. Coupez, P. Laure, and L. Silva. Massively parallel anisotropic mesh adaptation, the international journal of high performance computing applications.
- [DCM⁺99] F. Dupret, A. Couniot, O. Mal, L. Vanderschuren, and O. Verhoyen. *Modelling and Simulation of Injection Molding*, pages 939–1010. Rheology Series. Elsevier, Amsterdam, 1999.
- [DE78] M. Doi and S.F. Edwards. Dynamics of rod-like macromolecules in concentrated solution. *J. Chem. Soc. Faraday Trans. II*, 74(1):560–570, 1978.
- [DGD⁺05] F. Danès, B. Garnier, T. Dupuis, P. Lerendu, and T-P. Nguyen. Non-uniformity of the filler concentration and of the transverse thermal and electrical conductivities of filled polymer plates. *Compos. Sci. Technol.*, 65:945–951, 2005.
- [DGR07] D. Dray, P. Gilormini, and G. Régnier. Comparison of several closure approximations for evaluating the thermoelastic properties of an injection molded short-fiber composite. *Composite Sciences and Technology*, 67:1601–1610, 2007.
- [Dia09] H. Diamant. Hydrodynamic interaction in confined geometries. *J. Phys.*, 78, 2009.
- [DLOF09] P.J.J. Dumont, S. Le Corre, L. Orgéas, and D. Favier. A numerical analysis of the evolution of bundle orientation in concentrated fibre-bundle suspensions. *J. Non-Newtonian Fluid Mech.*, 160:76–92, 2009.
- [DM14] G. D’Avino and P.L. Maffettone. Particle dynamics in viscoelastic liquids. *J. Non-Newtonian Fluid Mech.*, 215:80–104, 2014.
- [DMHP07] G. D’Avino, P.L. Maffettone, M.A. Hulsen, and G.W.M. Peters. A numerical method for simulating concentrated rigid particle suspensions in an elongational flow using a fixed grid. *Journal of Computational Physics*, 226:688–711, 2007.
- [DMHP08] G. D’Avino, P.L. Maffettone, M.A. Hulsen, and G.W.M. Peters. Numerical simulation of planar elongational flow of concentrated rigid particle suspensions in a viscoelastic fluid. *Journal of Non-Newtonian Fluid Mechanics*, 150:65–79, 2008.
- [DMT05] M. Djalili-Moghaddam and S. Toll. A model for short-range interactions in fibre suspensions. *J. Non-Newtonian Fluid Mech.*, 132:73–83, 2005.
- [DMT06] M. Djalili-Moghaddam and S. Toll. Fibre suspension rheology: Effect of concentration, aspect ratio and fibre size. *Rheol. Acta*, 45:315–320, 2006.
- [DOLF03] P. Dumont, L. Orgéas, S. Le Corre, and D. Favier. Anisotropic viscous behaviour of sheet molding compounds (SMC) during compression molding. *Int. J. Plasticity*, 19(4):625–646, 2003.
- [DV99] F. Dupret and V. Verleye. *Modelling the Flow of Fiber Suspensions in Narrow Gaps*, pages 1347–1398. Rheology Series. Elsevier, Amsterdam, 1999.
- [DVO⁺07] P. Dumont, J-P. Vassal, L. Orgéas, V. Michaud, D. Favier, and JA-E. Månson. Processing, characterization and rheology of transparent concentrated fibre bundle suspensions. *Rheol. Acta*, 46:639–651, 2007.
- [EAC14] G. Ausias, E. Cueto, F. Chinesta, R. Keunings, E. Abisset-Chavanne and J. Férec. A second-gradient theory of dilute suspensions of flexible rods in a newtonian fluid. *Arch. Computat. Methods Eng.*, 22:511–527, 2014.
- [Ein06] A. Einstein. Eine neue bestimmung der moleküldimensionen. *Ann. der Physik.*, 19:289–306, 1906.

- [Eri60] J.L. Ericksen. Transversely anisotropic fluids. *Kolloid-Zeitschrift*, 173(2):117–122, 1960.
- [ESB05] J. Engmann, C. Servais, and A.S. Burbidge. Squeeze flow theory and applications to rheometry: A review. *J. Non-Newtonian Fluid Mech.*, 132:1–27, 2005.
- [FACAC14] J. Férec, E. Abisset-Chavanne, G. Ausias, and F. Chinesta. On the use of interaction tensors to describe and predict rod interaction in rod suspensions. *Rheol. Acta*, 53:445–456, 2014.
