

Titre: Propriétés rhéologiques en cisaillement et en élongation d'un polypropylène chargé de fibres de verre courtes
Title: rheological properties in shear and elongation of a polypropylene reinforced with short glass fibers

Auteur: Christophe Mobuchon
Author:

Date: 2002

Type: Mémoire ou thèse / Dissertation or Thesis

Référence: Mobuchon, C. (2002). Propriétés rhéologiques en cisaillement et en élongation d'un polypropylène chargé de fibres de verre courtes [Master's thesis, École Polytechnique de Montréal]. PolyPublie. <https://publications.polymtl.ca/7043/>
Citation:

Document en libre accès dans PolyPublie

Open Access document in PolyPublie

URL de PolyPublie: <https://publications.polymtl.ca/7043/>
PolyPublie URL:

Directeurs de recherche: Basil D. Favis
Advisors:

Programme: Unspecified
Program:

NOTE TO USERS

Page(s) missing in number only; text follows. Page(s) were
scanned as received.

ii, iii

This reproduction is the best copy available.

UMI[®]

UNIVERSITÉ DE MONTRÉAL

PROPRIÉTÉS RHÉOLOGIQUES EN CISAILLEMENT ET EN ÉLONGATION
D'UN POLYPROPYLÈNE CHARGÉ DE FIBRES DE VERRE COURTES

MOBUCHON CHRISTOPHE
DÉPARTEMENT DE GÉNIE CHIMIQUE
ÉCOLE POLYTECHNIQUE DE MONTRÉAL

MÉMOIRE PRÉSENTÉ EN VUE DE L'OBTENTION
DU DIPLÔME DE MAÎTRISE ÈS SCIENCES APPLIQUÉES
(GÉNIE CHIMIQUE)

DÉCEMBRE 2002

National Library
of Canada

Acquisitions and
Bibliographic Services

395 Wellington Street
Ottawa ON K1A 0N4
Canada

Bibliothèque nationale
du Canada

Acquisitions et
services bibliographiques

395, rue Wellington
Ottawa ON K1A 0N4
Canada

Your file *Votre référence*

ISBN: 0-612-83224-4

Our file *Notre référence*

ISBN: 0-612-83224-4

The author has granted a non-exclusive licence allowing the National Library of Canada to reproduce, loan, distribute or sell copies of this thesis in microform, paper or electronic formats.

The author retains ownership of the copyright in this thesis. Neither the thesis nor substantial extracts from it may be printed or otherwise reproduced without the author's permission.

L'auteur a accordé une licence non exclusive permettant à la Bibliothèque nationale du Canada de reproduire, prêter, distribuer ou vendre des copies de cette thèse sous la forme de microfiche/film, de reproduction sur papier ou sur format électronique.

L'auteur conserve la propriété du droit d'auteur qui protège cette thèse. Ni la thèse ni des extraits substantiels de celle-ci ne doivent être imprimés ou autrement reproduits sans son autorisation.

Canada

FREUD. ... Les enfants sont spontanément philosophes : ils posent des questions.

ANNA. Et les adultes ?

FREUD. Les adultes sont spontanément idiots : ils répondent.

Éric-Émmanuel Schmitt

Le visiteur

Je ne conçois un avenir que dans une espèce de déséquilibre de l'esprit, pour lequel la stabilité est non seulement un temps mort, mais une véritable mort.

Bernard Marie Koltès

A sa mère, le 20 juin 1969

REMERCIEMENTS

Je tiens à remercier en premier lieu mon directeur de recherche, Monsieur Pierre Carreau, de m'avoir accueilli au sein de son équipe ainsi que ma co-directrice de recherche, Madame Marie-claude Heuzey. Leur aide scientifique, leur expérience et leur disponibilité m'ont été très précieuses tout au long de ce projet.

Je remercie vivement Monsieur Gilles Ausias et Madame Maryam Sepehr, pour l'intérêt qu'ils ont su porter à cette étude ainsi que pour les nombreux conseils qu'ils m'ont donnés.

Je remercie également Monsieur Basil Favis et Monsieur Abdella Ajji d'avoir accepté d'être respectivement président et membre du jury.

Je ne saurai oublier l'équipe du C.R.A.S.P. et tout spécialement, Monsieur Robert Delisle et Monsieur Jacques Beausoleil pour leur soutien technique lors de la réalisation du rhéomètre en ligne, Monsieur Frédéric Cotton pour son expertise lors des mesures en laboratoire ainsi que Monsieur Mourad Heniche pour la simulation numérique.

J'aimerais remercier pêle-mêle tous ceux et celles qui m'ont entouré depuis mon arrivée à Montréal : Natalie Chapeleau et Paul André Lavoie, Peter Hass et Emmanuelle Martelat,

Claudia et Pierrick Chasseriau, Éric Gamache, Adrien Lapeyre, Nicolas Marin, Karen Stoefler et Jean-François Pelletier, Ouhlal Abdelhak, Frédéric Cotton, Diane Heroux & Luc Parent, Régis Andreux, Cécille Bogey, Alexandre Boyer, Ibrahim Busuladzic, Anne Cabanne, Solenn Cariou, Julie Daubier, Marc-Henri Faure, Denis Ferlan, Christophe Gaubert, Florence Leboucher, Frédérique Pichot, Anne Sophie Reuzé & Yann Trovalet,

...

Une proche pensée à mes parents Edith et Yves et avec toute mon affection à Marianne.

RÉSUMÉ

Les propriétés mécaniques et thermiques des thermoplastiques renforcés de fibres courtes sont telles que ces matériaux rivalisent avec les métaux. Ils se caractérisent par une structure interne définie par l'état d'orientation et de distribution de leurs fibres. Cette structure joue un rôle prépondérant sur la définition des propriétés mécaniques et thermiques de ces matériaux. Elle est intimement liée aux écoulements engendrés lors de leur mise en œuvre. Une description précise de leurs propriétés rhéologiques est alors nécessaire afin de contrôler et optimiser leur mise en forme et les performances du produit final. Sa réalisation demeure difficile de part la nature hétérogène de ces fluides et les niveaux de concentration en fibres.

Une meilleure compréhension du comportement rhéologique de ces fluides est apportée par ce présent travail. Pour ce faire, le comportement rhéologique d'un polypropylène renforcé de fibres de verre courtes a été clairement identifié à travers la mise en évidence des phénomènes spécifiques liés à la présence des fibres. Cet objectif a pu être atteint grâce à la réalisation d'un rhéomètre filière plate en ligne sur une presse à injection associée à l'application des techniques rhéométriques de laboratoire.

Les résultats montrent que pour des taux d'elongation inférieurs à 10 s^{-1} , la viscosité relative (i.e., l'augmentation de la viscosité liée à la présence des fibres divisée par la

viscosité de la matrice) du polypropylène chargé augmente significativement avec la fraction volumique de fibres et dépend fortement du taux de déformation. La viscosité relative dépend également de l'état d'orientation de la structure qui selon les mesures en rhéométrie rotationnelle évolue non seulement avec la déformation mais aussi avec la vitesse de déformation. Sur une gamme de vitesses s'étendant de 10 à 10^4 s⁻¹, la présence des fibres n'augmente que faiblement la viscosité relative du polypropylène. La migration des fibres qui crée une couche diluée aux parois et l'augmentation du taux de cisaillement effectif par la présence des fibres sont les deux thèses qui permettent de l'expliquer. Aucun glissement au parois ni d'interactions entre les fibres et les instruments de mesures n'a été observé.

La réponse relative, par rapport à la matrice seule, de la suspension à une sollicitation oscillatoire dépend de l'amplitude de la déformation mais reste indépendante de la fréquence. L'angle de déphasage reste indifférent à la présence des fibres indiquant que l'augmentation de la première différence des contraintes normales, observée en régime permanent, témoigne des interactions entre les fibres.

À partir de la perte de charge mesurée dans des convergents planaires hyperboliques, la viscosité élongationnelle a été mesurée en utilisant la méthode de Binding et Cogswell. Le rapport de Trouton de notre polypropylène varie de 13.5 à 8.5 pour des vitesses de déformation comprises entre 0.2 et 200 s⁻¹, tandis qu'une augmentation de 6 et de 22 %

sont obtenues respectivement pour une suspension renforcée de 10 et 30 % en masse de fibres courtes.

ABSTRACT

The mechanical and thermal properties of short filled reinforced thermoplastics can be advantageously compared to those of metals. Those composites are characterized by the orientation and distribution state of their fibers. This internal structure affects strongly the final material properties. It is induced by the flow history resulting from processing conditions. For this reason the rheological behavior of these kinds of material must be understood in order to control their fabrication and the product properties. Unfortunately, the characterization of rheological behavior is difficult because of the heterogeneous state and concentration level in fibers.

The aim of the present work is to study the rheological behavior of short glass fibers filled polypropylene. To do so an online slit die rheometer mounted on an injection press was developed. The results obtained from this new rheometer were associated with standard rheological measurements techniques.

The results show that for shear rate below 10 s^{-1} , the relative viscosity of filled polypropylene increased with the volume fraction of glass fibers. It is also strongly dependant on the deformation rate and on the fibers orientation. According to rotational rheometry this fibers orientation depend not only on deformation but also with deformation rate. We showed that for deformation rate between 10 and 10^4 s^{-1} , the

relative viscosity of polypropylene was not strongly dependant on the fiber content. The migration of fibers to the wall, which creates diluted layer, and the increase of effective shear rate are the two main hypothesis to explain this phenomenon. No wall slip and fiber-wall interactions were observed.

The dynamic relative response of the suspensions is dependent on the deformation but independent of frequency. The loss angle is not affected by fiber content, and so the elastic properties remains constant, which confirms the fact that the first normal stress difference increase, is caused by fiber interactions.

From the measured pressure drop in the on line rheometer the elongational was estimated by Cogswell and Binding method. It was found that the Trouton ratio for the polypropylene studied was comprised between 13.5 and 8.5 for the deformation rate range of 0.2 et 200 s^{-1} . Finally an increase of 6 and 22 % of the extensional viscosity were obtained for our 10 and 30 % wt short glass fibers filled polypropylene.

TABLE DES MATIÈRES

REMERCIEMENTS.....	v
RÉSUMÉ.....	vii
ABSTRACT.....	x
TABLE DES MATIÈRES.....	xii
LISTE DES TABLEAUX.....	xv
LISTE DES FIGURES.....	xvii
LISTE DES SYMBOLES.....	xxiii
LISTE DES ANNEXES.....	xxviii
INTRODUCTION.....	1
CHAPITRE I : REVUE DE LA LITTÉRATURE	3
I.1 Propriétés rhéologiques des suspensions de fibres courtes.....	3
I.1.1 Régimes de concentration.....	3
I.1.2 Influence des parois de l'instrument de mesure	5
I.1.3 Viscosité en cisaillement	7
I.1.3.1 A faible taux de cisaillement.....	7
I.1.3.2 A fort taux de cisaillement.....	15
I.1.4 Première différence des contraintes normales	18
I.1.5 Viscosité élongationnelle.....	20
I.2 Modélisation du comportement rhéologique des suspensions de fibres	21
I.2.1 Paramètres d'orientation	22
I.2.2 Équations d'évolution du paramètre d'orientation	23
I.2.2.1 Évolution de l'orientation d'une fibre : systèmes dilués.....	23
I.2.2.2 Évolution de l'orientation d'une population de fibres : systèmes semi-concentrés	25

I.2.3	Équations constitutives	29
-------	-------------------------------	----

I.3 Conclusion	33
-----------------------------	-----------

I.4 Objectifs.....	34
---------------------------	-----------

CHAPITRE II : CARACTÉRISATION RHÉOLOGIQUE EN CISAILLEMENT.35

II.1	Matériaux étudiés	35
-------------	--------------------------------	-----------

II.2	Comportement rhéologique en cisaillement.....	40
-------------	--	-----------

II.2.1	Le rhéomètre à plateaux parallèles	40
II.2.1.1	Préparation des échantillons	40
II.2.1.1	Écoulement de cisaillement oscillatoire de faible amplitude	41
II.2.1.2	Cisaillement en régime permanent.....	53
II.2.1.3	Essai de Fluage	60
II.2.2	Le rhéomètre capillaire	63
II.2.3	Le rhéomètre filière plate	68
II.2.3.1	Description du dispositif.....	68
II.2.3.2	Analyse des résultats.....	71

II.3	Conclusion	86
-------------	-------------------------	-----------

CHAPITRE III : COMPORTEMENT RHÉOLOGIQUE EN ÉLONGATION.....92

III.1	Méthodes d'analyse des écoulements convergents	93
--------------	---	-----------

III.1.1	Profil de convergence	93
III.1.2	Méthode de Cogswell pour un convergent planaire hyperbolique	95
III.1.3	Méthode de Binding pour un convergent planaire hyperbolique	98
III.1.4	Méthode de Mackay et Astarita.....	102
III.1.5	Modélisation numérique du convergent "b"	103

III.2	Applications des méthodes précédentes.....	105
--------------	---	------------

III.2.1	Microscope électronique à balayage.....	105
III.2.2	Viscosité élongationnelle.....	106
III.2.2.1	Comparaison entre l'analyse de Cogswell et l'analyse de Binding	106
III.2.2.2	Influence de la géométrie d'écoulement	108
III.2.2.3	Rapport de Trouton et viscosité élongationnelle relative.....	108
III.2.2.4	Thermodépendance de la viscosité élongationnelle	111
III.2.2.5	Confrontation du modèle de Goddard avec les résultats expérimentaux	111
III.3	Conclusion	116
CHAPITRE IV : CONCLUSIONS ET PERSPECTIVES		117
IV.1	Conclusion générale.....	117
IV.1.1	Viscosité en cisaillement, en régime permanent	117
IV.1.2	Viscosité en cisaillement, en régime dynamique.....	118
IV.1.3	Viscosité en cisaillement, en régime transitoire	119
IV.1.4	Première différence des contraintes normales	119
IV.1.5	Viscosité élongationnelle apparente	119
IV.2	Perspectives	120
IV.2.1	À court terme	120
IV.2.2	À long terme	121
BIBLIOGRAPHIE.....		122
ANNEXES.....		145

LISTE DES TABLEAUX

Tableau II.1 Caractéristiques des renforts contenus dans les granulés de polypropylène utilisés.....	37
Tableau II.2 Rupture des fibres dans les procédés de mise en œuvre précédents les mesures rhéologiques	39
Tableau II.3 Paramètres de mise en œuvre utilisés pour la presse à injection et le mélangeur interne	39
Tableau II.4 Viscosités obtenues pour un même taux de cisaillement en régime permanent (II.2.1.2) et en régime transitoire à l'équilibre ; T = 200°C.....	61
Tableau II.5 Viscosités maximales mesurées lors d'un essai de fluage pour une contrainte de 1000 Pa ; T = 200°C.....	61
Tableau II.6 Paramètres du modèle de Carreau Yasuda pour les différents systèmes	87
Tableau III.1 Caractéristiques des convergents utilisés.....	94
Tableau IV.1 Polypropylène à 200°C	145
Tableau IV.2 Polypropylène renforcé à 30 % en masse de fibres de verre courtes à 200°C	145
Tableau IV.3 Polypropylène à 180°C	147
Tableau IV.4 Polypropylène à 200°C	147
Tableau IV.5 Polypropylène à 220°C	148
Tableau IV.6 Polypropylène renforcé de 10 % en masse de fibres de verre courtes à 200°C	149
Tableau IV.7 Polypropylène renforcé de 30 % en masse de fibres de verre courtes à 180°C	150
Tableau IV.8 Polypropylène renforcé de 30 % en masse de fibres de verre courtes à 200°C	151

Tableau IV.9 Polypropylène renforcé de 30 % en masse de fibres de verre courtes à 220°C	152
Tableau IV.10 Polypropylène.....	157
Tableau IV.11 Polypropylène renforcé de 10 % en masse de fibres de verre courtes	158
Tableau IV.12 Polypropylène renforcé de 30 % en masse de fibres de verre courtes	159

LISTE DES FIGURES

Figure I.1 Régimes de concentration en fonction de la fraction volumique et du rapport de forme des fibres pour un état d'orientation aléatoire ; Δ : suspension concentrée étudiée par la suite [3]	5
Figure I.2 Orbite de Jeffery en cisaillement simple en deux dimensions ($\dot{\gamma} = 1\text{s}^{-1}$). Un angle de zéro degré correspond à l'alignement de la fibre dans la direction de l'écoulement. Réalisé sous Matlab selon les travaux de Akbar et Altan [55].....	25
Figure I.3 Fonction de distribution en deux dimensions pour un état d'orientation initial des fibres isotrope et une diffusivité nulle : (a) cisaillement simple; (b) élongation plane. Un angle de zéro degré correspond à l'alignement des fibres dans la direction de l'écoulement. Réalisé avec le logiciel Matlab selon les travaux de Altan et <i>al.</i> [62].....	27
Figure I.4 Composantes non nulles du tenseur d'orientation d'ordre 2 pour un état d'orientation initial des fibres isotrope et une diffusivité nulle. a : cisaillement simple; b : élongation plane. Réalisé avec le logiciel Matlab selon les travaux de Altan et <i>al.</i> [62].....	30
Figure II.1 Distribution de longueur des fibres de verre contenues dans le PP10.....	36
Figure II.2 Distribution de longueur des fibres de verre contenues dans le PP30.....	36
Figure II.3 Balayage en déformation du polypropylène pour différentes pulsations (CSM) ; $T = 200^\circ\text{C}$	43
Figure II.4 Balayage en déformation à 0.628 rad/s du polypropylène pour différentes concentrations massiques de fibres (CSM) ; $T = 200^\circ\text{C}$	44
Figure II.5 Balayage en déformation à 0.628 rad/s pour le polypropylène renforcé de 30 % en masse de fibres ; $T = 200^\circ\text{C}$	44
Figure II.6 Viscosité complexe en fonction de la pulsation pour le polypropylène renforcé de 30 % en masse de fibres pour différentes déformations imposées (AR 2000) ; $T = 200^\circ\text{C}$	46

Figure II.7 Balayages en fréquence à une déformation de 0.005 qui ont succédé chaque balayage en fréquence de figure II.6 (SR 5000) ; $T = 200^\circ\text{C}$	46
Figure II.8 Courbe maîtresse du polypropylène à 200°C (AR 2000)	48
Figure II.9 Évolution du facteur de glissement en fonction de la température	48
Figure II.10 Influence de la présence de fibres sur l'angle de déphasage du polypropylène ; $T = 200^\circ\text{C}$	49
Figure II.11 Influence de la concentration massique de fibres sur la viscosité complexe du polypropylène chargé ; $T = 200^\circ\text{C}$	49
Figure II.12 Influence de la concentration massique de fibres sur les modules dynamiques du polypropylène chargé ; $T = 200^\circ\text{C}$	51
Figure II.13 Influence d'un précisaillement jusqu'à l'équilibre (Figure II.22) sur la viscosité complexe du polypropylène chargé de 30 % en masse de fibres ; $T = 200^\circ\text{C}$	51
Figure II.14 Influence de l'orientation des fibres sur les modules dynamiques du polypropylène chargé de 30 % en masse de fibres (SR 5000) ; $T = 200^\circ\text{C}$	52
Figure II.15 Viscosité relative du polypropylène pour différentes concentrations massiques de fibres ; $T = 200^\circ\text{C}$	52
Figure II.16 Influence de la hauteur de l'entrefer lors d'un balayage en taux de cisaillement pour le polypropylène (AR 2000) ; $T = 200^\circ\text{C}$	56
Figure II.17 Balayage en taux de déformation pour le polypropylène renforcé de 30 % en masse précisailé à 500 et à 1000 Pa (AR 2000) ; Hauteur de l'entrefer : 1240 μm , $T = 200^\circ\text{C}$, $c_f = 1$ (34)	56
Figure II.18 Balayage en taux de cisaillement pour le polypropylène renforcé de 30 % en masse de fibres (AR 2000) ; $T = 200^\circ\text{C}$, $c_f = 1$ (34)	57
Figure II.19 Balayage en contrainte de 80 à 900 et de 900 à 80 Pa pour le polypropylène renforcé de 30 % de fibres (AR 2000) ; $T = 200^\circ\text{C}$, $c_f = 1$ (34)	57
Figure II.20 Viscosité corrigée du polypropylène à 200°C pour différentes concentrations massiques de fibres (AR 2000) ; Hauteur de l'entrefer : 1240 μm , $T = 200^\circ\text{C}$	59