- [FAHC09] J. Férec, G. Ausias, M.C. Heuzey, and P.J. Carreau. Modeling fiber interactions in semiconcentrated fiber suspension. *J. Rheol.*, 53:49–72, 2009.
- [FBK+16] J. Férec, E. Bertevas, B.C. Khoo, G. Ausias, and N. Phan-Thien. The effect of shear-thinning behaviour on rod orientation in filled fluids. *J. Fluid Mech.*, 798:730–750, 2016.
- [FDBC05] M. Faessel, C. Delisée, F. Bos, and P. Castéra. 3d modelling of random cellulosic fibrous networks based on x-ray tomography and image analysis. *Composites Science and Technology*, 65:1931–1940, 2005.
- [FG83] M. Fortin and R. Glowinski. *Augmented Lagrangian Methods, Applications to the Numerical Solution of Boundary-Value Problems*. North Holland, 1983.
- [FL96] S. Fu and B. Lauke. Effects of fiber length and fiber orientation distributions on the tensile strength of short-fiber-reinforced polymers. *Composites Science and Technology*, 56(10):1179–1190, 1996.
- [FM59] O.L. Forgacs and S.G. Månson. Particle motion in sheared suspension: X. orbits of flexible threadlike particules. *J. of Colloid Sci.*, 14:473–491, 1959.
- [FM03] S.Y. Fu and Y.W. Mai. Thermal conductivity of misaligned short-fiber reinforced polymer composites. *J. Appl. Polym. Sci.*, 88:1497–1505, 2003.
- [FPTZ98a] X. Fan, N. Phan-Thien, and R. Zheng. A direct simulation of fibre suspensions. *J. Non-Newtonian Fluid Mech.*, 74:113–135, 1998.
- [FPTZ98b] X. Fan, N. Phan-Thien, and R. Zheng. A direct simulation of fibre suspensions. *J. Non-Newtonian Fluid Mech.*, 74:113–135, 1998.
- [FS89a] G.H. Fredrickson and E.S.G. Shaqfeh. Heat and mass transport in composites of aligned slender fibers. *Phys. Fluids A*, 1:3–20, 1989.
- [FS89b] G.L. Fredrickson and E. S. G. Shaqfeh. Heat and mass transport in composites of aligned slender fibers. *Physics of Fluids*, 1(1):3–20, 1989.
- [FT84] F. Folgar and C.L. Tucker. Orientation behavior of fibers in concentrated suspensions. *J. Reinf. Plast. Compos.*, 3:98–118, 1984.
- [FTL84] F. Folgar, C.L. Tucker, and C.C. Lee. Simulation of compression molding for fiber-reinforced thermosetting polymers. *J. Eng. Ind.*, 106:114–125, 1984.
- [GD14] F. Greco P.L. Maffettone, G. D’Avino and M.A. Hulsen. Bistability and metabistability scenario in the dynamics of an ellipsoidal particle in a sheared viscoelastic fluid. *Phys. Rev. E*, 89, 2014.
- [GDO+10] O. Guiraud, P.J.J. Dumont, L. Orgéas, J-P. Vassal, T.H. Le, and D. Favier. Towards the mould filling simulation of polymer composites reinforced with mineral fillers and short glass fibres. *Int. J. Mater Forming*, 3:1313–1326, 2010.
- [GGM71] F. Gauthier, H.L. Goldsmith and S.G. Mason. Particle motions in non-Newtonian media i: Couette flow. *Rheol. Acta*, 10:344–364, 1971.

- [GM61] H.L. Goldsmith and S.G. Mason. Particle motions in sheared suspensions. 13. the spin and rotation of disks. *Journal of FLuid Mechanics*, 12:88–96, 1961.
- [God78] J.D. Goddard. Tensile behavior of powerlaw fluids containing oriented slender fibers. *J. Rheol.*, 22, 1978.
- [GODR12] O. Guiraud, L. Orgéas, P.J.J. Dumont, and S. Rolland du Roscoat. Microstructure and deformation micro-mechanisms of concentrated fibre bundle suspensions: an analysis combining x-ray microtomography and pull-out tests. *J. Rheol.*, 56:593–623, 2012.
- [GSMV08] D.Z. Gunes, R. Scirocco, J. Mewis, and J. Vermant. Flow-induced orientation of non-spherical particles: Effect of aspect ratio and medium rheology. *J. Non-Newtonian Fluid Mech.*, 155:39–50, 2008.