Figure II.21 Coefficients des contraintes normales primaires du polypropylène à 200°C pour différentes concentrations massiques de fibres (AR 2000) ; Hauteur de l'entrefer : 1240 µm, $T = 200^\circ\text{C}$	59
Figure II.22 Influence de la concentration massique de fibres pour un essai de fluage à 1000 Pa (SR 5000) ; Échantillons non précisailles, $T = 200^\circ\text{C}$	62
Figure II.23 Essai de fluage à 1000 Pa précédé d'un même essai dans le sens inverse de rotation (SR 5000) ; $T = 200^\circ\text{C}$	62
Figure II.24 Diagramme de Bagley du polypropylène à 200°C (Rhéomètre capillaire)	65
Figure II.25 Diagramme de Bagley du polypropylène chargé de fibres à 30 % en masse de fibres à 200°C (Rhéomètre capillaire)	65
Figure II.26 Contrainte apparente en fonction du taux de cisaillement pour le polypropylène avec et sans fibres à 200 °C (Rhéomètre capillaire)	67
Figure II.27 Viscosité corrigée réelle en fonction de la vitesse de cisaillement pour le polypropylène seul et renforcé de 30 % en masse de fibres à 200 °C (Rhéomètre capillaire)	67
Figure II.28 Schéma du rhéomètre en ligne	70
Figure II.29 Signaux des capteurs de pression en fonction du temps pour le polypropylène renforcé de 30 % en masse de fibres à 200°C (Rhéomètre en ligne)	72
Figure II.30 Profils de température in situ pour une vitesse d'injection de 0.2 mm/s (Rhéomètre en ligne)	72
Figure II.31 Profils de température in situ pour une vitesse d'injection de 104 mm/s (Rhéomètre en ligne)	73
Figure II.32 Influence de la concentration massique de fibres sur la viscosité en cisaillement du polypropylène à 200°C (Rhéomètre en ligne)	75
Figure II.33 Profils de pression dans la filière plate pour le polypropylène à 200°C (Rhéomètre en ligne)	75
Figure II.34 Courbe maîtresse de viscosité pour le polypropylène à 200°C (Rhéomètre en ligne)	77

Figure II.35 Courbe maîtresse de viscosité pour le polypropylène renforcé de 30 % de fibres à 200°C (Rhéomètre en ligne)	77
Figure II.36 Viscosité du polypropylène mesurée pour deux épaisseurs différentes de la fente rectangulaire (Rhéomètre en ligne) ; $T = 200^\circ\text{C}$	79
Figure II.37 Viscosité du polypropylène renforcé de 10 % en masse de fibres mesurée pour deux épaisseurs différentes de la fente rectangulaire (Rhéomètre en ligne) ; $T = 200^\circ\text{C}$	79
Figure II.38 Coefficients de correction visqueux et des contraintes normales pour le polypropylène (Rhéomètre en ligne) ; $T = 200^\circ\text{C}$	82
Figure II.39 Première différence des contraintes normales pour le polypropylène non renforcé (○) et renforcé de 30 % en masse de fibres (▲) (Rhéomètre en ligne & AR2000)	82
Figure II.40 Vue longitudinale à l'entrée de la fente rectangulaire pour le polypropylène renforcé de 30 % en masse de fibres de verre suite à une injection à 110 mm/s.....	84
Figure II.41 Vue longitudinale à la sortie de la fente rectangulaire pour le polypropylène renforcé de 30 % en masse de fibres de verre suite à une injection à 110 mm/s.....	84
Figure II.42 Vue transversale à l'entrée de la fente rectangulaire pour le polypropylène renforcé de 30 % en masse de fibres de verre suite à une injection à 110 mm/s.....	85
Figure II.43 Vue transversale en sortie de la fente rectangulaire pour le polypropylène renforcé de 30 % en masse de fibres de verre suite à une injection à 110 mm/s.....	85
Figure II.44 Courbe d'écoulement du polypropylène à 200°C; Règle de Cox-Merz.....	88
Figure II.45 Courbe d'écoulement du polypropylène renforcé de 10 % en masse de fibres de verre courtes à 200°C; Règle de Cox-Merz	88
Figure II.46 Courbe d'écoulement du polypropylène renforcé de 30 % en masse de fibres de verre courtes à 200°C; Règle de Cox-Merz	89
Figure II.47 Récapitulatif des coefficients des contraintes normales primaires pour le polypropylène ; $T = 200^\circ\text{C}$	91

Figure II.48 Récapitulatif des coefficients des contraintes normales primaires pour le polypropylène renforcé de 30 % en masse de fibres ; $T = 200^\circ\text{C}$	91
Figure III.1 Profil de deux convergents aux temps de résidence identiques pour un même taux d'élongation tel qu'utilisé pour cette étude	96
Figure III.2 Profil de deux convergents aux temps de résidence différents pour un même taux d'élongation tel qu'utilisé par Park et <i>al.</i> [81].....	96
Figure III.3 Lignes de niveau du taux d'élongation adimensionnel selon Binding pour un convergent planaire rectangulaire ; $n=0.2$	100
Figure III.4 Lignes de niveau du taux d'élongation adimensionnel selon Binding pour un convergent planaire hyperbolique ; $n=0.2$	100
Figure III.5 Pertes de charge calculées analytiquement en deux dimensions (52) et avec POLY3D™ en trois dimensions dans le convergent "b" en fonction du taux d'élongation pour le polypropylène.....	104
Figure III.6 Vue transversale à la sortie du convergent a pour le polypropylène renforcé de 30 % en masse de fibres de verre suite à une injection à 130 mm/s ($\dot{\varepsilon} = 75\text{s}^{-1}$)	105
Figure III.7 Comparaison des méthodes de Binding et Cogswell appliquées au polypropylène pour le convergent a (Rhéomètre en ligne) ; $T = 200^\circ\text{C}$	107
Figure III.8 Viscosité élongationnelle du polypropylène estimée avec le convergent a et le convergent b (Rhéomètre en ligne) ; Analyse de Cogswell, $T = 200^\circ\text{C}$	109
Figure III.9 Viscosité élongationnelle du polypropylène renforcé de 30 % en masse de fibres estimée avec le convergent a et le convergent b (Rhéomètre en ligne) ; Analyse de Cogswell, $T = 200^\circ\text{C}$	109
Figure III.10 Viscosité élongationnelle du polypropylène pour différentes concentrations massiques de fibres (Rhéomètre en ligne) ; convergent a, $T = 200^\circ\text{C}$	113
Figure III.11 Viscosité élongationnelle relative du polypropylène pour différentes concentrations massiques de fibres (Rhéomètre en ligne) ; $T = 200^\circ\text{C}$	113
Figure III.12 Viscosité élongationnelle du polypropylène renforcé de 30 % en masse de fibres pour différentes températures (Rhéomètre en ligne) ; convergent a	114

Figure III.13 Courbe maîtresse en élongation du polypropylène renforcé de 30 % en masse de fibres (Rhéomètre en ligne) ; convergent <i>a</i> , $T_{référence} = 200^{\circ}\text{C}$	114
Figure IV.1 Profils de pression dans la filière plate pour le polypropylène à 180°C	153
Figure IV.2 Profils de pression dans la filière plate pour le polypropylène à 220°C	153
Figure IV.3 Profils de pression dans la filière plate pour le polypropylène renforcé de 10 % en masse de fibres de verre courtes à 200°C	154
Figure IV.4 Profils de pression dans la filière plate pour le polypropylène renforcé de 30 % en masse de fibres de verre courtes à 180°C	154
Figure IV.5 Profils de pression dans la filière plate pour le polypropylène renforcé de 30 % en masse de fibres de verre courtes à 200°C	155
Figure IV.6 Profils de pression dans la filière plate pour le polypropylène renforcé de 30 % en masse de fibres de verre courtes à 220°C	155
Figure IV.7 Courbe d'écoulement du polypropylène à 200°C	156
Figure IV.8 Courbe d'écoulement du polypropylène renforcé de 30 % en masse de fibres de verre courtes à 200°C	156
Figure IV.9 Temps de convergence en fonction du taux d'élongation dans les convergents <i>a</i> et <i>b</i>	161

LISTE DES SYMBOLES

$\underline{\underline{a}}_2, \underline{\underline{a}}_4$	Tenseurs d'orientation des fibres d'ordre 2 et 4 (-)
a_T	Facteur de glissement pour l'application du principe temps température (-)
C_I	Coefficient d'interaction (-)
c_1, c_2	Facteurs de correction en rhéométrie rotationnelle (-)
D	Diamètre des fibres ou des capillaires (m)
D_r	Coefficient de diffusion en rotation (-)
\dot{E}	Énergie totale dissipée dans un convergent (N.m/s)
F	Force s'appliquant sur les plateaux en rhéométrie rotationnelle (N)
G'	Module de conservation (Pa)
G''	Module de dissipation visqueuse (Pa)
H	Épaisseur de la filière plate (m)
h	Épaisseur des convergents (m)
h_0	Hauteur initiale du convergent (m)
h_f	Hauteur finale du convergent (m)
$II_{\dot{\gamma}}$	Second invariant du tenseur de vitesse de déformation (s^{-2})
j_b	Flux rotationnel du mouvement Brownien (-)
j_h	Convection hydrodynamique (-)

k	Indice de consistance pour la viscosité en cisaillement ou la première différence de contrainte normale (Pa.s ⁿ)
l	Longueur des fibres (m) ou indice de consistance pour la viscosité élongationnelle (Pa.s ⁿ)
L	Longueur d'écoulement (m)
L _n	Longueur moyenne en nombre (m)
L _w	Longueur moyenne en masse (m)
n	Indice de comportement pour la viscosité en cisaillement ou la première différence de contrainte normale(-)
N	Nombre de fibres (-)
N ₁	Première différence des contraintes normales (Pa)
N ₂	Seconde différence des contraintes normales (Pa)
m	Indice de consistance (Pa.s ⁿ)
<u>p</u>	Vecteur unitaire dans la direction de l'axe de la particule (-)
P	Pression (Pa)
$\langle p \rangle$	Pression moyenne sur la surface d'écoulement (Pa)
ΔP	Perte de charge (Pa)
ΔP_e	Perte de charge liée à l'élongation (Pa)
ΔP_s	Perte de charge liée au cisaillement (Pa)
Q	Débit (m ³ /s)
r	Rapport de forme des fibres (-)

R	Rayon du capillaire ou rayon des plateau en rhéométrie rotationnelle (m)
t	Indice de comportement pour la viscosité élongationnelle (-)
T	Température (°C) ou couple (N.m)
T_R	Rapport de Trouton (-)
v	champ de vitesse ou vitesse angulaire en rhéométrie rotationnelle (m/s ; rad/s)
$\langle v \rangle$	Vitesse moyenne sur la surface d'écoulement (m/s)
v_m	Volume de la fibre m (m^3)
v_x, v_y, v_z	Composantes du profil de vitesse (m/s)
V	Volume (m^3)
w	Largeur de l'écoulement (m)
x, y, z	Composantes en coordonnées rectangulaire (m)

Lettres grecques

γ	Déformation en cisaillement (-)
$\dot{\gamma}$	Taux de cisaillement (s^{-1})
$\underline{\underline{\dot{\gamma}}}$ ou $\dot{\gamma}_{ij}$	Tenseur de vitesse de déformation (s^{-1})
$\dot{\gamma}_a$	Taux de cisaillement apparent à la paroi (s^{-1})
δ	Angle de déphasage (-)
ε	Déformation élongationnelle (-)

$\dot{\varepsilon}$	Taux d'élongation (s^{-1})
$\langle \dot{\varepsilon} \rangle$	Taux d'élongation moyen sur la surface d'écoulement (s^{-1})
η	Viscosité en cisaillement permanent (Pa.s)
η_m	Viscosité de la matrice (Pa.s)
η^*	Viscosité complexe (Pa.s)
η'	Viscosité dynamique (Pa.s)
η''	Rigidité dynamique (Pa.s)
η_e	Viscosité élongationnelle (Pa.s)
η_{er}	Viscosité élongationnelle relative (-)
η_∞	Viscosité limite (Pa.s)
η_r	Viscosité en cisaillement relative (-)
η_s	Viscosité en cisaillement (Pa.s)
θ	Angle polaire pour la description de l'orientation des fibres (-)
λ	Temps caractéristique (s)
μ	Viscosité newtonienne (Pa.s)
σ	Contrainte (Pa)
$[\sigma]$	Contrainte intrinsèque (-)
$\langle \sigma \rangle$	Champ de contrainte homogène macroscopique (Pa)
σ_0	Contrainte pour une fraction volumique de fibres nulle (Pa)

σ^p	Contribution des fibres au champ de contrainte (Pa)
σ_r	Contrainte relative
$\langle \tau \rangle$	Contrainte moyenne sur la surface d'écoulement (Pa)
τ_w	Contrainte à la paroi (Pa)
ϕ	Angle azimutale pour la description de l'orientation des fibres (-)
ϕ_v	Fraction volumique de fibres (-)
ϕ_m	Fraction massique de fibres (-)
Ψ	Fonction de distribution d'orientation des fibres (-)
Ψ_1	Coefficient des contraintes normales primaires (Pa.s ²)
$\underline{\underline{\Omega}}$ ou Ω_{ij}	Tenseur de vitesse de rotation (s ⁻¹)
ω	Fréquence de la pulsation (s ⁻¹)

LISTE DES ANNEXES

ANNEXE I :	Forces mesurées en rhéométrie capillaire.....	145
ANNEXE II :	Pertes de charge dans la filière plate.....	147
ANNEXE III :	Profils de pression dans la filière plate.....	153
ANNEXE IV :	Viscosité en cisaillement aux taux de cisaillement élevés.....	156
ANNEXE V :	Pertes de charge dans les convergents.....	157
ANNEXE VI :	Temps de résidence dans les convergents.....	161
ANNEXE VII :	Modèle de Batchelor et distribution de taille des fibres.....	162

INTRODUCTION

Les thermoplastiques renforcés de fibres de verre courtes sont devenus une classe de matériaux utilisée couramment dans l'industrie. La présence de fibres améliore considérablement leurs propriétés mécaniques et permet ainsi d'obtenir des matériaux compétitifs au regard du rapport entre leur résistance et leur poids. De plus, les techniques habituelles, telles que l'extrusion, le thermoformage, l'injection et l'injection soufflage s'appliquent à cette classe de matériaux.

Ces techniques impliquent des écoulements complexes dont la conception rationnelle des équipements qui les engendrent, comme les unités de plastification, les filières et les moules, requiert une connaissance suffisante du comportement de ces suspensions aux conditions de mise en forme. Une description précise de leur comportement rhéologique est également indispensable pour prédire les propriétés mécaniques du produit final. Ces propriétés dépendent en effet principalement de l'état d'orientation des fibres qui est quant à lui déterminé par les écoulements engendrés lors de la mise en forme.

Les propriétés rhéologiques des suspensions de fibres sont fonctions, entre autre, du comportement rhéologique de la matrice, de la longueur des fibres, de leur rigidité, de leur fraction volumique ainsi que de leur orientation. Les données rhéologiques portant sur les systèmes renforcés de fibres sont peu étendues et le plus souvent discutables. Les interactions fibres-parois, la migration des fibres, leur agglomération ainsi que leur dégradation mécanique lors de l'écoulement permettent difficilement d'obtenir des

résultats fiables et reproductibles. À cela s'ajoute l'orientation des fibres qui en s'adaptant à l'écoulement modifie les propriétés rhéologiques du fluide.

Suite à une revue de la littérature, à partir de laquelle les objectifs de ce travail sont clairement établis, le comportement rhéologique en cisaillement et en elongation d'un polypropylène renforcé de fibres de verre courtes est présenté. Plusieurs techniques de mesure ont été mises à l'épreuve afin de couvrir la plus grande plage de taux de déformation possible. La comparaison de leurs résultats permettra ainsi d'évaluer leur objectivité.

CHAPITRE I : REVUE DE LA LITTÉRATURE

I.1 Propriétés rhéologiques des suspensions de fibres courtes

I.1.1 Régimes de concentration

Les suspensions de fibres se caractérisent par une structure interne définie par l'état d'orientation et de distribution de leurs fibres. La mobilité de chaque fibre au sein de cette structure dépend du régime de concentration auquel appartient la suspension. On en distingue trois qui sont définis selon la fraction volumique de fibres, ϕ_v , et le rapport de forme des particules, r , comme suit [1] :

le régime dilué :

$$\phi_v r^2 \ll 1 \quad (1)$$

le régime semi-dilué ou semi-concentré :

$$r^{-2} \ll \phi_v \ll r^{-1} \quad (2)$$

pour une orientation aléatoire des fibres,

$$r^{-2} \ll \phi_v \ll 1 \quad (3)$$

pour une orientation unidirectionnelle des fibres,

le régime concentré :

$$\phi_v r \gg 1 \quad (4)$$

Les interactions entre les fibres sont négligeables pour le régime dilué alors qu'elles suffisent à restreindre leur rotation pour le régime semi-dilué. À partir de ce régime de concentration, la dispersion d'orientation des fibres diminue avec leur concentration. Finalement, pour le régime concentré, les fibres ne peuvent plus s'orienter individuellement. Les interactions multi-particulaires sont telles qu'elles s'orientent d'une manière coopérative pour permettre à la microstructure de s'adapter à l'écoulement [2].

La fraction volumique et le rapport de forme des fibres ne sont pas les seuls facteurs qui influencent la formation de la microstructure. La forme, la flexibilité et la polydispersité de taille des fibres ainsi que la présence de parois jouent également un rôle non négligeable.

Les données rhéologiques rapportées par la suite s'attachent à décrire le comportement rhéologique des suspensions des fibres courtes pour les deux derniers régimes de concentration. Ce sont ces deux régimes de concentration et tout particulièrement le dernier qui sont rencontrés dans l'industrie des matériaux composites (Figure I.1)

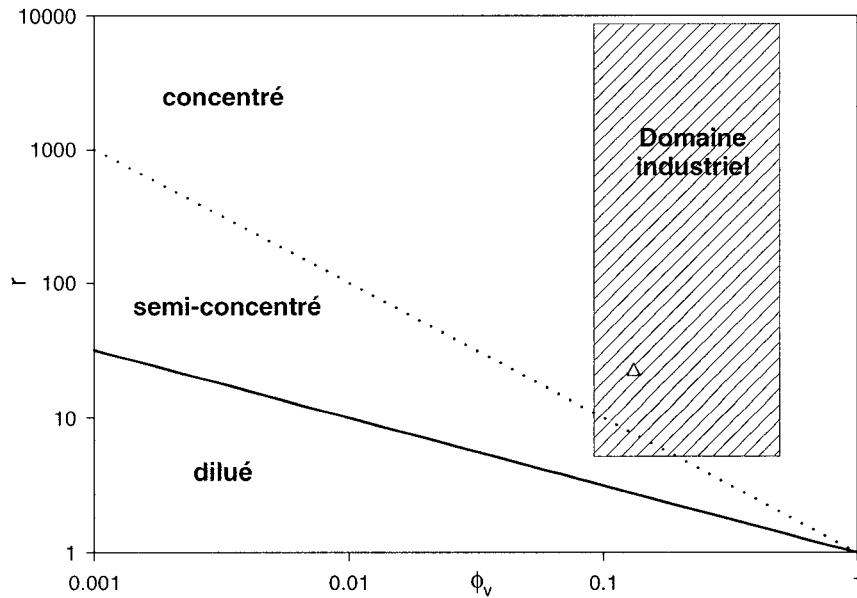


Figure I.1 Régimes de concentration en fonction de la fraction volumique et du rapport de forme des fibres pour un état d'orientation aléatoire ; Δ : suspension concentrée étudiée par la suite [3]

I.1.2 Influence des parois de l'instrument de mesure

Les rhéomètres conventionnels permettent difficilement de caractériser précisément les propriétés des suspensions de fibres. En présence de fibres de longueur importante, il est en effet presque impossible d'éliminer les artéfacts dus aux parois de l'instrument de mesure. Les données ainsi prélevées dépendent alors essentiellement de la géométrie du rhéomètre et ne révèlent pas les propriétés intrinsèques du matériau. Le rapport entre la largeur caractéristique de l'écoulement associée à l'instrument de mesure et la taille des fibres est donc particulièrement critique. Il doit être suffisamment important pour que les effets induits par les parois de l'instrument soient négligeables. Le régime de

concentration de la suspension et l'état d'orientation de ses fibres sont deux facteurs qui l'affectent directement.