- [Han62] G.L. Hand. A theory of anisotropic fluids. *J. Fluid Mech*, 13:33–46, 1962.
- [HH06] W.R. Hwang and M.A. Hulsen. Direct numerical simulations of hard particle suspensions in planar elongational flow. *Journal of Non-Newtonian Fluid Mechanics*, 136:167–178, 2006.
- [HL72] E.J. Hinch and L.G. Leal. The effect of brownian motion on the rheological properties of a suspension of non-spherical particles. *J. Fluid Mech.*, 52:683–712, 1972.
- [HL73] E.J. Hinch and L.G. Leal. Time-dependent shear flows of a suspension of particles with weak brownian rotations. *J. Fluid Mech.*, 57 (4):753–767, 1973.
- [Hol07] R. Holm. Shear influence on fibre orientation. *Rheol. Acta*, 46:721–729, 2007.
- [ICK96] Y. Iso, C. Cohen, and D.L. Koch. Orientation in simple shear flow of semi-dilute fiber suspensions. 2. highly elastic fluids. *J. Non-Newtonian Fluid Mech.*, 62:135–153, 1996.
- [IKC96] Y. Iso, D.L. Koch, and C. Cohen. Orientation in simple shear flow of semi-dilute fiber suspensions. 1. weakly elastic fluids. *J. Non-Newtonian Fluid Mech.*, 62:115–134, 1996.
- [Jef22] G.B. Jeffery. The motion of ellipsoidal particles immersed in a viscous fluid. *Proc. Roy. Soc. London, (A)* 102:161–179, 1922.
- [JSF90] S. J. Johnson, A.J. Salem, and G.G. Fuller. Dynamics of colloidal particles in sheared, non-newtonian fluids. *J. Non-Newtonian Fluid Mech.*, 89:89–121, 1990.
- [KG98] G. Kotsikos and A.G. Gibson. Investigation of the squeeze flow behaviour of sheet moulding compounds (SMC). *Compos. Part A*, 29(12):1569–1577, 1998.
- [KHTS00] T. Kitano, E. Haghani, T. Tanegashima, and P. Saha. Mechanical properties of glass fiber/organic fiber mixed-mat reinforced thermoplastic composites. *Polym. Compos.*, 21:493–505, 2000.
- [KKS89] T. Kitano, T. Kataoka, and T. Shirota. An empirical equation of the relative viscosity of polymer melt filled with various inorganic fillers. *Rheol. Acta*, 20:207–209, 1989.
- [Koc95] D.L. Koch. A model for orientational diffusion in fiber suspensions. *Phys. Fluids*, 7 (8):2086–2088, 1995.
- [KV00] M. Kompani and D.C. Venerus. Equibiaxial extensional flow of polymer melts via lubricated squeezing flow: I. experimental analysis. *Rheol. Acta*, 39:444–451, 2000.
- [Lat07] U. Strautins and A. Latz. Flow-driven orientation dynamics of semiflexible fiber systems. *Rheol. Acta*, 46:1057–1064, 2007.

- [Lat12] P. Latil. *Micro-mécanismes de déformation de mèches de fibres saturées*. PhD thesis, Université de Grenoble, 2012.
- [LDHB88] G.G. Lipscomb, M.M. Denn, D.U. Hur, and D.V. Boger. The flow of fiber suspensions in complex geometries. *J. Non-Newtonian Fluid Mech.*, 26:297–325, 1988.
- [LDO⁺08] T.H Le, P.J.J. Dumont, L. Orgéas, D. Favier, L. Salvo, and E. Boller. X-ray phase contrast microtomography for the analysis of the fibrous microstructure of SMC composites. *Compos Part A*, 39:91–103, 2008.
- [LEA75] L. G. Leal. The slow motion of slender rod-like particles in a second-order fluid. *J. Fluid Mech.*, 69:305–337, 1975.
- [LOD⁺16] T. Laurencin, L. Orgéas, P.J.J. Dumont, S. Rolland du Roscoat, P. Laure, S. Le Corre, L. Silva, R. Mokso, and M. Terrien. 3d real-time and in situ characterisation of fibre kinematics in dilute non-newtonian fibre suspensions during confined and lubricated compression flow. *Composites Science Technology*, 134:258–266, 2016.
- [LOG⁺11] P. Latil, L. Orgéas, C. Geindreau, P.J.J. Dumont, and S. Rolland du Roscoat. Towards the 3d in situ characterisation of deformation micro-mechanisms within a compressed bundle of fibres. *Compos. Sci. Technol.*, 71:480–488, 2011.