Des études numériques ont montré que ce rapport doit être supérieur à trois pour que l'erreur sur l'orbite de Jeffery soit inférieure à 10 %, pour une fibre ayant un rapport de forme égal à 10. L'orbite de Jeffery décrit le mouvement des fibres d'une suspension diluée soumise à un écoulement en cisaillement (I.2.2.1). Ce résultat numérique est confirmé indirectement par Attanasio et *al.* [4] qui comparent la viscosité, η , d'une suspension diluée mesurée avec un rhéomètre capillaire et un rhéomètre couette. Ils trouvent que les viscosités données par les deux appareils sont équivalentes lorsque les rapports entre le diamètre ou la hauteur de l'entrefer de l'instrument de mesure et la taille des fibres sont supérieurs à trois. Une conclusion identique est apportée par Blakeney [5] pour une suspension semi-concentrée. Il obtient des résultats similaires en utilisant des rapports entre la distance séparant les deux parois d'un rhéomètre couette et la longueur des fibres de 2.8 et de 26.1. L'utilisation d'un rapport égal à trois, tout comme pour le régime dilué, permet alors de mesurer la viscosité sans effets de parois détectables mais ne correspond peut être pas au rapport critique.

Pour une suspension semi-concentrée composée d'un fluide newtonien, Bibbo et *al.* [6] déterminent le rapport critique à utiliser avec un rhéomètre à géométrie plan-plan. Ils mesurent pour cela la viscosité lors d'essais transitoires pour différentes hauteurs d'entrefer. Leurs résultats permettent de conclure que les effets de parois deviennent minimes pour une hauteur d'entrefer légèrement supérieure à la longueur des fibres.

Au regard des résultats obtenus avec la technique de la bille tombante, Milliken et *al.* [7] préconisent quant à eux d'utiliser un rapport au moins supérieur à trois. Leurs données sont en effet restées insensibles jusqu'à ce rapport critique pour des fibres de rapport de forme égal à 20 (suspensions diluées et semi-concentrées) ; alors qu'une diminution de la viscosité de près de 24 % est calculée pour un rapport de 1.6. Ce rapport ne constitue pas pour autant une règle absolue. D'autres études avec des fibres de rapports de forme différents ont montré que la viscosité pouvait être modifiée de près de 50 % même pour un rapport de 3 [8].

Les auteurs cités par la suite respectent pour la plupart l'un ou l'autre de ces critères [9] [10] ou ils s'attachent à comparer les résultats donnés par deux techniques de mesure différentes, dont leur superposition tend à confirmer l'absence d'effets de parois [11] [12] [13].

I.1.3 Viscosité en cisaillement

I.1.3.1 A faible taux de cisaillement

i) *Régime permanent*

Goto et *al.* [9] utilisent un rhéomètre couette avec un entrefer de 4 mm pour étudier le comportement rhéologique d'une suspension composée de glycérine et de fibres de verre, de nylon ou de vynylon d'une longueur maximale de 4.2 mm ($r = [3 ; 429]$ et $l = [0.03 ; 4.2]$ mm). Ils ont ainsi observé que le rapport entre la viscosité de la suspension et du fluide qui la compose, est une fonction croissante du rapport de forme, de la

concentration et de la flexibilité des fibres et que leur influence décroît avec le taux de cisaillement. Les mêmes conclusions sont apportées pour des suspensions à matrices viscoélastiques mais les effets sont moins marqués. Les auteurs soutiennent également pour ces suspensions que leur comportement non-newtonien est plus important que celui de la matrice. Kitano et *al.* [14] ont également observé pour une huile de silicone renforcée de fibres de vynylon ($r = 45, 120, 112$ pour $l = 1.2, 3.2$ et 1.3 mm respectivement) une diminution de l'influence des fibres avec le taux de cisaillement. Ils ont montré que ce comportement est d'autant plus significatif que la concentration en fibres et leur rapport de forme sont importants. Les résultats de Ganani et Powell [13] sont en contradiction avec les dernières observations mais les taux de cisaillement approchés et le rapport de forme des fibres utilisés sont inférieurs à ceux rencontrés dans les deux études précédentes ($r = 7.6, 24.3$ pour $l = 84$ et 267 μm respectivement). Ces mêmes auteurs [15] regroupent les résultats de nombreuses études et confirment ainsi la forte dépendance du caractère rhéofluidifiant des suspensions à matrice newtonienne avec le rapport de forme des particules. Ils ne donnent par contre aucune information sur l'état d'orientation des fibres. L'influence décroissante de la présence des fibres en fonction du taux de cisaillement, pour les suspensions composées d'un fluide newtonien, doit en effet refléter un changement de l'état d'orientation de la microstructure lors de la mesure.

Pour les suspensions dont la matrice est viscoélastique, Ganani et Powell [13] notent également que l'influence des fibres s'atténue avec l'augmentation du taux de cisaillement. Greene et Wilkes [10] font la même observation avec un rhéomètre plan-

plan ainsi que Chan et *al.* [11], Czarnecki et *al.* [16] et Kitano et *al.* [12] pour des suspensions semi-concentrées et concentrées avec des rhéomètres cône-plan. Les auteurs remarquent également que la viscosité relative limite des suspensions à base d'un fluide non-newtonien est significativement plus importante que celle des suspensions contenant les mêmes particules dans un fluide newtonien. Les mêmes tendances que Goto et *al.* sont observées pour l'influence du rapport de forme des fibres [12], de leur concentration [10-12, 16] et de leur flexibilité [12] sur la viscosité des suspensions à base d'un fluide non-newtonien.

Finalement, l'impact de l'orientation des fibres a été évalué avec la technique de la sphère tombante. Elle consiste à laisser se déplacer une sphère à travers le fluide en question sous l'effet de la gravité. La vitesse terminale de la sphère est mesurée et utilisée pour calculer la viscosité de la suspension. La comparaison des données de Milliken et *al.* [7] avec ceux de Mondy et *al.* [17] montre que la viscosité d'une suspension de fibres est plus importante lorsque l'état d'orientation des ses fibres est initialement aléatoire que lorsqu'il est aligné selon la vitesse de la bille.

ii) Régime dynamique

Les polymères fondus chargés de particules solides exhibent un comportement viscoélastique non linéaire même lorsqu'ils sont sujets à des amplitudes de déformation de l'ordre de quelques pourcents (0.5 - 1%) [18]. Cela explique vraisemblablement pourquoi les données en régime dynamique (II.2.1.1) sont si peu étendues. Cependant, pour des échelles de temps importantes (i.e., faibles fréquences), ces suspensions

adoptent un comportement viscoélastique linéaire. Kitano et *al.* [19] explorent les propriétés viscoélastiques linéaires de suspensions concentrées de polyéthylène renforcées de fibres de verre ou de nylon ($r = [20 ; 120]$ pour $l = [0.26 ; 5.02]$ mm) avec un rhéomètre cône-plan. La viscosité en cisaillement et la différence des contraintes normales primaires de ces suspensions sont disponibles dans une de leurs études précédentes [12]. Ils choisissent une amplitude de déformation égale à 3.5 % pour l'ensemble des fréquences qui s'étendent de 10^{-2} à 10 s⁻¹ et préparent leurs échantillons par compression à chaud. L'augmentation de la fraction volumique de fibres entraîne une augmentation du module de stockage, G' , et du module de perte, G'' , qui s'atténue avec l'augmentation de la fréquence de sollicitation. Aux plus hautes fractions volumiques de fibres, le module de stockage présente un léger plateau intermédiaire. Les auteurs en déduisent qu'une structure peut être formée en régime dynamique et dans ce cas-ci lors des faibles fréquences. Ce comportement est également visible sur les résultats de Greene et *al.* [10] pour leurs suspensions composées de polypropylène ou de nylon-66 renforcées de fibres de verre ($r = 40$ pour $l = 400$ μm). Le tracé de la viscosité en cisaillement permanent et de la viscosité complexe, η^* , en fonction du taux de cisaillement, $\dot{\gamma}$, et de la fréquence, ω , montre que le principe de Cox-Merz (II.3) ne s'applique pas à leurs suspensions. Selon les auteurs, cette différence traduit bien la formation d'une structure à faible fréquence qui est différente de celle induite par un écoulement de cisaillement permanent. La viscosité complexe est influencée par la dimension des fibres. Cette influence, tout comme pour la fraction volumique, diminue lorsque la fréquence

angulaire augmente. Les auteurs expliquent cette dépendance face à la fréquence par l'évolution de la microstructure formée aux faibles fréquences.

Ganani et Powell [13] n'observent pas ce phénomène pour une suspension à base d'une matrice newtonienne contenant des fibres de verre ($r = 7.6, 24.3$ pour $l = 84$ et $267 \mu\text{m}$ respectivement). La partie réelle de la viscosité complexe est en effet constante sur la plage des taux de cisaillement approchés et elle s'accorde avec la viscosité en cisaillement mesurée en régime permanent. Le module élastique reste quant à lui insignifiant. Pour des suspensions composées d'une solution non-newtonienne à base de polyisobutylène et de fibres de verre courtes à différentes fractions volumiques, les mêmes auteurs atteignent, à la différence de Kitano et *al.*, leur plateau newtonien. L'amplitude de ce plateau ne dépend que de la fraction volumique de fibres alors que pour la région rhéofluidifiante, la fréquence vient s'ajouter à la fraction volumique de fibres tout comme l'avait précisé Kitano et *al.*.

Finalement, Kitano et *al.* déterminent le coefficient des contraintes normales primaires à partir de l'équation proposée par Roscoe [20] ((5) ;modèle de Maxwell) qui est voisin de celui donné plus tard par Laun [21] (II.3).

$$\Psi_1 = \frac{N}{\dot{\gamma}^2} = \frac{2G}{\omega^2} \text{ avec } \dot{\gamma} = \omega \quad (5)$$

Selon leurs résultats, cette relation ne peut être utilisée pour les systèmes chargés, excepté pour des faibles fractions volumiques et vitesses de déformation.

Récemment, Kim et Song [22] mettent en évidence l'influence de l'amplitude de déformation, de la fréquence d'oscillation et du temps d'une préoscillation sur la viscosité complexe d'une suspension de polystyrène ($r = 54$ pour $l = 700 \mu\text{m}$). Ils associent dans leur analyse les données obtenues avec un rhéomètre plan-plan, pour différents balayages en fréquence successifs, avec l'observation par microscopie optique de l'orientation des fibres. Cela leur permet de conclure que ces paramètres ont pour effet de diminuer la viscosité complexe en raison de l'orientation des fibres qu'ils induisent. Les travaux de Harlen et Koch [23] appuient les conclusions de Kim et Song. Ils considèrent l'écoulement oscillatoire de faible amplitude en cisaillement d'une fibre dans une matrice viscoélastique. La simulation de cet écoulement en utilisant l'équation constitutive d'Oldroyd B, révèle, pour une amplitude de déformation égale à 0.01 et quelques milliers de cycles, l'existence d'un alignement progressif des fibres dans la direction de l'écoulement. Les mesures en régime dynamique impliquant un nombre de cycles moindre ne seront donc pas affectées. Cependant, comme cette orientation est proportionnelle au carré de l'amplitude de déformation, elle devrait être observable expérimentalement pour des amplitudes de déformation importantes. Le cas considéré s'apparente au régime de concentration dilué où les interactions entre les fibres sont inexistantes. Leur résultat ne s'applique donc pas directement aux résultats de Kim et *al.*, qui utilisent des suspensions concentrées. Petrich et *al.* [24] donnent directement suite aux travaux de Harlen et Koch [25] en visualisant l'évolution de l'orientation de fibres isolées dans un fluide de Boger soumises à un écoulement oscillatoire en cisaillement. La

théorie prédit correctement l'ordre de grandeur de l'orientation des fibres mesuré expérimentalement.

iii) Régime transitoire

Laun [26] a montré qu'une suspension de fibres de verre exhibe un pic de viscosité précédent la viscosité stationnaire lors d'un démarrage à vitesse imposée. Ce pic de viscosité représente indirectement l'évolution de l'état d'orientation des fibres. Il est en effet imperceptible aux faibles taux de cisaillement pour un polymère non renforcé, pour un polymère chargé de bille de verre et pour un polymère chargé de fibres suffisamment précisailé. Il dépend également fortement du rapport de forme des particules en suspension.

Bibbo et *al.* [6] montrent que la viscosité transitoire est une fonction de la déformation et non du temps et de la vitesse de cisaillement séparément. Ils utilisent une suspension semi-concentrée de fibres rigides en suspension dans une matrice newtonienne. Ganani et Powell [13] observent également, pour un système similaire, un pic de viscosité auquel s'ajoute un second pic dit de retour lors de l'application d'un second démarrage dans le sens opposé du premier. L'amplitude du premier pic de viscosité est selon Ausias et *al.* [27] fonction de la concentration de fibres. Le maximum de viscosité pour leurs suspensions de polypropylène chargées de 20% et de 30 % de fibres est respectivement 2.5 et 3.4 fois plus important que la viscosité en régime permanent. Dans le cas de leur suspension renforcée de 30% de fibres, la déformation nécessaire pour atteindre ce régime dépend de la contrainte appliquée. Les auteurs mettent en doute cette dernière

observation et l'attribue à la non homogénéité de l'état d'orientation initial des fibres contenues dans les échantillons utilisés.

Plus récemment, Ramazani et *al.* [28] ont étudié des solutions semi-concentrées et concentrées composées de fibres de verre en suspension dans un fluide de Boger. Tout comme Bibbo et *al.*, ils montrent que le pic de viscosité atteint son maximum à la même déformation quelque soit le taux de cisaillement appliqué. Ils observent également qu'un échantillon précisailé exposé une nouvelle fois au même taux de cisaillement atteint directement sa viscosité permanente sans exposer un pic de viscosité. Alors que ce pic est toujours visible si l'échantillon est précisailé jusqu'à l'équilibre une première fois à une vitesse supérieure ou inférieure à celle utilisée pour le second cisaillement. Ces résultats tendent à montrer que l'état d'orientation finale, induit par un cisaillement, dépend non seulement de la déformation mais aussi du taux de cisaillement. Finalement, les mêmes auteurs montrent que la déformation nécessaire pour atteindre le pic reste identique pour des fractions volumiques de fibres comprises entre 5 et 15 %, alors qu'elle augmente lorsque le rapport de forme des fibres augmente. Sepehr et *al.* [29] étudient également le comportement d'une suspension modèle de fibres courtes dans du polybutène. Ils apportent une conclusion identique sur la dépendance du pic de viscosité avec les antécédents en cisaillement de l'échantillon à laquelle ils ajoutent, pour leur suspension concentrée, l'observation d'un pseudo-plateau qui précède le plateau du régime établi. Ce plateau est visible lors d'un second démarrage dans le même sens que le premier démarrage ou dans le sens contraire ; il est de plus identique dans ces deux cas et absent

pour leur suspension semi-concentrée. Les auteurs justifient ce premier plateau par un comportement non-affine de la déformation. Cette conclusion tend à être validée par leurs observations *in situ* de l'évolution des fibres grâce à un rhéomètre équipé d'un microscope optique. Le mouvement des fibres pour leur suspension concentrée est en effet ralenti ou bloqué par les fibres voisines. Pour ces mêmes suspensions, l'amplitude du pic diminue avec la vitesse de cisaillement alors que pour leur suspension à plus faible concentration, la viscosité ne dépend que de la déformation comme l'avait précédemment observé Bibbo *et al.* [6].

I.1.3.2 A fort taux de cisaillement

Le comportement de ces suspensions aux plus hauts taux de cisaillement a été étudié grâce à des rhéomètres capillaires et à des rhéomètres filières plates. Tout comme pour les techniques citées précédemment, les interactions entre les fibres et les parois du rhéomètre peuvent être telles que la viscosité de la suspension mesurée dépend davantage de la géométrie d'écoulement que de ses propriétés intrinsèques. Maschmeyer et Hill [30] donnent la classification suivante des interactions entre les fibres et les parois de ces instruments de mesure. Ils distinguent l'exclusion mécanique, les interactions hydrodynamiques et les hétérogénéités de concentration. La première désigne le fait que le centre d'une particule ne peut s'approcher indéfiniment de la paroi. Les interactions hydrodynamiques proviennent du fait que le profil de vitesse autour d'une particule proche de la paroi est altéré par cette dernière [31]. Finalement, la migration radiale des fibres lors de l'écoulement et l'exclusion de certaines d'entre elles à l'entrée du capillaire

entraînent des hétérogénéités de concentration. Les auteurs observent clairement pour leur suspension concentrée l'exclusion d'entrée mais ne réussissent pas à mettre en évidence les autres phénomènes. La viscosité qu'ils mesurent dépend fortement de la distribution de taille des fibres. Barbosa et *al.* [32] s'intéressent à la viscosité et à la microstructure d'un polypropylène renforcé de fibres de verre courtes dans le régime semi-concentré. Ils utilisent un rhéomètre capillaire en ligne sur une extrudeuse. Le diamètre des capillaires utilisés est proche de la longueur moyenne des fibres. L'étude de la morphologie de l'extrudat leur a permis d'observer l'état de distribution des fibres et de mettre en évidence leur migration. Ils utilisent pour cela la microscopie à balayage électronique pour visualiser la surface transversale de l'extrudat obtenue par rupture fragile dans de l'azote. Ils observent que la concentration en fibres augmente du centre vers les parois et que cette disparité s'accroît avec la concentration en raison de la diminution de leur mobilité. Les auteurs ne reportent par contre aucune influence du taux de cisaillement. Du fait que l'écoulement dans un capillaire ne soit pas homogène, c'est-à-dire que le taux de cisaillement et par conséquent la déformation varient radialement, l'état d'orientation des fibres doit également être hétérogène radialement (en plus de l'être longitudinalement). Barbosa et *al.* constatent que l'alignement des fibres dans la direction de l'écoulement augmente lorsque l'on s'éloigne du centre de l'écoulement et qu'elle diminue avec la concentration en fibres et augmente avec le débit. Cette dernière remarque rejoue les observations effectuées par Crowson et *al.* [33]. Ils utilisent la microradiographie pour observer les coupes transversales d'extrudats ou d'échantillons

directement issus d'un rhéomètre capillaire de 2 mm de diamètre. Un polypropylène renforcé de 20 % en masse de fibres de verre est ainsi caractérisé ($r = 50$ et $l = 500 \mu\text{m}$). De ces microradiographies, les auteurs concluent que l'alignement des fibres suivant l'écoulement augmente avec le débit mais diminue suivant la longueur du capillaire. La zone de convergence en amont du capillaire à pour effet d'aligner fortement les fibres selon la direction de l'écoulement tandis qu'un écoulement divergent les aligne transversalement à l'écoulement.

De nombreux auteurs comme Chan et *al.* [11], Kitano et *al.* [12], Barbosa et *al.* [32] notent qu'en présence de fibres la viscosité des polymères fondus augmente. Cette augmentation est marquée aux faibles taux de cisaillement mais tend à disparaître aux hauts taux de cisaillement, comme l'ont rapporté les auteurs précédents avec des rhéomètres rotatifs. Ce comportement peut être expliqué par une évolution de la microstructure avec l'augmentation du taux de cisaillement. Maschmeyer et Hill [34] expliquent quant à eux ce caractère rhéofluidifiant plus prononcé en présence de fibres par un mécanisme selon lequel le taux de cisaillement effectif s'appliquant sur la matrice est augmenté en présence de fibres ; ceci causerait alors une réduction de la viscosité de la matrice. La même explication est aussi utilisée par Charrier et Rieger [35] pour justifier la faible dépendance de la viscosité de leur polypropylène avec la concentration en fibres de verre. Ces auteurs observent également la présence d'une couche libre de fibres à la paroi de leurs capillaires et associent ce phénomène à l'explication précédente. Les mécanismes de dilution et de migration des fibres ont été clairement illustrés par

Thomasset et *al.* [36] par simulation directe d'une population d'une centaine de fibres.

Les interactions entre les fibres, les fibres et les parois ainsi que les fibres et le fluide ont pour cela été considérées.

Finalement, pour un même chargement en fibres, la viscosité relative est selon les résultats de Maschemeyer [34] identique pour des suspensions dont la viscosité de la matrice est différente.

I.1.4 Première différence des contraintes normales

De nombreux auteurs ont observé une première différence de contrainte normale, N_l , non nulle en cisaillement permanent pour des suspensions non diluées à base d'un fluide newtonien. Kitano et Kataoka [14] mesurent une première différence des contraintes normales pour des suspensions semi-concentrées et concentrées d'huile de silicone ($\eta = 100$ Pa.s) et de fibres de vinylon ($r = 45.3, 112.5$ et 120.1 pour $l = 1.22, 3.23$ et 1.28 mm respectivement). Ils utilisent un rhéomètre cône-plan de 4 cm de rayon et d'angle de 4° dont la pointe est tronquée de 175 μm . Les résultats obtenus montrent que N_l augmente avec la fraction volumique de fibres, leur rapport de forme et le taux de cisaillement. Tout comme pour la viscosité en cisaillement, l'influence des fibres s'estompent lorsque le taux de cisaillement augmente. Goto et *al.* [9] observent les mêmes tendances, auxquelles ils ajoutent la flexibilité des fibres, pour des suspensions à base de glycérine et de fibres de verre, de nylon de vinylon et de carbone ($r = [3 ; 429]$ et $l = [0.03 ; 3]$ mm). La hauteur de l'entrefer de leur rhéomètre plan-plan avec un disque de 7.8 cm était maintenue entre 2 et 3 mm. À la différence de Kitano et *al.*, ils ne mesurent pas de

première différence des contraintes normales pour les suspensions dont leurs fibres ont un rapport de forme inférieur à 100 (et $l < 1\text{mm}$).

Zirnsak et *al.* [37] analyse les données de Hur [38]. Tous comme Kitano et Goto, ils mesurent pour leurs fluides newtoniens inélastiques renforcés de fibres une première différence des contraintes normales et son augmentation pour leurs fluides de Boger renforcés de fibres. Ils s'appuient sur le résultat expérimental selon lequel l'angle de déphasage entre la contrainte et la déformation en cisaillement oscillatoire n'est pas affecté par la présence de fibres pour expliquer ces mesures. Ce résultat leur permet de conclure que les contraintes normales mesurées ne reflètent pas le caractère élastique de ces suspensions mais qu'elles proviennent des interactions entre les fibres. Cette conclusion s'accorde avec une de leurs observations selon laquelle la première différence des contraintes normales diminue avec l'augmentation de la déformation totale. L'alignement des fibres qui en résulte a pour effet de diminuer leurs interactions et donc la première différence des contraintes normales. Chan et *al.* [11] énoncent la même conclusion, mais ils la justifie différemment. Pour soutenir cette idée, les auteurs rappellent le fait que les suspensions de fibres à base d'un fluide inélastique exhibent un effet Weissenberg important sans pour autant exhiber d'autres propriétés viscoélastiques. La diminution du gonflement en sortie de filière appuie également cette thèse [39]. Hur obtient de plus des résultats semblables à partir d'un rhéomètre cône-plan et d'un rhéomètre plan-plan. Ils étaient de plus indépendants de la hauteur de l'entrefer ($H = 2, 3$ et 5 mm et $l = 3\text{mm}$) dans le cas du rhéomètre plan-plan.

Les mêmes conclusions sont apportées par Chan et *al.* [11], Cznercki et *al.* [16] et Greene et Wilkes [10] pour des suspensions à base d'un polymère fondu. Elles ont été étendues à des taux de cisaillements supérieurs à 10 s^{-1} par Barbosa et *al.* [40] et Kitano et *al.* [40]. Ils ont utilisé respectivement la rhéométrie capillaire avec l'approximation de Hinch et Leal [41] et un rhéomètre à fente rectangulaire avec l'approximation de Forgacs et Mason [42] (41).

I.1.5 Viscosité élongationnelle

Mewis et Metzner [43] mesurent avec la technique du filage ($\dot{\epsilon} = [0.1 ; 10] \text{ s}^{-1}$), pour des suspensions de fibres de verre dans de l'Indopol (fluide newtonien ; $r = 282, 586$ et 1260 : $\phi_v = [0.1 ; 1] \text{ \%}$), des viscosités élongationnelles indépendantes du taux de déformation et jusqu'à 260 fois plus importantes que celle de l'Indopol seul. De la même façon, des rapports de Trouton (III.2.2.3), proches de 30 ont été rapportés par Weinberg et Goddard [44]. Leurs suspensions se composaient également d'Indopol et de fibres de verre ($r = 57$).

Le comportement élongationnel des polymères fondues renforcées de fibres courtes [11, 45, 46] a été étudié aux faibles taux d'élongation en utilisant les rhéomètres élongationnels développés par Ide et White [47] et par Münsted [48]. Ces appareils fonctionnent selon le principe d'un dynamomètre et travail à des taux d'élongation constant compris entre 10^{-3} et 10 s^{-1} . La viscosité élongationnelle, η_e , des polymères fondues, ainsi mesurée, s'est révélée être plus faible que celle mesurée en présence de fibres. Des viscosités élongationnelles relatives, définies comme le rapport entre la viscosité élongationnelle de

la suspension et du fluide qui la compose, comprises entre 1 et 20 ont été reportées selon la fraction volumique de fibres et le taux d'élongation. Elle diminue avec le taux d'élongation même si celle de la matrice reste constante sur le même intervalle de taux de déformation. Chan et *al.* [11] l'expliquent à partir des travaux de Goddard. [49, 50] Les taux de cisaillement associés avec l'écoulement entre deux fibres adjacentes sont beaucoup plus importants que le taux de cisaillement global. La viscosité est donc réduite. Des valeurs comprises entre 3 et 30 selon le taux de déformation ont été observées pour le rapport de Trouton par les précédents auteurs. De tels rapports de Trouton ne sont pas surprenant du fait qu'un écoulement élongationnel aligne les fibres selon la direction de la déformation et maximise ainsi la dissipation visqueuse alors qu'un écoulement de cisaillement les aligne de telle façon à minimiser la dissipation visqueuse [51].

I.2 Modélisation du comportement rhéologique des suspensions de fibres

Les études rhéométriques ont clairement montré que le comportement des suspensions de fibres courtes dépend de la fraction volumique de fibres, de leur rapport de forme mais aussi de leur orientation. Les lois de comportement de ces fluides vont donc devoir prendre en compte l'ensemble des ces paramètres. Elles se composent pour la plupart de la combinaison de deux types d'équations, d'une part une expression du champ de contrainte qui dépend de la distribution d'orientation des fibres et d'autre part, une ou plusieurs équations donnant l'évolution de cette distribution d'orientation. Ces dernières équations sont présentées en premier lieu et sont suivies de la présentation succincte

d'une famille de lois de comportement dont certaines d'entre elles sont par la suite appliquées à nos matériaux.

I.2.1 Paramètres d'orientation

L'état d'orientation d'une fibre est le plus souvent décrit par un vecteur unitaire, $\underline{p}(\theta, \phi)$, orienté dans la direction de son axe de révolution.

Pour une population infinie de particules et ceci indépendamment de la concentration, Prager [52] a défini une fonction de distribution d'orientation, $\psi(\underline{p})$. Cette fonction représente la probabilité de trouver une fibre dans une orientation donnée. Une autre approche, pour définir la structure microscopique du fluide, consiste à définir le moment d'ordre 2, $\underline{\underline{a}}_2$, de la fonction de distribution ou son moment d'ordre 4, $\underline{\underline{\underline{a}}}_4$. [53] Le passage de la fonction de distribution à $\underline{\underline{a}}_4$, et surtout à $\underline{\underline{a}}_2$, constitue une perte d'information importante. En contrepartie, le tenseur d'ordre 2 peut être calculé beaucoup plus facilement. Ces entités sont communément nommées tenseur d'orientation ou de conformation. Ils représentent les moyennes spatiales du double et du quadruple produit tensoriel de \underline{p} . Pour un volume V contenant N fibres d'orientation p_k :

$$\underline{\underline{a}}_2 = \frac{1}{N} \sum_{k=1}^N \underline{p}_k \otimes \underline{p}_k \quad (6)$$

et

$$\underline{\underline{\underline{a}}}_4 = \frac{1}{N} \sum_{k=1}^N \underline{p}_k \otimes \underline{p}_k \otimes \underline{p}_k \otimes \underline{p}_k \quad (7)$$

Quand N tend vers l'infini, $\underline{\underline{a}}_2$ et $\underline{\underline{a}}_4$ se définissent alors en fonction de $\psi(\underline{p})$:

$$\underline{\underline{a}}_2 = \int_p \psi(\underline{p}) [\underline{p}_k \otimes \underline{p}_k] d\underline{p} \text{ soit } a_{ij} = \int_p \psi(\underline{p}) p_i p_j d\underline{p} \quad (8)$$

$$\underline{\underline{a}}_4 = \int_p \psi(\underline{p}) [\underline{p}_k \otimes \underline{p}_k \otimes \underline{p}_k \otimes \underline{p}_k] d\underline{p} \text{ soit } a_{ijkl} = \int_p \psi(\underline{p}) p_i p_j p_k p_l d\underline{p} \quad (9)$$

Bien que le tenseur d'ordre 2 semble très abstrait à première vue, ces composantes ont une interprétation physique qui est très similaire aux composantes du tenseur des contraintes. Dans la base orthonormée (x, y, z) , a_{xx} , a_{yy} et a_{zz} quantifient, respectivement l'alignement des fibres suivant x , y , z alors que les autres composantes quantifient la dissymétrie de la distribution d'orientation.

I.2.2 Équations d'évolution du paramètre d'orientation

I.2.2.1 Évolution de l'orientation d'une fibre : systèmes dilués

L'évolution de l'orientation d'un ellipsoïde fut résolue par Jeffery [54] en considérant les hypothèses suivantes :

- Le centre de l'ellipsoïde se déplace à la vitesse du fluide.
- L'écoulement est stationnaire.
- Les tenseurs des vitesses de déformation, $\underline{\dot{\epsilon}}$, et de rotation, $\underline{\underline{\Omega}}$, sont constants à une distance de la particule grande devant ses dimensions.
- Aucune interaction, avec un ellipsoïde voisin ou une paroi n'est envisageable.

- L'inertie du fluide et de la particule sont négligées ainsi que le mouvement Brownien.
- Le fluide est supposé newtonien.

La résolution des équations de Stokes suivies d'un bilan de moment sur le centre de gravité de la particule lui permet alors d'écrire le mouvement en rotation du vecteur \underline{p} :

$$\underline{\dot{p}} = \frac{D\underline{p}}{Dt} = \underline{\underline{\Omega}}\underline{p} + \lambda \left(\underline{\underline{\dot{\gamma}}} \underline{p} - \left(\underline{\underline{\dot{\gamma}}} : [\underline{p} \otimes \underline{p}] \right) \underline{p} \right) \quad \text{soit} \quad \dot{p}_i = \frac{Dp_i}{Dt} = \Omega_{ij} p_j + \lambda \left(\dot{\gamma}_{ij} p_j - \dot{\gamma}_{kl} p_k p_l p_i \right) \quad (10)$$

où : λ est une constante qui dépend du rapport de forme, r , de l'ellipsoïde, $\underline{\underline{\dot{\gamma}}}$ le tenseur de vitesse de déformation et $\underline{\underline{\Omega}}$ le tenseur de vitesse de rotation, définis par :

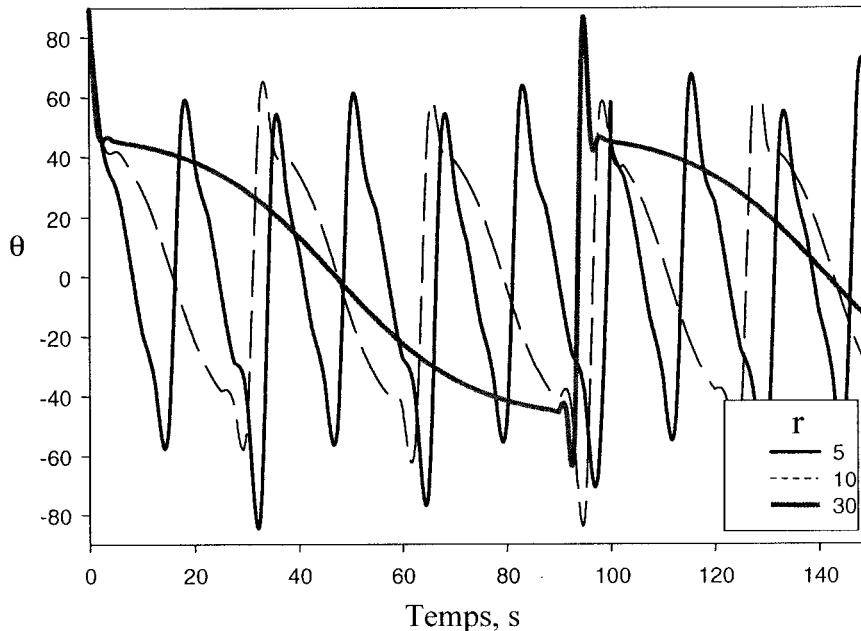
$$\lambda = \frac{r^2 - 1}{r^2 + 1} \quad (11)$$

$$\dot{\gamma}_{ij} = \frac{\partial V_i}{\partial \chi_j} + \frac{\partial V_j}{\partial \chi_i} \quad (12)$$

$$\Omega_{ij} = \frac{\partial V_i}{\partial \chi_j} - \frac{\partial V_j}{\partial \chi_i} \quad (13)$$

Pour des suspensions diluées en l'absence d'interactions fibres-fibres, l'équation (10) permet de calculer \underline{p} à tout instant. Lors d'un écoulement en cisaillement simple, l'équation de Jeffery prédit qu'une particule s'aligne dans la direction de l'écoulement tout en suivant une rotation périodique (Figure I.2), tandis qu'elle atteint une position

d'équilibre stable qui est la direction de l'étirement, lors d'un écoulement élongationnel. [3].



I.2.2.2 Évolution de l'orientation d'une population de fibres : systèmes semi-concentrés

La façon la plus rigoureuse de décrire l'orientation d'une population de fibre est d'utiliser la fonction de distribution d'orientation continue, définie précédemment. L'évolution de cette fonction est régit par l'équation de conservation dynamique suivante :

$$\frac{\partial \psi(p)}{\partial t} + \nabla \cdot (\mathbf{j}_h + \mathbf{j}_b) = 0 \quad (14)$$

Cette équation prend en compte les contributions du flux rotationnel du mouvement Brownien (\mathbf{j}_b) et de la convection hydrodynamique (\mathbf{j}_h). La convection hydrodynamique peut être exprimée à partir du mouvement rotationnel de \underline{p} alors que le terme Brownien est déterminé par le produit du coefficient de diffusion en rotation D_r et le gradient $\nabla \psi(\underline{p})$ (équation de Fokker-Planck) :

$$\frac{\partial \psi(\underline{p})}{\partial t} = -\frac{\partial}{\partial \underline{p}}(\underline{p} \psi) + D_r \frac{\partial^2 \psi(\underline{p})}{\partial \underline{p}^2} \quad (15)$$

Étant donné que la dimension des fibres, le mouvement Brownien est ici négligeable (nombre de Péclet important). Cependant, certains auteurs utilisent le coefficient de diffusion en rotation pour prendre en compte les interactions entre les particules. Folgar et Tucker [56] ont proposé une diffusivité isotrope qui est proportionnelle au taux de cisaillement :

$$D_r = C_I \dot{\gamma} \quad (16)$$

avec $\dot{\gamma} = \sqrt{(\dot{\gamma}_x \dot{\gamma}_y)/2}$ l'amplitude du tenseur du taux de déformation et C_I un paramètre empirique appelé coefficient d'interaction qui traduit l'intensité des interactions. En cisaillement simple ou en élongation uniaxiale une faible valeur de C_I (~ 0.1) donne lieu à une forte orientation selon l'écoulement en régime permanent alors qu'une valeur proche de l'unité conduit à une orientation quasi aléatoire. La figure I.3 illustre l'équation (15) en fonction de la déformation (i.e., du temps) lors d'un écoulement en cisaillement et pour un écoulement élongationnel planaire.

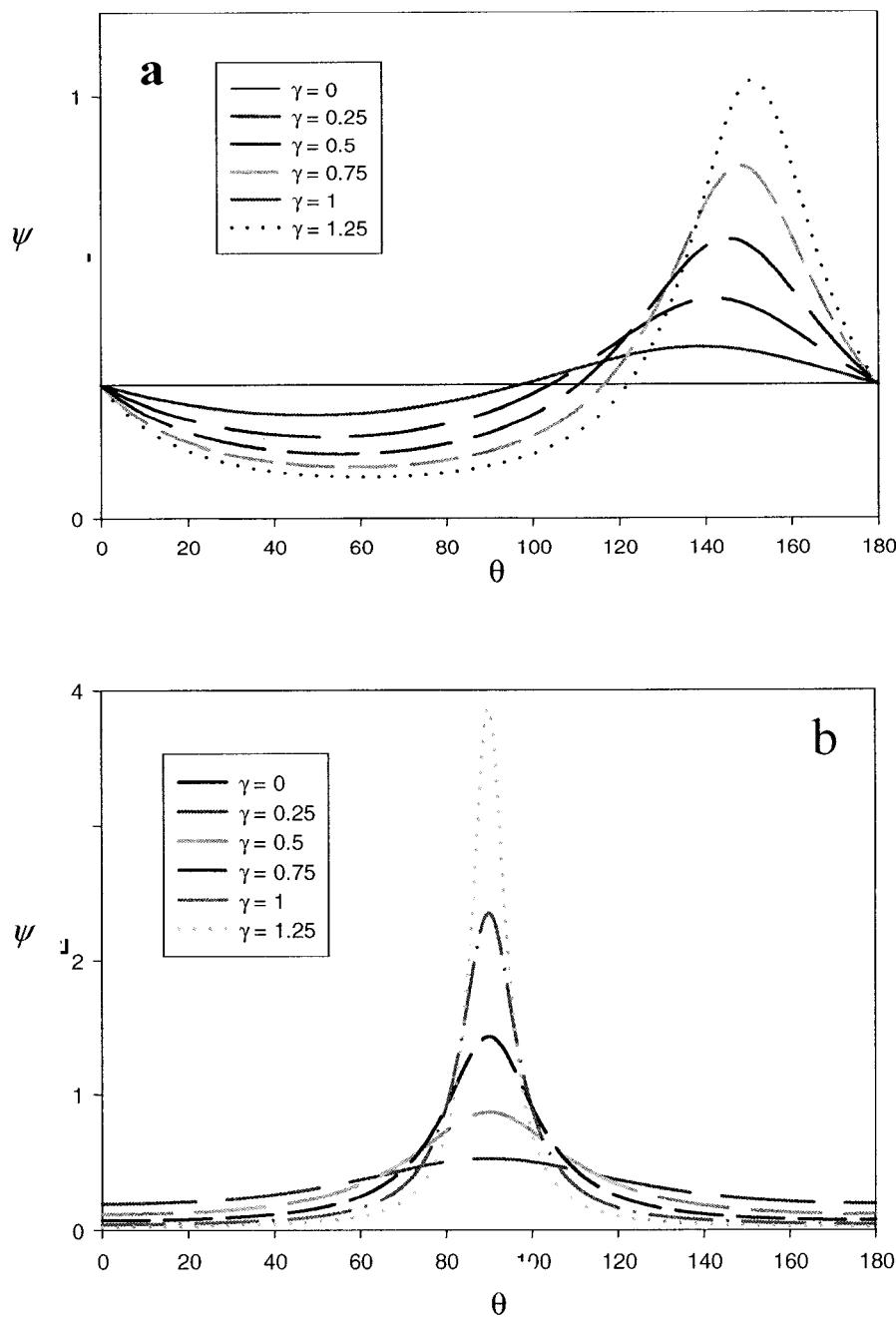


Figure I.5 Fonction de distribution en deux dimensions pour un état d'orientation initial des fibres isotrope et une diffusivité nulle : (a) cisaillement simple; (b) élongation plane. Un angle de zéro degré correspond à l'alignement des fibres dans la direction de l'écoulement. Réalisé avec le logiciel Matlab selon les travaux de Altan et al. [62]

L'équation (15) a été résolue via l'utilisation de méthodes numériques en cisaillement simple par Kamal et Mutel [57] et pour un écoulement combinant élongation et cisaillement par Bay. [58] Dans tous les cas, le calcul ne concerne que des écoulements homogènes. Pour que les temps de calcul restent raisonnables, il n'est pas envisageable de calculer $\psi(p)$ pour un écoulement non homogène. Pour cette raison de nombreux auteurs utilisent les tenseurs $\underline{\underline{a}}_2$ et $\underline{\underline{\underline{a}}}_4$.