- [LPV⁺14] P. Laure, E. Peuvrel-Disdier, R. Valette, L. Silva. Direct numerical computation of fiber orientation in a flow for non-Newtonian fluids. Submitted to *Compos. Part A*, 2014.
- [LSB⁺09] N. Limodin, L. Salvo, E. Boller, M. Suéry, M. Felberbaum, S. Gailliègue, and K. Madi. In situ and real-time 3-d microtomography investigation of dendritic solidification in an al–10 wt.% cu alloy. *Acta Mater.*, 57:2300–2310, 2009.
- [LW99] C-M. Lin and C-I. Weng. Simulation of compression molding for sheet molding compound considering the anisotropic effect. *Polym. Compos.*, 20(1):98–113, 1999.
- [LWH97] C-M. Lin, C-I. Weng, and C-T. Ho. Anisotropy in sheet molding compounds during compression molding. *Polym. Compos*, 18(5):613–622, 1997.
- [MAR01] K.B. Moses, S.G. Advani, and A. Reinhardt. Investigation of fiber motion near solid boundaries in simple shear flow. *Rheol. Acta*, 40:296–306, 01.
- [Mas09] J.P. Masse. *Conception optimale de solutions multimatériaux multifonctionnelles: l'exemple des structures sandwichs à peaux en acier choix des matériaux et développement de nouveaux matériaux de coeur*. PhD thesis, Université de Grenoble, 2009.
- [MCAM08] W.K.A. Ma, F. Chinesta, A. Ammar, and M.R. Mackley. Rheological modeling of carbon nanotube aggregate suspensions. *J. Rheol*, 52:1131–1330, 2008.
- [MGG⁺89] W.J. Milliken, M. Gottlieb, A. Graham, L.A. Mondy, and R.L. Powell. The viscosity-volume fraction relation for suspension rod-like particles by falling-ball rheometry. *J. Fluid Mech.*, 202:217–232, 1989.
- [MKC09] M.C. Heuzey M. Keshtkar and P.J. Carreau. Rheological behavior of fiber-filled model suspensions: Effect of fiber flexibility. *J. Rheol.*, 53, 2009.
- [MKD10] P.J. Carreau M. Rajabian M. Keshtkar, M.-C. Heuzey and C. Dubois. Rheological properties and microstructural evolution of semi-flexible fiber suspensions under shear flow. *J. Rheol.*, 54, 2010.

- [MLM11] S. Mueller, E.W. Llewellyn, and H.M. Mader. The effect of particle shape on suspension viscosity and implications for magmatic flows. *Geophysical Research Letters*, 38, 2011.
- [MPD⁺15] F. Martoia, C. Perge, P.J.J. Dumont, L. Orgéas, M.A. Fardin, S. Manneville, and M.N. Belgacem. Heterogeneous flow kinematics of cellulose nanofibril suspensions under shear. *Soft Matter*, paper accepted, 2015.
- [MRG05] C. Dubois M. Rajabian and M. Grmela. Suspensions of semiflexible fibers in polymeric fluids: Rheology and thermodynamics. *Rheol. Acta*, 44:521–535, 2005.
- [MS96] M.B. Mackaplow 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.
- [MW84] H. Menendez and J.L. White. A wide-angle x-ray diffraction method of determining chopped fiber orientation in composites with application to extrusion through dies. *Polymer Engineering and Science*, 24:1051–1055, 1984.
- [NHC⁺13] G. Natale, M.C. Heuzey, P.J. Carreau, G. Ausias, and J. Férec. Rheological modeling of carbon nanotube suspensions with rod–rod interactions. *AIChE*, 60:1476–1487, 2013.
- [ODLF08] L. Orgéas, P.J.J. Dumont, T.H. Le, and D. Favier. Lubricated compression of BMC, a concentrated and fibre reinforced granular polymer suspension. *Rheol. Acta*, 47:677–688, 2008.
- [ODMF08] L. Orgéas, P.J.J. Dumont, V. Michaud, and D. Favier. Separation of the polymer matrix and the fibrous reinforcement during compression moulding of glass mat thermoplastics (GMT). *Int. J. Mater Forming*, 1:929–932, 2008.