En considérant l'équation de Jeffery (étendue avec D_r non nul) et l'équation de Fokker-Planck, la dérivée particulaire de $\underline{\underline{a}}_2$ s'écrit de la façon suivante [59] :

$$\frac{D\underline{\underline{a}}_2}{Dt} = \underline{\underline{\Omega}}\underline{\underline{a}}_2 - \underline{\underline{a}}_2\underline{\underline{\Omega}} + \lambda \left\{ \dot{\underline{\underline{\gamma}}}\underline{\underline{a}}_2 + \underline{\underline{a}}_2\dot{\underline{\underline{\gamma}}} - 2\dot{\underline{\underline{\gamma}}} : \underline{\underline{\underline{a}}}_4 \right\} + 2D_r(I - 3\underline{\underline{a}}_2) \text{ soit :}$$

$$\frac{D\underline{a}_{ij}}{Dt} = \underline{\Omega}_{ik}\underline{a}_{kj} - \underline{a}_{ik}\underline{\Omega}_{kj} + \lambda \left\{ \dot{\underline{\gamma}}_{ik}\underline{a}_{kj} + \underline{a}_{ik}\dot{\underline{\gamma}}_{kj} - 2\dot{\underline{\gamma}}_{kl} : \underline{a}_{ijkl} \right\} + 2D_r(\delta_{ij} - 3\underline{a}_{ij}) \quad (17)$$

Il est possible d'établir de la même façon une équation d'échange pour le tenseur d'ordre supérieur $\underline{\underline{\underline{a}}}_4$. Pour les deux cas, un problème de fermeture apparaît avec la présence d'un tenseur d'orientation d'ordre supérieur à celui effectivement considéré. La résolution de cette équation requiert alors l'utilisation d'une approximation de fermeture. Une approximation de fermeture permet d'exprimer un tenseur d'orientation d'ordre supérieur à partir d'un tenseur d'ordre inférieur. Les plus simples sont les approximations de fermeture linéaire et quadratique qui sont exactes respectivement, pour une population de fibres orientées aléatoirement et pour une orientation unidirectionnelle des fibres. La Figure I.4 permet de se rendre compte de l'erreur induite par l'utilisation de

l'approximation hybride pour deux écoulements homogènes. Cette approximation de fermeture est définie comme une combinaison des approximations linéaire et quadratique [60]. L'évolution exacte du tenseur d'orientation d'ordre 4 reportée à la figure I.4 est calculée à partir de la fonction de distribution (15). L'équation 17 est celle qui est le plus couramment résolues dans les modèles pour prédire l'orientation des fibres.

I.2.3 Équations constitutives

La plupart des modèles proposés à ce jour reposent sur des considérations hydrodynamiques où les forces de contact entre les fibres ne sont pas prises en compte. Les théories hydrodynamiques seules sont donc insuffisantes pour décrire la rhéologie des suspensions de fibres très concentrées. De plus, les modèles hydrodynamiques présentés par la suite, comme la plupart des modèles écrits à ce jour, supposent que la matrice est newtonienne.

Dans le cas des systèmes dilués les particules sont hydrodynamiquement indépendantes dans le sens que les perturbations du champ de vitesse qu'elles induisent ne se chevauchent pas. Plusieurs modèles, comme par exemple ceux de Hinch et *al.* [59] et Batchelor [61], prédisent correctement la viscosité en cisaillement des suspensions de fibres appartenant à ce régime de concentration.

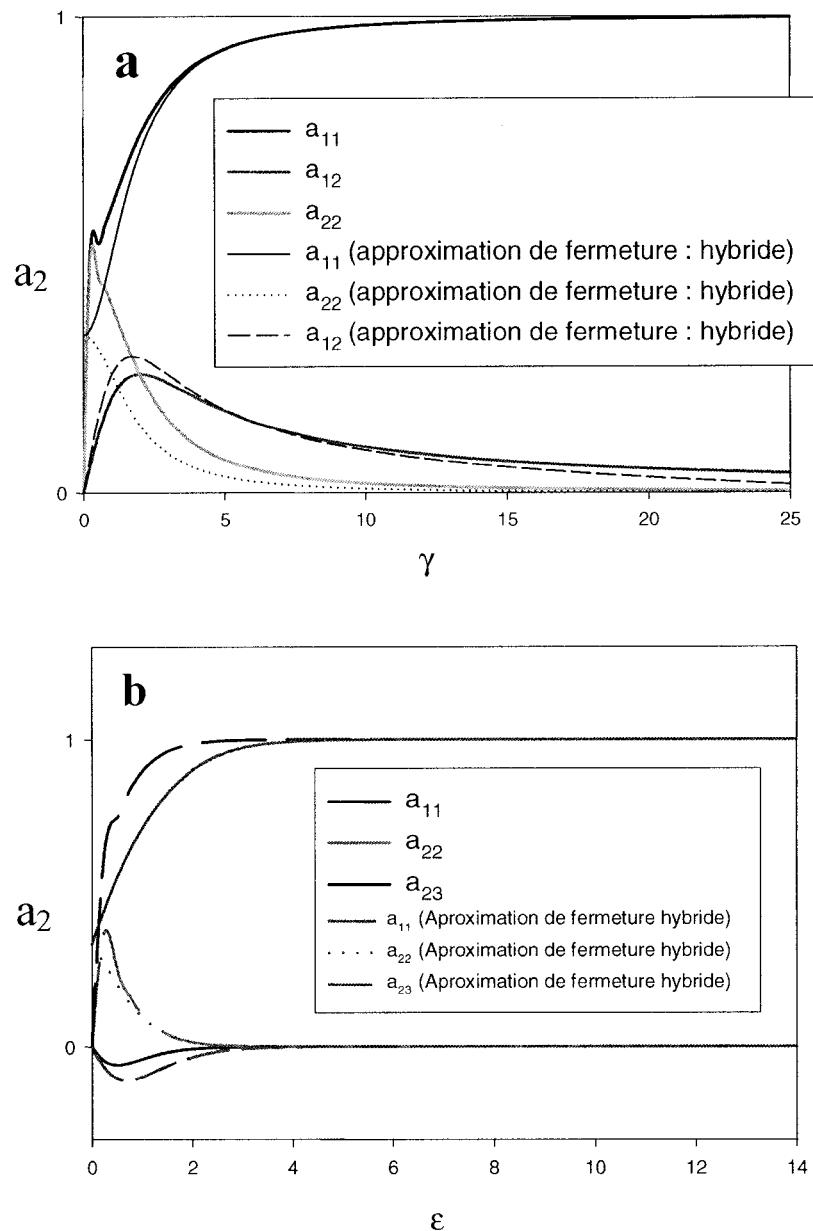


Figure I.4 Composantes non nulles du tenseur d'orientation d'ordre 2 pour un état d'orientation initial des fibres isotrope et une diffusivité nulle. a : cisaillement simple; b : élongation plane. Réalisé avec le logiciel Matlab selon les travaux de Altan et al. [62]

Si les particules interagissent mais seulement hydrodynamiquement, le régime de concentration semi-dilué est alors atteint. Batchelor [61] propose une forme générale de l'équation du champ de contrainte pour des suspensions de particules de forme quelconque dans un fluide newtonien à une concentration arbitraire. L'homogénéisation spatiale ainsi réalisée par Batchelor permet d'accéder à un niveau de description macroscopique du fluide pour lequel les contributions de la matrice et des fibres sont distinctes. L'application de ce résultat général aux suspensions non diluées demeure difficile car le calcul de la contrainte macroscopique requiert de connaître en détail le champ de vitesse local autour des particules. Pour cela, Batchelor [51] développe une approche cellulaire et l'applique pour prédire la contrainte intrinsèque, $[\sigma]$, en élongation des suspensions diluées et semi diluées de fibres alignées dans un fluide newtonien :

$$[\sigma] = \frac{2}{9} \frac{r^2}{\ln(\beta)} \quad (18)$$

avec $\beta = \sqrt{\frac{\pi}{\phi_v}}$ (distance moyenne entre les fibres divisée par leur rayon) et

$$[\sigma(\dot{\epsilon})] = \frac{\sigma(\dot{\epsilon}) - \sigma_0(\dot{\epsilon})}{\sigma_0(\dot{\epsilon})\phi_v} \quad (19)$$

où σ_0 est la contrainte pour une fraction volumique de fibres nulle.

L'approche cellulaire consiste à approximer l'effet des particules voisines en remplaçant la frontière du champ d'écoulement de la particule considérée par une frontière équivalente. Acrivos et Shaqfeh [63] améliorent l'analyse qui est par la suite étendue pour un fluide en loi de puissance par Goddard [49, 50] :

$$[\sigma] = \frac{2}{9} r^{1+n} \left[\frac{\frac{1}{n} - 1}{1 - \beta^{1-\frac{1}{n}}} \right]^n B \text{ avec } B = \frac{9}{2+n} \frac{\eta_e(\dot{\epsilon})}{\eta(\dot{\epsilon})} \text{ si seulement : } r > > \beta > > 1 \quad (20)$$

Pour un fluide rhéofluidifiant ainsi considéré, la contribution des particules au champ de contrainte est fortement diminuée en comparaison au cas d'une matrice newtonienne.

Dinh et Armstrong [64] appliquent le résultat générale de Batchelor [61] ainsi que son approche cellulaire [51] pour exprimer le contribution des fibres au champ de contrainte en régime semi-concentré qui dépend de leur état d'orientation initiale :

$$\langle \underline{\underline{\sigma}} \rangle = -PI + 2\eta_m \underline{\underline{\dot{\gamma}}} + \eta_m \frac{2\phi_v r^2}{3 \ln(2h/D)} \underline{\underline{\dot{\gamma}}} : \underline{\underline{a}}_4 \quad (21)$$

avec h la distance entre les particules.

Pour un écoulement élongationnel uniaxial dont les fibres sont parfaitement orientées selon l'écoulement, ce modèle se réduit à celui de Batchelor.

Lipscomb [65] reprend quant à lui les équations de la mécanique des milieux continus pour les fluides isotropes transverses [66] et établit pour une solution diluée de fibres de rapport de forme important l'expression suivante :

$$\langle \sigma \rangle = -PI + 2\eta_m (1 + 2c_v) \underline{\underline{\dot{\gamma}}} + \eta_m \frac{C_v r^2}{\ln(r)} \underline{\underline{\dot{\gamma}}} : \underline{\underline{a}}_4 \quad (22)$$

Cette dernière expression se différencie de celle de Dinh et Armstrong (21) essentiellement par le coefficient de couplage entre le tenseur des taux de déformation et le tenseur d'orientation d'ordre 4. Ausias et *al.* [27] proposent de déterminer ce

coefficient de couplage à partir de mesures en cisaillement simple. Une bonne corrélation est ainsi obtenue entre les résultats expérimentaux pour du polypropylène renforcé de 20 et 30 % en masse de fibres courtes.

I.3 Conclusion

Les auteurs s'accordent à dire que l'ajout de fibres à un fluide augmente sa viscosité en cisaillement. Seule une divergence subsiste quant à la dépendance de l'amplitude de cette augmentation avec le taux de déformation. Pour les fluides newtoniens, elle peut s'expliquer par une évolution de la microstructure lors des mesures. A cette hypothèse vient s'ajouter pour les fluides non-newtoniens, l'hypothèse d'un taux de cisaillement effectif accru par la présence des fibres.

L'élasticité ne semble par contre pas être affectée par la présence des fibres bien que la première différence des contraintes normales augmente. Cette tendance, à l'opposé de l'observation de la diminution du gonflement en sortie de filière, serait liée aux phénomènes d'interaction entre les fibres.

La viscosité élongationnelle relative augmente également avec la fraction volumique de fibres. De la même façon que la viscosité en cisaillement, elle diminue avec le taux de déformation pour les suspensions composées d'un fluide non-newtonien.

Les équations constitutives existantes comportent de nombreuses restrictions, notamment sur le régime de concentration, le rapport de forme des particules et le comportement rhéologique de la matrice qui les éloignent de la description des thermoplastiques renforcés de fibres courtes.

I.4 Objectifs

Les effets principaux engendrés par la présence des fibres ont donc été à ce jour pour la plupart explorés. La corrélation des résultats et plus encore des propriétés rhéologiques entre elles demeure cependant difficile en raison de la disparité des suspensions étudiées et du manque d'éclaircissement des résultats. Pour combler ce manque, nous allons par la suite étudier le comportement d'un polypropylène renforcé de fibres de verre courtes. Aux techniques rhéologiques appliquées par les études antérieures vient s'ajouter l'utilisation d'un rhéomètre en ligne composé d'une filière plate et d'un convergent planaire hyperbolique. Des taux de déformation 20 fois supérieurs à ceux rapportés dans la littérature seront ainsi atteints afin d'étendre les données actuelles sur la viscosité élongationnelle de ces suspensions. L'utilisation de l'ensemble de ces techniques permettra de clarifier et de confirmer certaines conclusions mais aussi de les unifier pour un seul et même matériau. L'évaluation des équations constitutives se limitera à celle donnée par Goddard. Les systèmes considérés par les autres équations constitutives étant trop éloignés de nos matériaux.

CHAPITRE II : CARACTÉRISATION RHÉOLOGIQUE EN CISAILLEMENT

II.1 Matériaux étudiés

Le polypropylène chargé de fibres de verre courtes utilisé est commercialisé sous la forme de granulés par la société Basell (Hostacom G3 N01L). L'utilisation de deux concentrations massiques de fibres de verre différentes, nous a permis d'étudier le comportement de ces systèmes pour les régimes de concentration semi-dilués et concentrés. Les caractéristiques principales des fibres sont regroupées dans le tableau II.1 où, la longueur moyenne en masse, L_w , et la longueur moyenne en nombre, L_n , sont définies de la façon suivante :

$$L_w = \frac{\sum_i n_i L_i^2}{\sum_i n_i L_i} \quad (23)$$

$$L_n = \frac{\sum_i n_i L_i}{\sum_i n_i} \quad (24)$$

La distribution de longueur des fibres contenues dans les granulés a été déterminée par mesure directe après calcination de la matrice (Figure II.1 & Figure II.2). Un logiciel d'analyse d'image (Visilog) nous a permis d'effectuer ces mesures à partir de clichés obtenus en microscopie optique. L'attrition des fibres liée à l'injection a également été quantifiée ainsi que celle induite par l'utilisation d'un mélangeur interne pour la préparation des pastilles (II.2.1.1). La taille des fibres mesurées correspond alors à la taille réelle des fibres en amont du rhéomètre en ligne et de la taille réelle des fibres avant

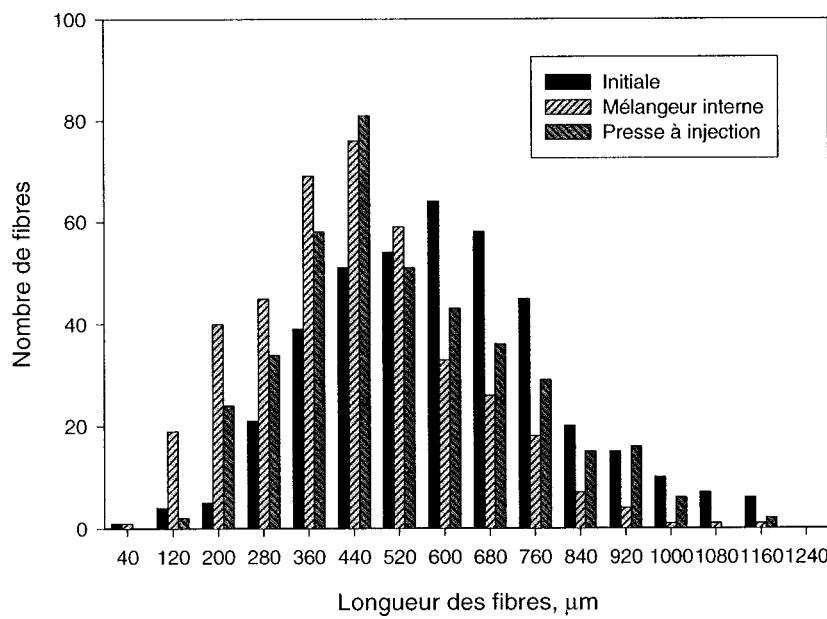


Figure II.1 Distribution de longueur des fibres de verre contenues dans le PP10

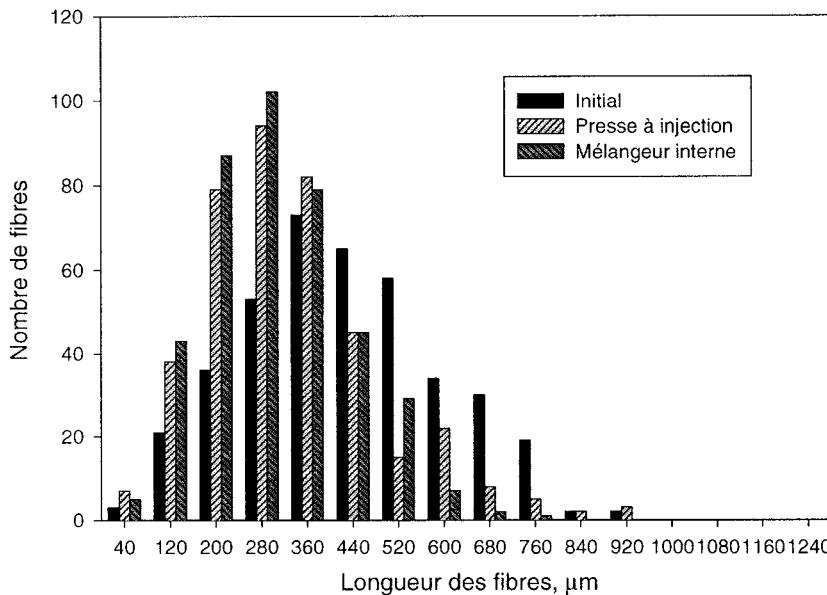


Figure II.2 Distribution de longueur des fibres de verre contenues dans le PP30

les mesures avec les rhéomètres rotatifs (Tableau II.2). Les paramètres de mise en œuvre utilisés lors de l'injection et du mélangeage sont résumés dans le tableau II.3. Les paramètres donnés pour la presse à injection correspondent à ceux utilisés lors des mesures avec le rhéomètre en ligne. Le cas le plus critique pour la rupture des fibres est considéré avec une vitesse d'injection de 200 mm/s.

Tableau II.1 Caractéristiques des renforts contenus dans les granulés de polypropylène utilisés

Nom commercial	Nom utilisé	% massique de fibres	% volumique de fibres	Diamètre des fibres, μm	$L_w, \mu\text{m}$	$L_n, \mu\text{m}$	L_w / L_n
Hostacom	PP0	0	0	-	-	-	-
G3 N01 L	PP10	10	3.8	15	790	610	1.3
	PP30	30	13.2	15	520	430	1.2

Il en ressort que les deux matériaux ne se différencient pas uniquement par leur concentration en fibres de verre mais aussi par la longueur de leurs fibres. Les longueurs moyennes en masse et en poids des fibres du polypropylène renforcé de 30 % en masse sont inférieures à celles des fibres du polypropylène renforcé de 10 % en masse. Ce résultat était attendu du fait qu'initialement la longueur des fibres contenues dans le PP30 est inférieure à celle du PP10. De plus, il est intéressant d'observer que la rupture des fibres est dans le cas de la presse à injection fonction de la concentration en fibres. Le mécanisme de rupture par interaction entre les fibres est donc prépondérant sur celui par

interaction entre les fibres et les parois. Le cas contraire est observé pour le mélangeur interne. Les distributions de taille des fibres obtenues après l'utilisation des deux techniques de mise en forme restent suffisamment proches pour que les résultats rhéologiques qui en sont issus soient comparables. Finalement, aucune tendance ne se démarque pour les deux appareils sur une rupture plus importante des fibres longues par rapport aux fibres courtes.

Tableau II.2 Rupture des fibres dans les procédés de mise en œuvre précédents les mesures rhéologiques

Matériau	Technique de mise en œuvre	$L_w, \mu\text{m}$	$L_n, \mu\text{m}$	L_w/L_n
PP10	Presse à injection	660 (-17%)	530 (-14%)	1.24
	Mélangeur interne	520 (-34%)	440 (-28%)	1.18
PP30	Presse à injection	400 (-23%)	330 (-25%)	1.22
	Mélangeur interne	350 (-33%)	300 (-30%)	1.15

Tableau II.3 Paramètres de mise en œuvre utilisés pour la presse à injection et le mélangeur interne

Presse à injection		Mélangeur interne	
Vitesse de rotation de la vis, rev/min	100	Vitesse de rotation de la vis, rev/min	40
Contre pression, MPa	0.3	Temps de séjour, min	4
Température de la vis, °C	Zone 1 : 170 Zone 2 : 180 Zone 3 : 190 Zone 4 : 200	Température du mélangeur, °C	200
Vitesse d'injection, mm/s	0.1 - 200		

II.2 Comportement rhéologique en cisaillement

II.2.1 Le rhéomètre à plateaux parallèles

Trois rhéomètres à contrainte imposée et plateaux parallèles (AR2000, TA Instruments; CSM, Bohlin Rheometer; SR5000, Rheometric Scientific) ont été utilisés en régime permanent et dynamique pour mesurer les propriétés viscoélastiques de nos matériaux. Ces instruments se composent de deux plateaux entre lesquels est placé l'échantillon sous atmosphère d'azote. Le plateau supérieur tourne à une vitesse angulaire, ν , tandis que le second est fixe.

La géométrie de mesure plan-plan a été optée à la place de la géométrie cône-plan dont l'entrefer devient au delà d'un certain rayon inférieur à la taille de nos fibres. Bibbo et al [6] ont en effet montré que la taille de l'entrefer doit être supérieure à la taille des fibres pour qu'elles ne soient pas contraintes par les parois. A la différence de la géométrie cône-plan, le taux de cisaillement appliqué au matériau n'est pas constant et varie linéairement selon le rayon. Pour un matériau homogène, cette déviation peut être aisément prise en compte dans l'analyse des résultats. Dans le cas des suspensions, dont leur microstructure évolue en fonction de la déformation, les fonctions matérielles mesurées ne caractérisent pas alors une microstructure uniforme.