- [ODV⁺12] L. Orgéas, P.J.J. Dumont, J-P. Vassal, O. Guiraud, V. Michaud, and D. Favier. In-plane conduction of polymer composites plates reinforced with architected networks of copper fibres. *J. Mater. Sci.*, 47:2932–2942, 2012.
- [OS88] S. Osher and J. Sethian. Front propagating with curvature-dependent speed : algorithm based on hamilton-jacobi formulations. *J. Comput. Phys.*, 79:12–49, 1988.
- [OS14] A. Ozolins and U. Strautins. Simple models for wall effect in fiber suspension flows. *Mathematical Modelling and Analysis*, 19:75–84, 2014.
- [OT94] T.A. Osswald and S.C. Tseng. *Flow and Rheology in Polymer Composites Manufacturing*, volume 10 of *Composite Materials Series*, chapter C8 - Compression Molding, pages 361–413. Ed. S. G. Advani - Elsevier, 1994.
- [PBB⁺07] P. Laure, G. Beaume, O. Basset, L. Silva, and T. Coupez. Numerical methods for solid particles in particulate flow simulations. *Eur. J. Comp. Mechanics*, 16:365–383, 2007.
- [PCKC00] M.P. Petrich, M. Chaouche, D.L. Koch, and C. Cohen. Oscillatory shear alignment of a non-brownian fiber in a weakly elastic fluid. *J. Non-Newtonian Fluid Mech.*, 91:1–14, 2000.
- [Per16] M. Perez. *M. Modeling and simulation of micro/nano structured fluids for engineered materials*. PhD thesis, Université de Nantes Angers Le Mans, 2016.
- [Pic11] C. Picu. Mechanics of random fiber networks - a review. *Soft Matter*, 7:6768–6785, 2011.

- [PKC00] M.P. Petrich, 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.
- [Pow91] R.L. Powell. Rheology of suspensions of rodlike particles. *J. Stat. Phys.*, 62:1073–1094, 1991.
- [PSAC⁺16] M. Perez, A. Scheuer, E. Abisset-Chavanne, F. Chinesta, and R. Keunings. A multi-scale description of orientation in simple shear flows of confined rod suspensions. *J. of Non-newtonian Fluid Mech.*, 233:61–74, 2016.
- [PSM86] A.C. Papanastasiou, L.E. Scriven, and C.W. Macosko. Analysis of lubricated squeezing flow. *Int. J. Num. Meth. Fluids*, 6:819–839, 1986.
- [PT09] J.H. Phelps and C.L. Tucker. An anisotropic rotary diffusion model for fiber orientation in short- and long-fiber thermoplastics. *Journal of Non-Newtonian Fluid Mechanics*, 156:165–176, 2009.
- [PTFTZ02] N. Phan-Thien, X.J. Fan, R.I. Tanner, and R. Zheng. Folgar-tucker constant for a fibre suspension in a newtonian fluid. *J. Non-Newtonian Fluid Mech.*, 103:251–260, 2002.
- [PTG91] N. Phan-Thien and A.L. Graham. A new constitutive model for fibre suspensions: Flow past a sphere. *Rheol. Acta*, 30(1):44–57, 1991.
- [Pud98] C. Pudney. Distance-ordered homotopic thinning: A skeletonization algorithm for 3d digital images. *Computer vision and image understanding*, 72:404–413, 1998.
- [RA90] S. Ranganathan and S.G. Advani. Characterization of orientation clustering in short-fiber composites. *Journal of Polymer Science Part B: Polymer Physics*, 28:2651–2672, 1990.
- [RAKG97] A. Ramazani, A. Ait-Kadi, and M. Grmela. Rheological modelling of short fiber thermoplastic composites. *J. Non-Newtonian Fluid Mech.*, 73:241–260, 1997.
- [RAKG01] S. Ramazani, A. Ait-Kad, and M. Grmela. Rheology of fiber suspensions in viscoelastic media: experiments and model predictions. *J. Rheol.*, 45:945–962, 2001.
- [RH77] W.B. Russel and E.J. Hinch. Rods falling near a vertical wall. *J. Fluid Mech.*, 83:273–287, 1977.
- [RKC95] M. Rahnama, D.L. Koch, and C. Cohen. Observations of fiber orientation in suspensions subjected to planar extensional flows. *Phys. Fluids*, 7 (8):1811–1817, 1995.
- [RKIC93] M. Rahmana, D.L. Koch, Y. Iso, and C. Cohen. Hydrodynamic, translational diffusion in fiber suspensions subject to simple shear flow. *Phys. Fluids A*, 5(4):849–862, 1993.
- [RKS95] M. Rahnama, D.L. Koch, and E.S.G. Shaqfeh. The effect of hydrodynamic interactions on the orientation distribution in a fiber suspension subject to simple shear flow. *Phys Fluids*, 7:487–506, 1995.
- [RMC15] J. Férec G. Ausias R. Mezher, E. Abisset-Chavanne and F. Chinesta. Direct simulation of concentrated fiber suspensions subjected to bending effects. *Modelling Simul. Mater. Sci. Eng.*, 23, 15.
- [SC90] C.A Stover and C. Cohen. The motion of rodlike particles in the pressure driven flow between two plates. *Rheol. Acta*, 29:192–203, 1990.
- [SF90] E.S.G Shaqfeh and G.L. Fredrickson. The hydrodynamic stress in a suspension of rods. *Phys. Fluids*, 2(1):7–24, 1990.

- [SGB12] B. Snook, E. Guazzelli, and J. Butler. Vorticity alignment of rigid fibers in an oscillatory shear flow: Role of confinement. *Phys. Fluids*, 24:121702, 2012.
- [SK88a] E.S.G. Shaqfeh and D.L. Koch. The effect of hydrodynamic interactions on the orientation of axisymmetric particles flowing through a fixed bed of spheres or fibers. *Phys. Fluids*, 31(4):728–745, 1988.
- [SK88b] R.M. Soszynski and R.J. Kerekes. Elastic interlocking of nylon fibers suspended in liquid. Part 2. Process of interlocking. *Nord. Pulp Pap. Res. J.*, 3:180–184, 1988.
- [SK90] E.S.G. Shaqfeh and D.L. Koch. Orientational dispersion of fibers in extensional flows. *Physics of Fluids*, 2(7):1077–1093, 1990.
- [SK97] R.R. Sundararajakumar and D.L. Koch. Structure and properties of sheared fiber suspensions with mechanical contacts. *J. Non-Newtonian Fluid Mech.*, 73:205–239, 1997.
- [SK03] L.H. Switzer and D. J. Klingenberg. Rheology of sheared flexible fiber suspensions via fiber-level simulations. *J. Rheol.*, 47(3):759–778, 2003.
- [SK8a] R.M. Soszynski and R.J. Kerekes. Elastic interlocking of nylon fibers suspended in liquid. Part 1. Nature of cohesion among fibers. *Nord. Pulp. Pap. Res. J.*, 3:172–179, 1988a.
- [SKC92] C.A. Stover, D.L. Koch, and C. Cohen. Observations of fiber orientation in simple shear-flow of semidilute suspensions. *J. Fluid Mech.*, 238:277–296, 1992.
- [SKE+13] J.-P. Suuronen, A. Kallonen, M. Elk, J. Puttonen, R. Serima, and H. Herrmann. Analysis of short fibres orientation in steel fibre-reinforced concrete (sfrc) by x-ray tomography. *J. Mat. Sci.*, 48:1358–1367, 2013.
- [SLM99] C. Servais, A. Luciani, and J–A. E. Månson. Fiber-fiber interaction in concentrated suspensions: Dispersed fiber bundles. *J. Rheol.*, 43(4):1005–1018, 1999.
- [SLM02] C. Servais, A. Luciani, and J.A.E. Månson. Squeeze flow of concentrated long fibre suspensions: experiments and model. *J. Non-Newtonian Fluid Mech.*, 104:165–184, 2002.
- [SMT99] C. Servais, J–A. E. Månson, and S. Toll. Fiber-fiber interaction in concentrated suspensions: disperse fibers. *J. Rheol.*, 43(4):991–1004, 1999.
- [Spa90] D. Spahr. *Processing-Microstructure-Toughness Relationships in Thermoplastic Matrix Composites*. PhD thesis, University of Delaware, 1990.
- [SRFY13] S. Sinha-Ray, K. Fezzaa, and A.L. Yarin. The internal structure of suspensions in uniaxial elongation. *Journal of Applied Physics*, 113, 2013.
- [SS97] R. Schiek and E. Shaqfeh. Oscillatory shear of a confined fiber suspension. *J. Rheol.*, 41:445–466, 1997.
- [SSLL05] P.D.M. Spelt, T. Selerland, C.J. Lawrence, and P.D. Lee. Flows of inelastic non-newtonian fluids through arrays of aligned cylinders. part 1. creeping flows. *J. Eng. Math.*, 51:57–80, 2005.