II.2.1.1 Préparation des échantillons

La caractérisation d'un matériau à l'aide d'un rhéomètre rotatif en géométrie plan-plan nécessite de préparer au préalable des pastilles. Nous avons choisi comme technique de

mise en forme le moulage par compression à 200°C. Pour prévenir la dégradation thermique du matériau lors des essais, un stabilisant thermique (Irganox B225) a été ajouté à la concentration de 1% en masse à nos matériaux grâce à un mélangeur interne avant leur compression (Tableau II.3).

L'orientation des fibres induites par ce procédé de mise en forme s'apparente à un état d'orientation orthotrope. Une orientation privilégiée dans la direction orthoradiale (i.e, dans la direction perpendiculaire au rayon de la pastille; [27]) est obtenue suite à un précisaillement jusqu'au régime permanent (II.2.1.3).

Certains résultats qui vont suivre et principalement ceux donnés pour le polypropylène renforcé de fibres de verre comportent une estimation de l'incertitude de mesure. Elle représente l'écart type observé lors de la caractérisation de trois pastilles différentes. En présence de fibres, l'écart type estimé augmente avec leur concentration et diminue dans le cas où l'échantillon est préalablement cisaillé jusqu'à l'équilibre. Il est de plus indépendant de la fréquence et du taux de déformation imposés.

II.2.1.1 Écoulement de cisaillement oscillatoire de faible amplitude

Un écoulement de cisaillement oscillatoire de faible amplitude permet de définir le comportement visqueux et élastique d'un matériau. Le test consiste à imposer à la plaque supérieure une rotation oscillatoire de faible amplitude sinusoïdale à une fréquence, ω .

La déformation et le taux de cisaillement sont alors donnés par :

$$\gamma_{yx}(t) = \gamma^0 \sin(\omega t) \text{ et } \dot{\gamma}_{yx}(t) = \gamma^0 \omega \cos(\omega t) = \dot{\gamma}^0 \cos(\omega t) \quad (25)$$

où γ^0 et $\dot{\gamma}^0$ représentent respectivement l'amplitude positive de la déformation et du taux de déformation oscillatoire. Pour des déformations de faibles amplitudes, l'hypothèse selon laquelle la contrainte est linéaire par rapport à la déformation ou au taux de déformation peut être posée. La contrainte de cisaillement est alors définie en terme des fonctions viscoélastiques linéaires, i.e., G' , G'' et η' , η'' de la façon suivante :

$$\tau_{yx} = -G'(\omega)\gamma^0 \sin(\omega t) - G''(\omega)\gamma^0 \cos(\omega t) \quad (26)$$

$$\tau_{yx} = -\eta'(\omega)\dot{\gamma}^0 \cos(\omega t) - \eta''(\omega)\dot{\gamma}^0 \sin(\omega t) \quad (27)$$

Le module de perte, G'' , et la viscosité dynamique, η' , représentent la dissipation visqueuse d'énergie alors que le module de stockage, G' , et la rigidité dynamique, η'' , donnent des informations sur la nature élastique du matériau. Pour un fluide newtonien, le module de stockage est nul et la viscosité dynamique est égale à la viscosité. Réciproquement, pour un solide élastique, le module de perte est nul et le module de stockage est égal au module élastique du matériau.

i) Zone de linéarité

Le critère choisi pour délimiter la zone de linéarité du polypropylène est une variation inférieure à 5% de la viscosité complexe. Elle s'étend alors au regard de la figure II.3 jusqu'à une déformation de 0.05 pour une fréquence de 0.628 rad.s⁻¹. Pour des déformations supérieures, l'hypothèse selon laquelle la contrainte est linéaire par rapport à la déformation ou au taux de déformation n'est plus valide et les équations (26) et (27) ne sont plus applicables.

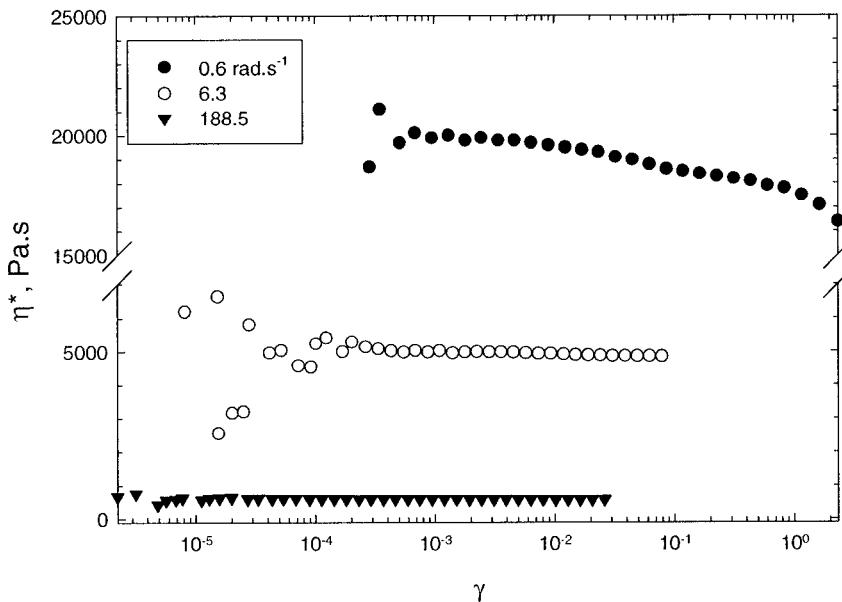


Figure II.3 Balayage en déformation du polypropylène pour différentes pulsations (CSM) ; $T = 200^\circ\text{C}$

Les systèmes chargés de fibres dispersées sont quant à eux non linéaires même aux faibles déformations (Figure II.4). Leur comportement rhéologique est fortement dépendant de la déformation. Cependant, seule la suspension dans le régime concentré montre un comportement sensiblement différent. Une variation de la viscosité de près de 11 % pour une déformation de 0.05 est observée pour ce matériau alors qu'elle reste inférieure à 5% pour le matériau contenant 10 % en masse de fibres. Un comportement nettement moins non-linéaire est observé dans le cas où l'échantillon est précisailé pendant 6000 s à une contrainte de 1000 Pa (Figure II.5 & Figure II.22). Ce résultat est attendu dans la mesure où la non-linéarité de ces matériaux est principalement due à l'évolution de la microstructure vers un état d'équilibre. Le précisaillement a pour effet

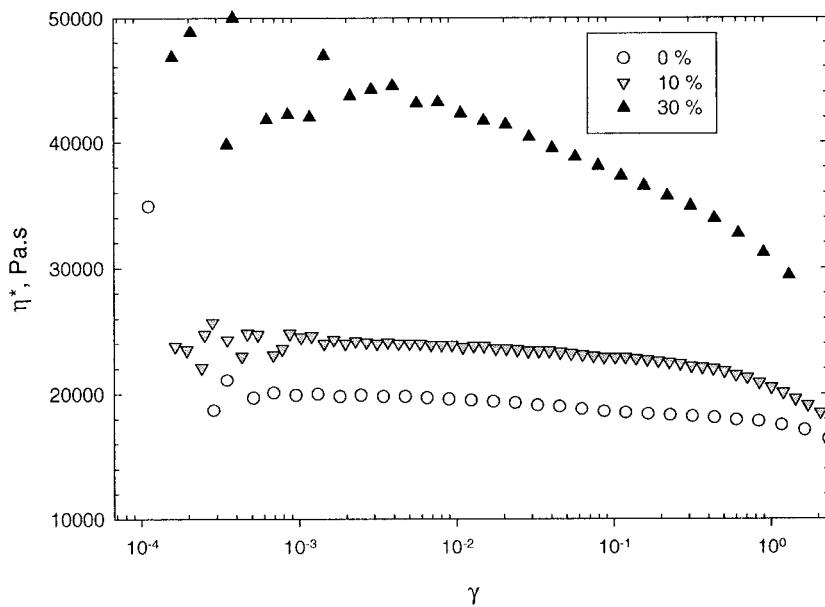


Figure II.4 Balayage en déformation à 0.628 rad/s du polypropylène pour différentes concentrations massiques de fibres (CSM) ; $T = 200^\circ\text{C}$

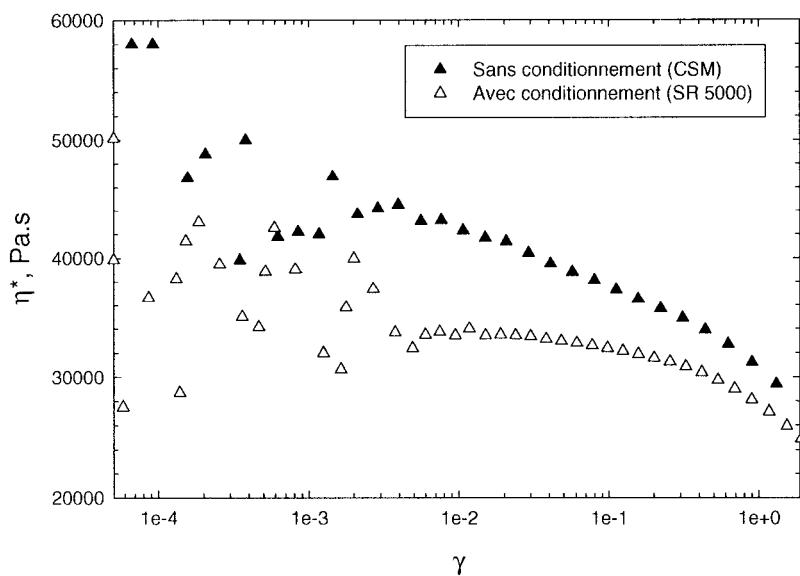


Figure II.5 Balayage en déformation à 0.628 rad/s pour le polypropylène renforcé de 30 % en masse de fibres ; $T = 200^\circ\text{C}$

de rapprocher la microstructure vers un état stable, limitant ainsi la non-linéarité lors du balayage en déformation qui le succède.

Pour les balayages en fréquence, une déformation de 0.05 a été retenue pour l'ensemble des matériaux à l'exception du polypropylène chargé de 30 % de fibres non cisaillé pour lequel une déformation de 0.005 a été employée. Cette déformation permet de se rapprocher au mieux du critère défini précédemment. Son influence lors d'un balayage en fréquence est illustrée à la figure II.6. Elle regroupe les résultats de plusieurs balayages en fréquence successifs sur un même échantillon se différenciant par l'amplitude de la déformation employée. La diminution de la viscosité complexe, η^* , définie comme le rapport entre les amplitudes complexes de la contrainte de cisaillement et du taux de cisaillement, mesurée avec l'augmentation de l'amplitude de la déformation est en réalité plus faible. L'application de plusieurs cycles d'oscillations a en effet tendance à modifier la microstructure présente initialement (I.1.3.1ii) comme tend à le montrer la figure II.7, si l'on considère bien entendu que la matrice n'est pas oxydée thermiquement.

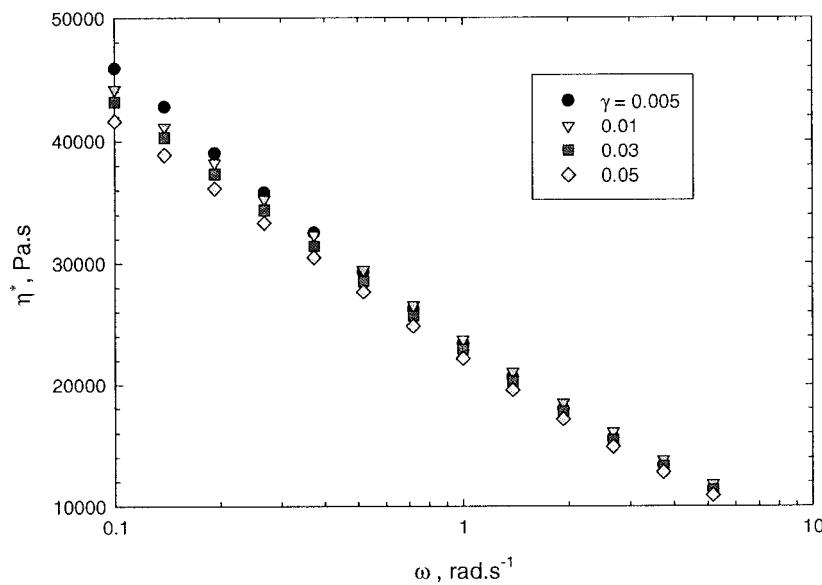


Figure II.6 Viscosité complexe en fonction de la pulsation pour le polypropylène renforcé de 30 % en masse de fibres pour différentes déformations imposées (AR 2000) ; $T = 200^\circ\text{C}$

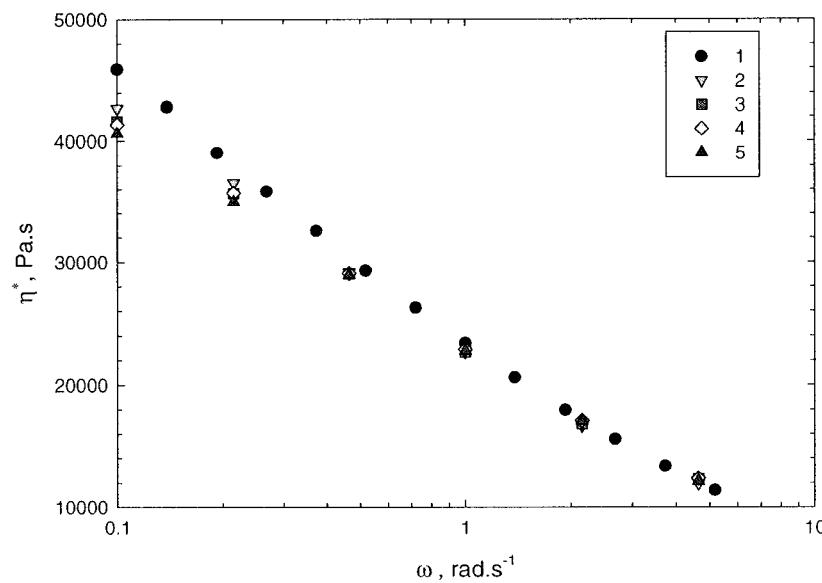


Figure II.7 Balayages en fréquence à une déformation de 0.005 qui ont succédé chaque balayage en fréquence de figure II.6 (SR 5000) ; $T = 200^\circ\text{C}$

ii) *Influence de la température sur la viscosité complexe du polypropylène*

La figure II.8 représente la courbe maîtresse du polypropylène obtenue selon le principe de superposition temps température [67]. L'énergie d'activation peut être déterminée à partir des facteurs de glissement utilisés, a_T (28), et de la loi d'Arrhénius (29).

$$a_T = \frac{\eta(T)T_0\rho_0}{\eta(T_0)T\rho} \approx \frac{\eta(T)}{\eta(T_0)} \quad (28)$$

$$a_T = \exp \frac{E}{R} \left(\frac{1}{T} - \frac{1}{T_0} \right) \quad (29)$$

Pour notre polypropylène, une énergie d'activation de 36,82 kJ/mol nous est donnée par la figure II.9. Cette valeur est cohérente avec la littérature qui indique une énergie d'activation comprise entre 36 et 50 kJ/mol pour le polypropylène.

iii) *Influence de la concentration de fibres de verre courtes et d'un précisaillement*

La présence de fibres affecte l'ensemble des fonctions viscoélastiques linéaires à l'exception de l'angle de déphasage, δ ((30) & Figure II.10).

$$\tan(\delta) = \frac{G''(\omega)}{G'(\omega)} \quad (30)$$

Le comportement élastique du matériau est donc indifférent à la présence des fibres. Par contre, la viscosité complexe augmente considérablement pour le système concentré (Figure II.11 et Figure II.15). Pour le système semi-concentré, un écart moins important

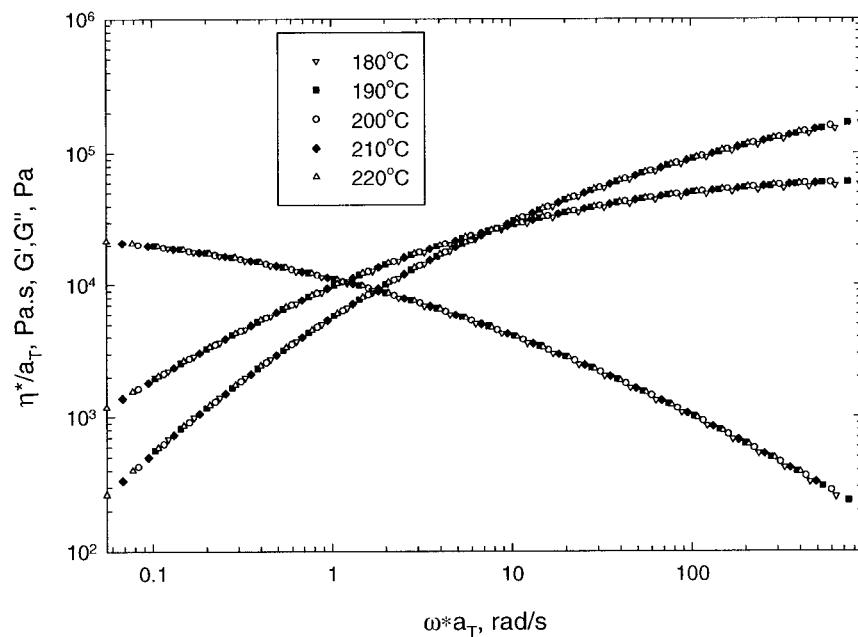


Figure II.8 Courbe maîtresse du polypropylène à 200°C (AR 2000)

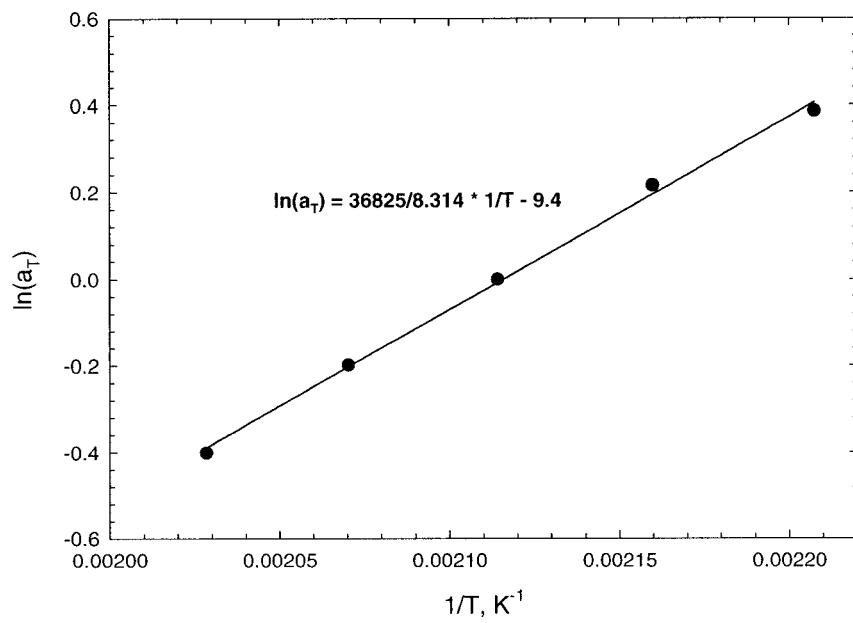


Figure II.9 Évolution du facteur de glissement en fonction de la température

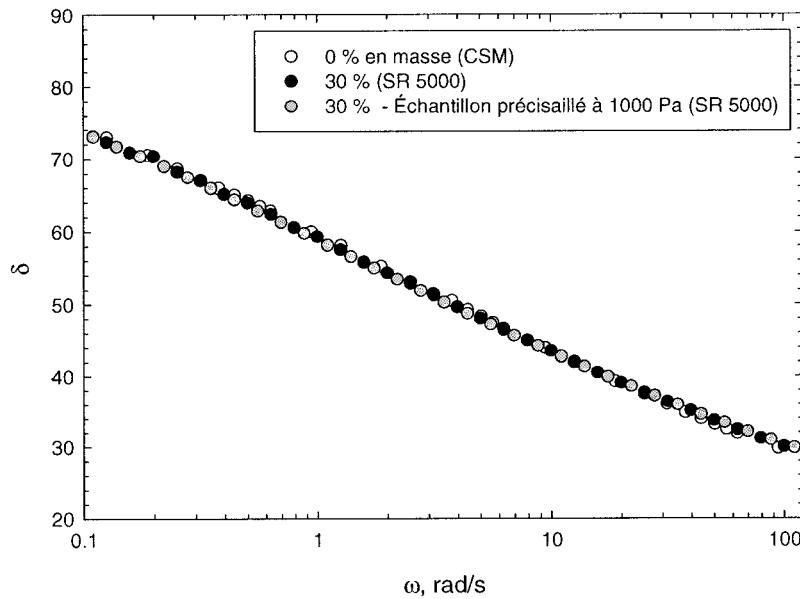


Figure II.10 Influence de la présence de fibres sur l'angle de déphasage du polypropylène ; $T = 200^\circ\text{C}$

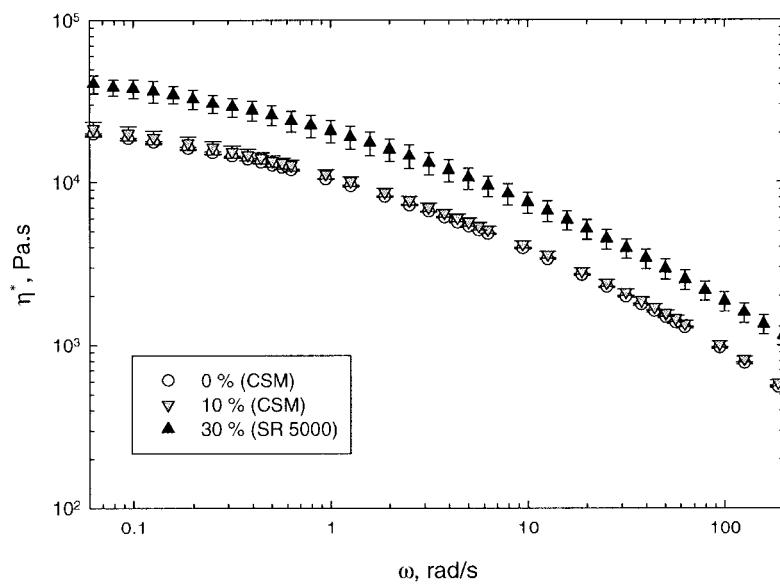


Figure II.11 Influence de la concentration massique de fibres sur la viscosité complexe du polypropylène chargé ; $T = 200^\circ\text{C}$

est observé. Les modules suivent le même comportement que la viscosité complexe et leur intersection intervient d'une façon significative à la même fréquence (Figure II.12).