- [SV98] B. Souloumiac and M. Vincent. Steady shear viscosity of short fibre suspensions in thermoplastics. *Rheol. Acta*, 37:289–298, 1998.
- [TA93] S. Toll and P.-O. Andersson. Microstructure of long- and short-fiber reinforced injection molded polyamide. *Polym. Compos.*, 14:116–125, 1993.
- [Tay23] G. Taylor. The motion of ellipsoidal particles in a viscous fluid. *Proc. R. Soc. London*, A103:58–61, 1923.

- [TCSA05] J. Thomasset, P.J. Carreau, B. Sanschagrin, and G. Ausias. Rheological properties of long glass fibre filled polypropylene. *J. Non-Newtonian Fluid Mech.*, 125:25–34, 2005.
- [TM51] B.J. Trevelyan and S.G. Mason. Particle motions in sheared suspensions I. rotations. *J. Colloid Sci.*, 6:354–367, 1951.
- [Tol93] S. Toll. Note: On the tube model for fiber suspensions. *J. Rheol.*, 37(1):123–125, 1993.
- [TV96] J.L. Thomasson and M.A. Vlug. Influence of fibre length and concentration on the properties of glass fibre-reinforced polypropylene: 1. tensile and flexural modulus. *Compos. Part A*, 27A:477–484, 1996.
- [Utk15] A. Utkarsh. *The ParaView Guide: A Parallel Visualization Application*. 2015.
- [Ver91] P. Verna. *Modélisation Continue Des Structures Discrètes Par Homogénéisation : Cas Des Treillis*. PhD thesis, INPG, Grenoble, France, 1991.
- [VIFO99] B.E. VerWeyst, C.L. Tucker III, P.H. Foss, and J.F. O’Gara. Fiber orientation in 3-d injection molded features prediction and experiment. *Int. Polym. Proc.*, 14:409–420, 1999.
- [VLO+13] J. Viguié, P. Latil, L. Orgéas, P.J.J. Dumont, S. Rolland du Roscoat, J-F. Bloch, C. Marulier, and O Guiraud. Finding fibres and their contacts within 3d images of disordered fibrous media. *Compos. Sci. Technol.*, 89:202–210, 2013.
- [VOF+8a] J-P. Vassal, L. Orgéas, D. Favier, J-L. Auriault, and S. Le Corre. Upscaling the diffusion equations in particulate media made of highly conductive particles. I. theoretical aspects. *Phys. Rev. E*, 77:011302, 2008a.
- [VSC11] L. Ville, L. Silva, and T. Coupez. Convected level set method for the numerical simulation of fluid buckling. *Int. J. Numer. Meth. Fluids*, 66:324–344, 2011.
- [WBB+12] S. Wegner, T. Borzsonyi, T. Bien, G. Rose, and R. Stannariu. Alignment and dynamics of elongated cylinders under shear. *Soft Matter*, 8:10950–10958, 2012.
- [Wet98] E.D. Wetzel. *Modelling flow induced microstructure in inhomogeneous liquid-liquid mixtures*. PhD thesis, University of Illinois, 1998.
- [YD98] Y. Yamane, Y. Kan and Y. Kaneda. Numerical simulation of semi-dilute suspensions of rodlike particles in shear flow. *J. Nen-Newtonian Fluid Mech.*, 54:405–421, 1998.
- [YKM04] K. Yasuda, T. Kyuto, and N. Mori. An experimental study of flow-induced fiber orientation and concentration distributions in a concentrated suspension flow through a slit channel containing a cylinder. *Rheol. Acta*, 43:137–145, 2004.
- [YMN02] K. Yasuda, N. Mori, and K. Nakamura. A new visualization technique for short fibers in a slit flow of fiber suspensions. *Journal of Engineering Science*, 40:1037–1052, 2002.