Le module de stockage du système concentré ne présente pas de plateau, contrairement à la suspension très similaire, de part sa fraction volumique de fibres, la longueur et le rapport de forme des fibres, étudiée par Kitano et *al.* [19]. Cette absence s'explique vraisemblablement par le fait que les balayages en fréquence présentés, commencent par les plus hautes fréquences de pulsation à la différence de ceux effectuées par Kitano et *al.* [19].

Les échantillons utilisés pour les précédentes mesures n'ont pas été conditionnés. L'orientation des fibres correspondait donc à celle induite lors de la mise en forme de l'échantillon par compression. Cette orientation s'apparente à une orientation aléatoire dans le plan de cisaillement qui sous l'effet d'une déformation en cisaillement évolue vers une orientation d'équilibre (II.2.1.3). La figure II.13 présente la viscosité complexe avant et après un essai de fluage à 1000 Pa jusqu'à l'équilibre. Un précisaillement à contrainte imposée a pour effet de diminuer la viscosité complexe d'autant plus que la contrainte imposée est importante. Le module visqueux diminue également tandis que le module élastique reste constant (Figure II.14).

Finalement la figure II.15 présente la viscosité relative des deux suspensions (31). Aucune dépendance de leur viscosité relative par rapport au taux de cisaillement n'est observée.

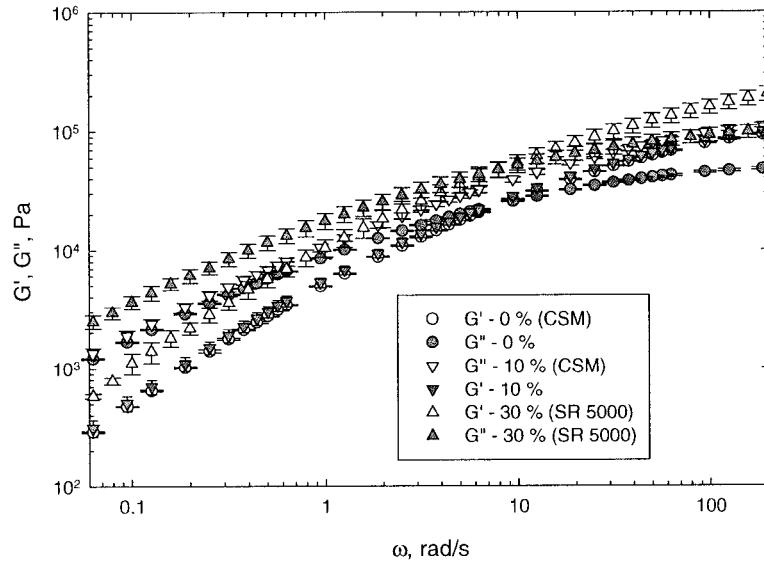


Figure II.12 Influence de la concentration massique de fibres sur les modules dynamiques du polypropylène chargé ; $T = 200^\circ\text{C}$

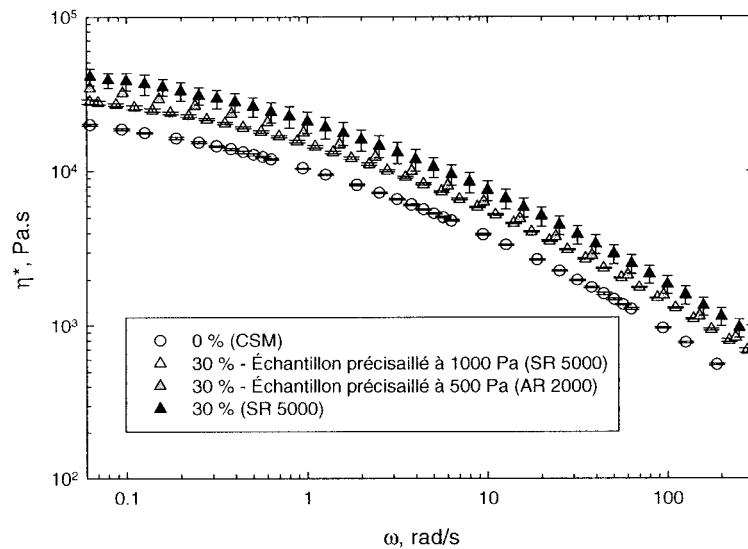


Figure II.13 Influence d'un précisaillement jusqu'à l'équilibre (Figure II.22) sur la viscosité complexe du polypropylène chargé de 30 % en masse de fibres ; $T = 200^\circ\text{C}$

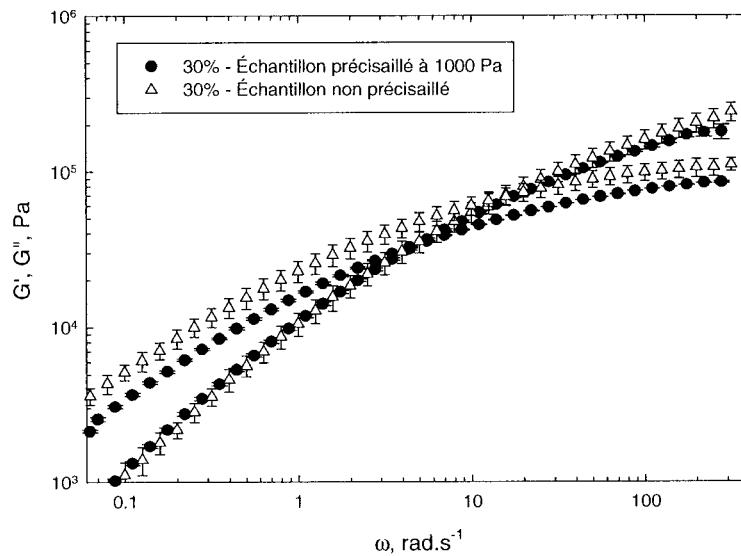


Figure II.14 Influence de l'orientation des fibres sur les modules dynamiques du polypropylène chargé de 30 % en masse de fibres (SR 5000) ; $T = 200^\circ\text{C}$

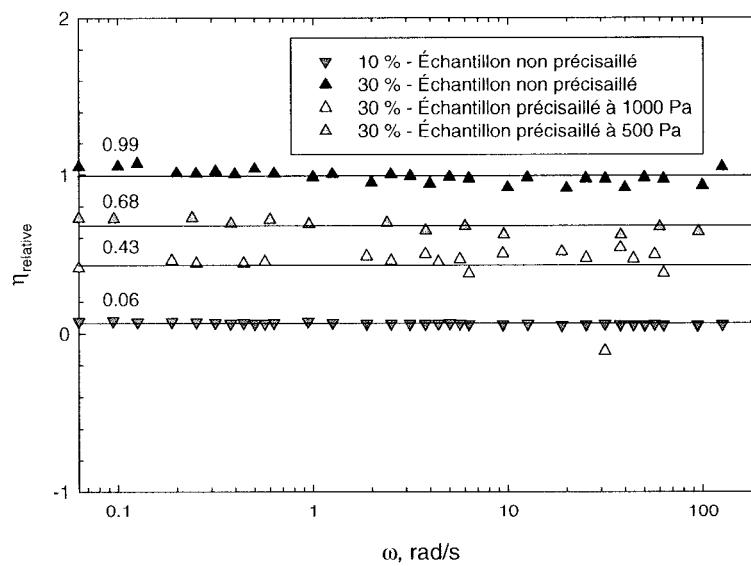


Figure II.15 Viscosité relative du polypropylène pour différentes concentrations massiques de fibres ; $T = 200^\circ\text{C}$

$$\eta_r(\dot{\gamma}) = \left. \frac{\eta_{suspension} - \eta_{matrice}}{\eta_{matrice}} \right|_{\dot{\gamma}} \quad (31)$$

II.2.1.2 Cisaillement en régime permanent

Dans le cas d'un cisaillement permanent le plateau supérieur tourne à une vitesse angulaire constante. La viscosité, η , la première et la seconde différence des contraintes normales, N_1 et N_2 , sont obtenues à différents taux de cisaillement, $\dot{\gamma}$, à partir des équations suivantes [68] :

$$\dot{\gamma}_R = \frac{v}{h} R \quad (32)$$

$$\eta(\dot{\gamma}_R) = \frac{T}{2\pi R^3 \dot{\gamma}_R} \left[3 + \frac{d \ln(T/2\pi R^3)}{d \ln \dot{\gamma}_R} \right] = \frac{T}{2\pi R^3 \dot{\gamma}_R} [3 + c_1(T, \dot{\gamma}_R)] \quad (33)$$

$$N_1(\dot{\gamma}_R) - N_2(\dot{\gamma}_R) = \frac{2F}{\pi R^2} \left(1 + \frac{1}{2} \frac{d \ln F}{d \ln \dot{\gamma}_R} \right) = \frac{2F}{\pi R^2} \left(1 + \frac{1}{2} c_2(F, \dot{\gamma}_R) \right) \approx N_1(\dot{\gamma}_R) \quad (34)$$

où, T représente le couple requis pour imposer la vitesse angulaire, v et F la force de compression nécessaire pour maintenir constant l'entrefer de hauteur h entre les plateaux de rayon R . Pour un polymère fondu, N_2 est négative et vaut classiquement 10 % de N_1 ce qui permet d'appliquer l'approximation faite à l'équation (34).

La plage de taux de cisaillement approchée s'étendaient de $1.25 \cdot 10^{-3} \text{ s}^{-1}$ à 0.1258 s^{-1} pour le polypropylène non chargé et de $1.25 \cdot 10^{-3} \text{ s}^{-1}$ à 0.2 s^{-1} pour le polypropylène renforcé.

Au delà de ces taux de déformation le matériau se voyait expulsé de l'entrefer. Pour

s'assurer d'avoir atteint le régime stationnaire, le couple mesuré était moyenné sur des intervalles de 1 min pour les plus bas taux de cisaillement et de 40 s pour les autres, jusqu'à l'obtention de 3 valeurs consécutives identiques à plus ou moins 2%. Ces essais étaient précédés d'un essai de fluage comme décrit au paragraphe suivant afin de s'assurer que la microstructure soit dans un état stable.

i) Présence de glissement aux parois

Dans un premier temps, nous avons vérifié l'absence de glissement aux parois selon la méthode posée par Yoshimura et Prud'homme [69]. Aucun glissement n'a pu être détecté pour le polypropylène. En effet, l'erreur relative sur le couple pour deux essais dont seule la hauteur de l'entrefer les différencie (i.e., 835 et 1240 μm) s'est révélée être inférieure à 5% (Figure II.16). Tandis qu'une erreur relative également inférieure à 5% a été estimée sur le couple pour trois échantillons différents mais dont la taille de l'entrefer était identique (i.e., 835 μm). Des mesures similaires avec le système concentré pour trois hauteurs d'entrefer différentes ont été effectuées. L'objectif avoué était de mettre en évidence les effets de parois. Aucune tendance n'a pu être soulignée. Ce résultat tend à rejoindre la conclusion de Bibbo et *al.* [6] selon laquelle les effets de parois deviennent négligeables pour une hauteur d'entrefer au moins égale à la longueur des fibres. A noter également que la procédure utilisée ici tend à restreindre par l'alignement des fibres l'influence des parois. Un écart marqué entre les différentes mesures ne pourrait pas de plus être entièrement assigné aux effets de parois lors de la mesure. La diminution de l'entrefer diminue la mobilité des fibres et par conséquent le conditionnement ne donne

plus une microstructure semblable dans tous les cas. Aux effets de parois alors mis en évidence lors de la mesure s'ajoutent indirectement ceux mis en jeu lors du conditionnement.

ii) Balayages en taux de cisaillement

Pour les plus hautes vitesses de cisaillement imposées, les contraintes atteintes dépassent la valeur de 1000 Pa imposée lors du précisaillement. Ces vitesses sont donc supérieures à celles engendrées lors du précisaillement. Selon la conclusion de Ramazani et *al.* [28] (I.1.3.1iii), la microstructure dite d'équilibre est donc susceptible d'évoluer lors de la mesure (Figure II.17). La figure II.18 présente la viscosité obtenue pour le système concentré lors d'un balayage pour des taux de cisaillement compris entre $1.25 \cdot 10^{-3} \text{ s}^{-1}$ et 0.2 s^{-1} suivi d'un deuxième balayage dans le même sens de rotation de 0.2 s^{-1} à $1.25 \cdot 10^{-3} \text{ s}^{-1}$. La viscosité mesurée lors du premier balayage ne se superpose pas à celle mesurée lors du second balayage. Cela laisse sous entendre que la microstructure évolue effectivement lors du premier balayage. Une superposition des résultats est par contre obtenue lors d'un balayage en contrainte de 80 à 900 Pa puis de 900 à 80 Pa (Figure II.19). Il est à noter cependant que pour les taux de cisaillements atteints en dernier lieu lors du second balayage (i.e., les plus faibles taux de cisaillement), la viscosité mesurée lors du second balayage est plus importante que celle mesurée lors du premier balayage. Cette divergence illustre éventuellement la création d'une structure lors d'un cisaillement permanent à faibles taux de cisaillement.

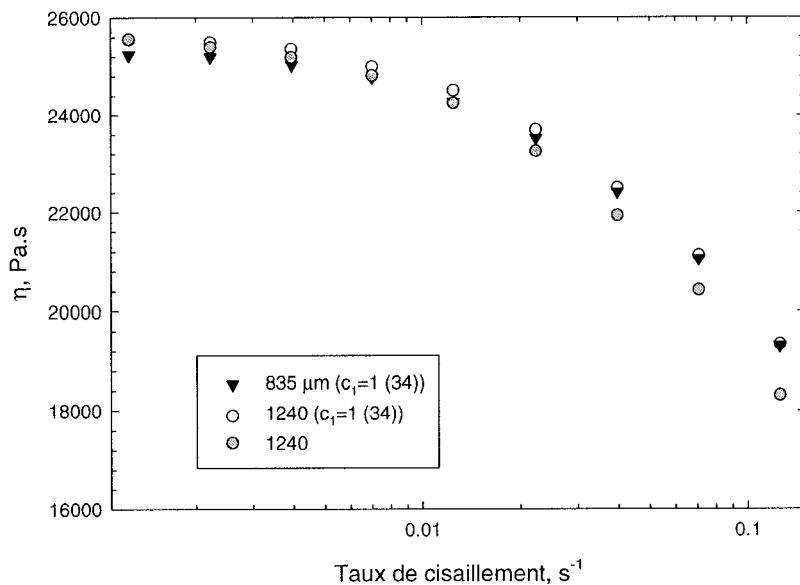


Figure II.16 Influence de la hauteur de l'entrefer lors d'un balayage en taux de cisaillement pour le polypropylène (AR 2000) ; $T = 200^\circ\text{C}$

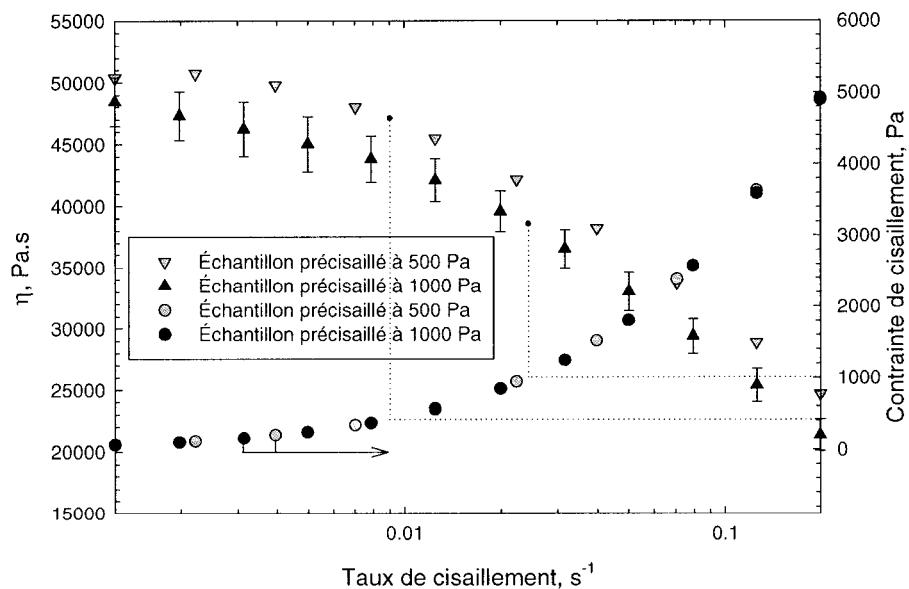


Figure II.17 Balayage en taux de déformation pour le polypropylène renforcé de 30 % en masse précisaillé à 500 et à 1000 Pa (AR 2000) ; Hauteur de l'entrefer : 1240 μm , $T = 200^\circ\text{C}$, $c_1 = 1$ (34)

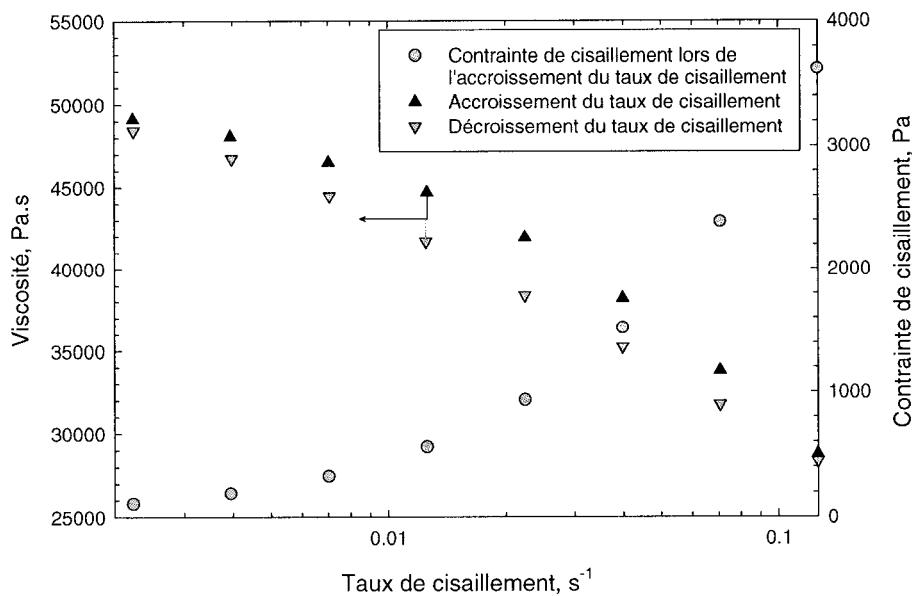


Figure II.18 Balayage en taux de cisaillement pour le polypropylène renforcé de 30 % en masse de fibres (AR 2000) ; $T = 200^\circ\text{C}$, $c_l = 1$ (34)

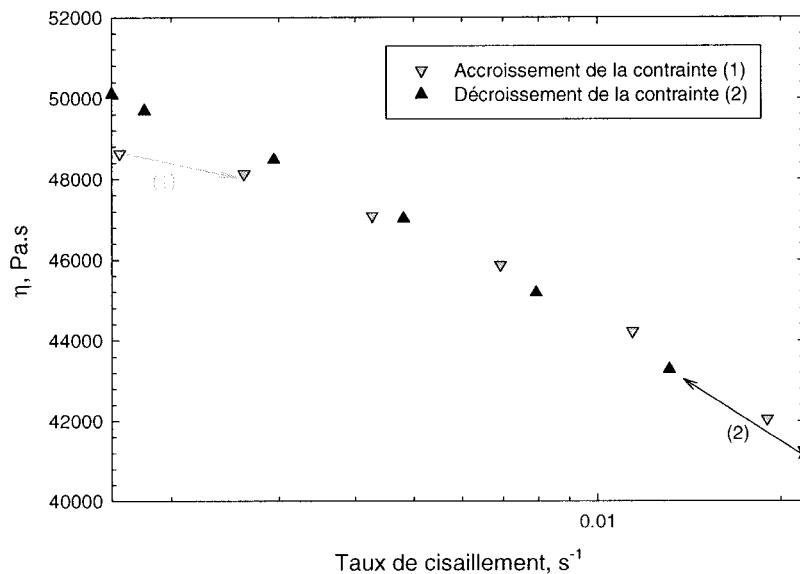


Figure II.19 Balayage en contrainte de 80 à 900 et de 900 à 80 Pa pour le polypropylène renforcé de 30 % de fibres (AR 2000) ; $T = 200^\circ\text{C}$, $c_l = 1$ (34)

La figure II.20 compare la viscosité en fonction du taux de cisaillement pour les différentes concentrations. On constate que le comportement des suspensions ne s'apparente plus au comportement de la matrice à la différence des observations précédentes en cisaillement oscillatoire. L'augmentation de la viscosité liée à la présence des fibres varie en effet en fonction du taux de cisaillement. Elle décroît respectivement de 94 % à 21 % et de 18 % à 5 % pour les polypropylènes chargés de 30 % et 10 % en masse de fibres lorsque le taux de cisaillement augmente de $1.25 \cdot 10^{-3} \text{ s}^{-1}$ à 0.1258 s^{-1} .