Étude de la rhéologie des suspensions de fibres non-newtoniennes par imagerie et simulation numérique 3D à l'échelle des fibres

Ce travail porte sur la mise en forme des matériaux composites à matrice polymère renforcée par des fibres courtes dont les performances physiques et mécaniques sont directement reliées à la distribution spatiale et à l'orientation des renforts employés. Il se focalise sur l'étude des mécanismes de déformation se produisant au cours de l'écoulement de ces systèmes qui se comportent comme des suspensions de fibres non-newtoniennes. Le problème est abordé par une procédure originale combinant images 3D acquises en temps réel et simulations numériques avancées, réalisées à l'échelle des fibres. Dans le premier cas, des suspensions modèles avec fluide suspensif non-newtonien ont été déformées en compression dans des conditions confinées dans un microtomographe à rayons X synchrotron. Cette technique a permis l'acquisition en temps réel de clichés 3D à forte résolution spatiale de l'écoulement des suspensions. Dans le deuxième cas, un code de calculs éléments finis 3D a été utilisé, celui-ci étant capable de décrire finement des objets immergés dans des fluides non-newtoniens, par des level-sets et des techniques de remaillage anisotrope. La pertinence des simulations numériques dans les régimes de concentration dilués à semi-dilués a été jugée par une comparaison expériences-simulations avancée. De là, dans le régime de concentration dilué, nous montrons que le confinement de l'écoulement et le comportement rhéofluidifiant du fluide suspensif ont une influence mineure sur la cinématique des fibres, si ces dernières sont suffisamment éloignées des plateaux de compression. Si ce prérequis n'est pas respecté, l'effet du confinement devient important. Des modifications au modèle heuristique d'haltère de la littérature ont été proposées pour corriger la cinématique de fibres. Dans le régime semi-dilué, des déviations de la cinématique de fibres sont également observées au cœur des suspensions. Ces déviations sont principalement liées aux interactions hydrodynamiques entre fibres suffisamment voisines. La cinématique des fibres prédite par le modèle de Jeffery et les approximations de champ affine sont mises en défaut. Dans le régime concentré, si l'évolution de l'orientation globale de la suspension est étonnamment bien décrite par l'équation de Jeffery, de très importantes fluctuations des champs de translation et de rotation des fibres sont observées à l'échelle des fibres. Celles-ci sont induites par les nombreux contacts entre fibres qui peuvent par ailleurs être correctement prédits par le modèle de tube.

Mot-clés : Composites à fibres courtes, suspensions modèles de fibres, rhéologie, microtomographie à rayons X, analyse d'image, mesure de champs cinématiques par corrélation semi-discrète, simulation éléments finis, écoulement élongationnel, calculs numérique haute performance, level-sets, maillage adaptatif.

Abstract

3D rheology of non-Newtonian fibre suspensions using X-ray tomography and finite element simulation at fibre scale

This study focuses on the processing of short fibre-reinforced polymer composites. The physical and mechanical properties of these materials are mainly affected by the position and orientation distribution of fibres induced during their forming. Thus, we analysed the flow-induced micro-mechanisms that arose at the fibre scale during the forming stage of these complex systems which behave as non-Newtonian fibre suspensions. For that purpose, an original approach was developed by combining 3D imaging technique and direct numerical simulation, both performed at the fibre scale. Hence, several model fibre suspensions with a non-Newtonian suspending fluid and with a concentration regime that ranged from dilute to concentrated were prepared. They were subjected to confined lubricated compression loadings using a rheometer mounted on a synchrotron X-ray microtomograph. Thanks to very short scanning times, 3D images of the evolving fibrous microstructures at high spatial resolution were recorded in real-time. These experiments were also simulated using a dedicated Finite Element library enabling an accurate description of fibre kinematics in complex suspending fluids thanks to high performance computation, level sets and adaptive anisotropic meshing. The efficiency of the numerical simulation from the dilute to semi-dilute concentration regimes was assessed through experimental and numerical comparisons. Then, we showed that the confinement effect and the non-Newtonian rheology of the suspending fluid had a weak effect on the fibre kinematics, if the fibres were sufficiently far from the compression platens, typically the fibre-platen distance should be larger than twice the fibre diameter. Otherwise, confinement effects occurred. Some extensions of the dumbbell model were proposed to correct the fibre kinematics in this flow conditions. In semi-dilute concentration, deviations of the fibre kinematics compared to the Jeffery's predictions were also observed and related to hydrodynamic interactions between fibres. In this case, the predictions of Jeffery's model and the related assumption of affine fibre motions are less relevant. In the concentrated regime, even if the overall orientation of fibre suspension could be astonishingly well described by using the Jeffery's model, strong fluctuations on each fibre motion and rotation were observed. These deviations were induced by the numerous fibre-fibre contacts, which could be correctly predicted by the tube model.

Keywords : short fibre-reinforced polymer composite, model fibre suspensions, rheology, X-ray tomography, image analysis, semi-discrete correlation, finite element simulation, elongational flow, high performance computation, levelset, mesh adaptation.