Les coefficients des contraintes normales primaires (i.e, l'opposé de la première différence des contraintes normales divisée par le taux de cisaillement au carré), Ψ_1 , présentés à la figure II.21 sont à considérer avec réserve bien que les plus faibles amplitudes de la force normale enregistrées lors des essais (i.e. 0.02N) étaient comprises dans la limite de précision de l'appareil (i.e. 0.01N). En effet, la relaxation complète des échantillons après le précisaillement n'a pas été atteinte d'une façon uniforme. Cependant, au regard de la figure II.21, il semblerait que l'ajout de fibres a pour effet d'augmenter le coefficient des contraintes normales primaires. D'une façon similaire aux résultats rapportés dans la littérature (I.1.4), cette augmentation est davantage prononcée au plus faibles taux de cisaillement. L'approximation effectuée à l'équation (34) s'applique bien pour les polymères homogènes; il est moins certain qu'elle reste correcte pour les systèmes chargés.

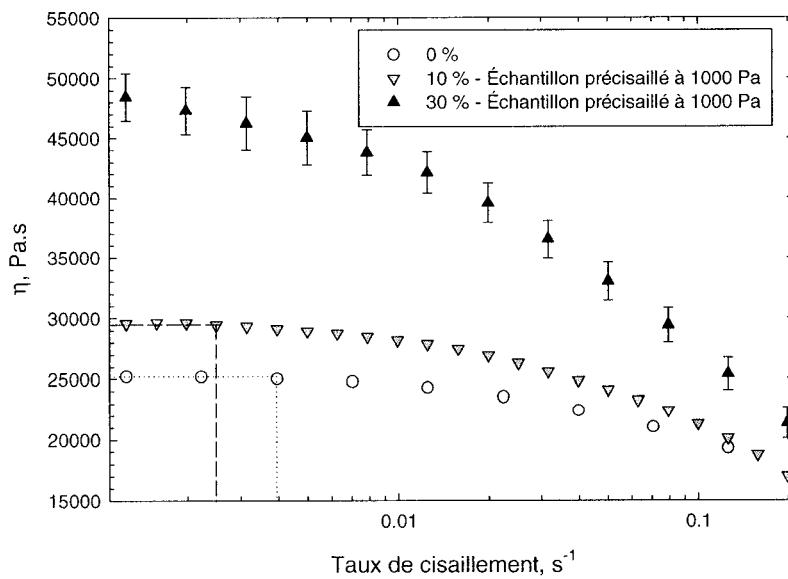


Figure II.20 Viscosité corrigée du polypropylène à 200°C pour différentes concentrations massiques de fibres (AR 2000) ; Hauteur de l'entrefer : 1240 µm, $T = 200^\circ\text{C}$

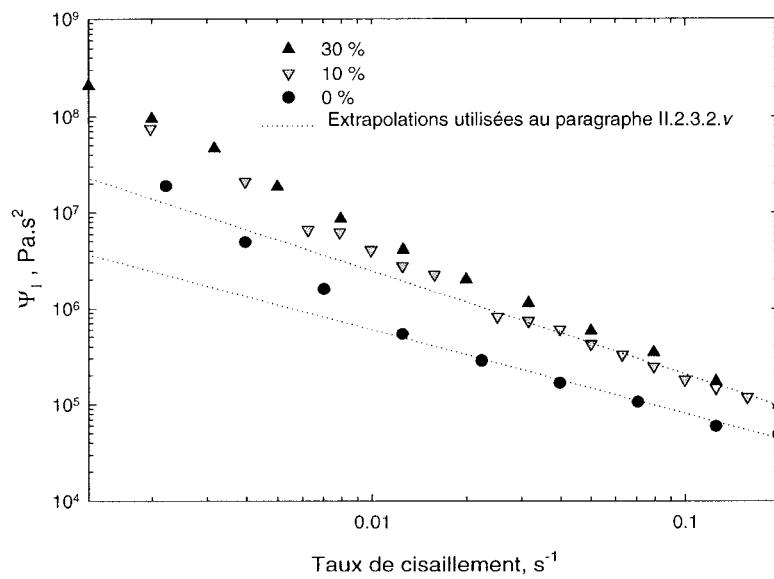


Figure II.21 Coefficients des contraintes normales primaires du polypropylène à 200°C pour différentes concentrations massiques de fibres (AR 2000) ; Hauteur de l'entrefer : 1240 µm, $T = 200^\circ\text{C}$

II.2.1.3 Essai de Fluage

Un essai de fluage consiste à imposer une contrainte déterminée tout en mesurant la déformation qui en résulte. Pour les suspensions non diluées de fibres (Figure II.22), la viscosité augmente dans un premier temps pour atteindre une valeur maximale et décline ensuite jusqu'à une valeur d'équilibre une fois le régime permanent atteint (Tableau II.4). Le lien entre la microstructure et le pic de viscosité n'est pas encore clairement établi. Il est imperceptible pour un polymère non chargé ou pour un polymère chargé de microbilles de verre ce qui montre qu'il est lié à l'état d'orientation des fibres (I.1.3.1iii). Son amplitude augmente avec la concentration volumique de fibres (Figure II.22) mais les mesures ne permettent pas de conclure que son amplitude relative, par rapport à la viscosité stationnaire, augmente également avec la concentration volumique (Tableau II.5). Elle varie également avec la distribution d'orientation initiale des fibres. Un second fluage est imposé suite au premier mais cette fois ci dans le sens de rotation contraire. Un pic de viscosité plus faible est toujours observé pour le système concentré tandis qu'il devient imperceptible pour le système semi-concentré (Figure II.23). Une orientation privilégiée des fibres dans la direction orthoradiale a donc pour effet de diminuer l'amplitude du pic de viscosité. La viscosité stationnaire atteinte lors de ce second cisaillement est égale à la viscosité stationnaire obtenue lors du premier fluage. Cela sous entend que les microstructures formées lors des deux essais sont similaires.

Tableau II.4 Viscosités obtenues pour un même taux de cisaillement en régime permanent (II.2.1.2) et en régime transitoire à l'équilibre ; T = 200°C

% massique de fibres	Taux de cisaillement, s ⁻¹	Viscosité, Pa.s	
		En régime permanent	En régime transitoire
0	0.045	22 200 ± 300	21 000
10	0.046	21 500 ± 700	25 300
30	0.03	33 100 ± 1600	34 000

Tableau II.5 Viscosités maximales mesurées lors d'un essai de fluage pour une contrainte de 1000 Pa ; T = 200°C

% massique de fibres	Viscosité maximale, Pa.s	Viscosité maximale relative, %
10	27 200 ± 1500	26 ± 11
30, 1 ^{er} fluage	39 800 ± 2000	20 ± 12
30, 2 ^{ème} fluage (sens inverse du premier)	35 900 ± 1900	8.5 ± 11

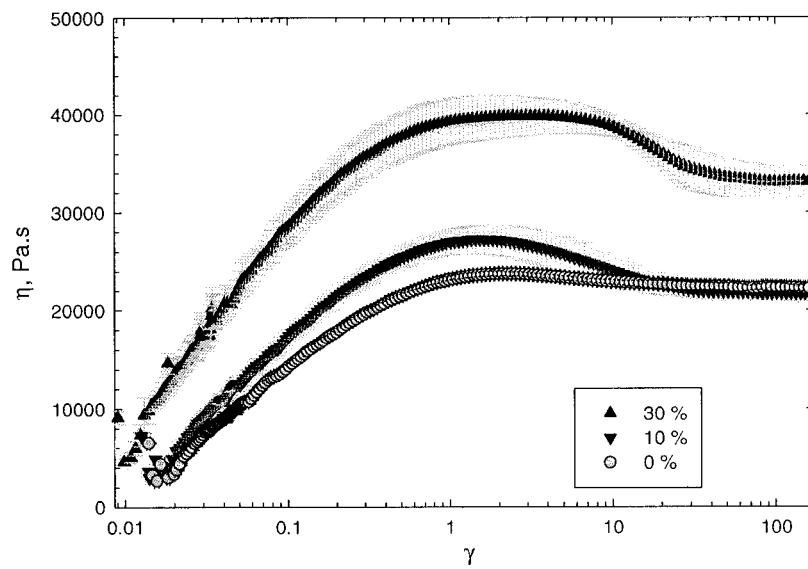


Figure II.22 Influence de la concentration massique de fibres pour un essai de fluage à 1000 Pa (SR 5000) ; Échantillons non précisailles, $T = 200^\circ\text{C}$

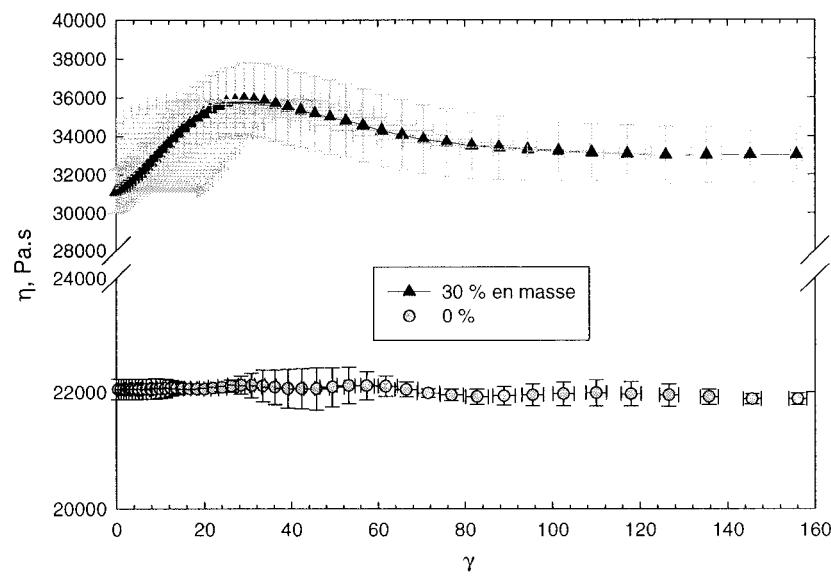


Figure II.23 Essai de fluage à 1000 Pa précédé d'un même essai dans le sens inverse de rotation (SR 5000) ; $T = 200^\circ\text{C}$

II.2.2 Le rhéomètre capillaire

Les essais de rhéométrie capillaire permettent d'obtenir les courbes d'écoulements pour des gradients de vitesse compris entre 1 s^{-1} et 1000 s^{-1} . Cette méthode consiste à mesurer la perte de pression le long d'un capillaire pour différents débits. L'analyse de l'écoulement pour un fluide newtonien permet de relier la perte de charge, ΔP , à la contrainte à la paroi, τ_w (35), et le débit, Q , au taux de cisaillement à la paroi, $\dot{\gamma}_a$ (36).

Pour cela on suppose que l'écoulement est incompressible, isotherme et établi, que la viscosité est indépendante de la pression, que le fluide est homogène et qu'il n'y a pas de glissement à la paroi.

$$\tau_w = \frac{\Delta P R}{2L} \quad (35)$$

$$\dot{\gamma}_a = \frac{4Q}{\pi R^3} \quad (36)$$

où L est la longueur du capillaire et R son rayon.

Pour un fluide non newtonien, le taux de cisaillement doit être corrigé en utilisant la correction de Rabinowitsch :

$$\dot{\gamma} = \frac{1}{4} \left\{ 3 + \frac{d \log \dot{\gamma}_a}{d \log \tau} \right\} \dot{\gamma}_a \quad (37)$$

En pratique en raison de la taille et de la courbure de la géométrie d'écoulement, la perte de charge est mesurée par un capteur placé en amont de l'entrée effective du capillaire et en aval de la sortie effective du capillaire. Elle comprend donc non seulement la perte de

charge liée à l'écoulement du matériau dans le capillaire mais également celle induite par les effets d'entrée et de sortie. La correction de Bagley permet de déterminer ces pertes de charge en utilisant plusieurs capillaires de longueurs différentes mais de diamètres identiques. L'intersection du tracé de la perte de charge totale en fonction du rapport de forme des capillaires avec l'axe des ordonnées donne, pour un débit donné, la perte de charge liée aux effets d'entrée et de sortie. Finalement, la correction de Mooney peut être utilisée pour prendre en compte la présence éventuelle de glissement à la paroi. Elle requiert l'utilisation d'au moins trois capillaires de rayon différents mais de longueur identique. Cette dernière correction n'a pas été prise en compte dans le cadre de cette étude.

Les capillaires utilisés avaient un diamètre, D , de 1.27 mm et des rapports L/D de 24.6, 35.5, 40 et 80.1 et un angle d'entrée de 45° . Les diagrammes de Bagley obtenus pour le polypropylène seul et renforcé de 30 % en masse de fibres de verre sont linéaires et laissent supposer que les effets d'entrée et de sortie sont négligeables pour les deux matériaux (Figure II.24 et Figure II.25). Une toute autre lecture des diagrammes peut être faite au regard de ceux donnés par Crowson et *al.* [33] pour un polypropylène non chargé et chargé de 20 % en masse de fibres de verre ($r = 50$; $l = 500 \mu\text{m}$). Ils observent pour les deux matériaux une perte de charge non linéaire en fonction du rapport de forme des capillaires. Cependant, un alignement des points peut aisément être considéré pour les capillaires de rapport de forme compris entre 20 et 100. L'omission des résultats donnés par les capillaires de rapport de forme plus faible conduit aux mêmes conclusions

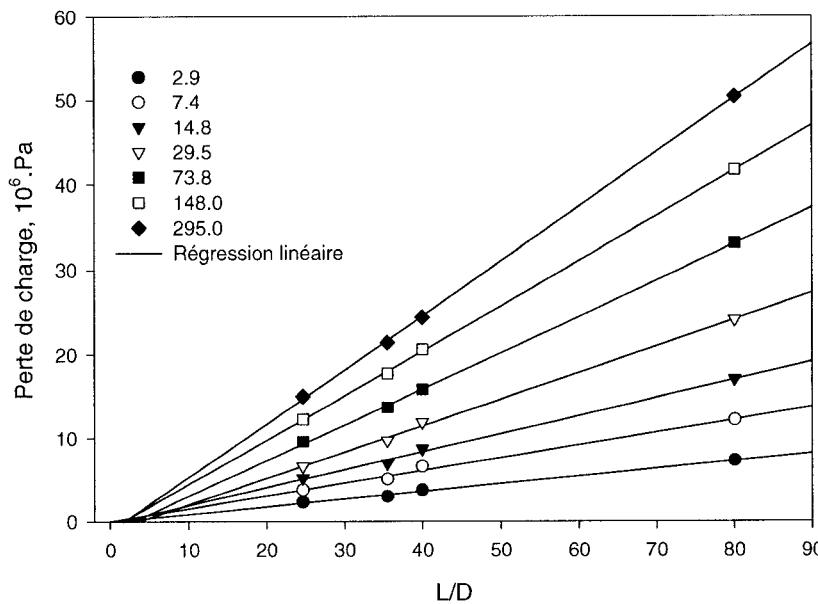


Figure II.24 Diagramme de Bagley du polypropylène à 200°C (Rhéomètre capillaire)

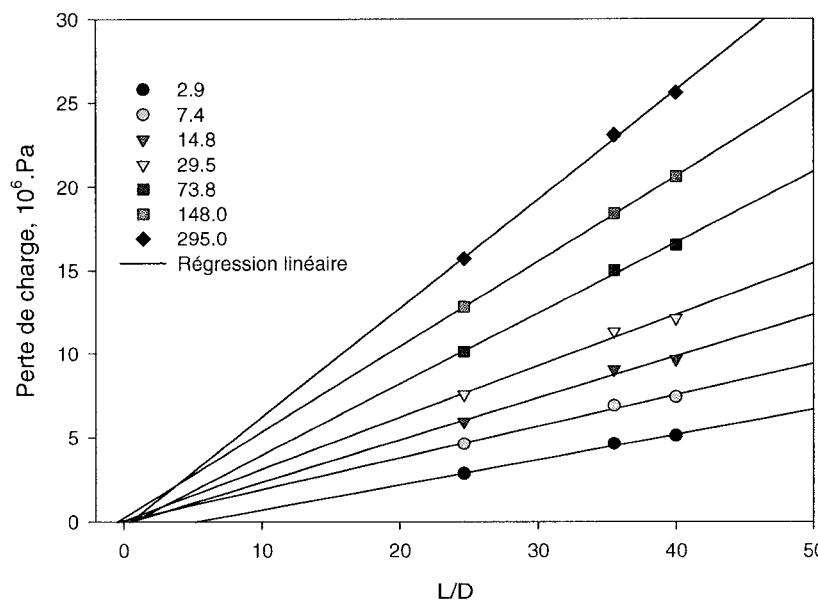


Figure II.25 Diagramme de Bagley du polypropylène chargé de fibres à 30 % en masse de fibres à 200°C (Rhéomètre capillaire)

énoncées précédemment pour nos matériaux. Cette non linéarité des diagrammes de Bagley s'explique le plus couramment par la dépendance de la viscosité avec la température et la pression auquel s'ajoute pour les systèmes chargés l'évolution de l'orientation des fibres. Les deux premiers effets se ressentent pour un polymère au delà d'une pression de 20 Mpa. (Figure 4 à la page 74 de la référence [67]) ce qui explique alors pourquoi les effets d'entrées ne sont pas perceptibles sur nos diagrammes. Dans la suite de l'analyse, la perte de charge totale sera tout de même assimilée à la perte de charge dans le capillaire. La méthode de Cogswell (III.1.2) pour déterminer la viscosité élongationnelle n'est donc pas applicable dans ce cas ci.

Le comportement du polypropylène chargé de 30 % en masse de fibres de verre courtes se distingue nettement du polypropylène non renforcé pour des taux de cisaillement de 2 à 12 s^{-1} tandis qu'il tend à se confondre avec ce dernier aux plus hauts taux de cisaillement (Figure II.26 & Figure II.27). Ce comportement non uniforme peut s'expliquer entre autre par le fait que l'état d'orientation des fibres évolue en fonction du débit, comme l'a montré Crowson et *al.* [33]. Ils ont observés que l'alignement des fibres augmente avec le débit ce qui diminue la perturbation du champ d'écoulement et réduit ainsi la dissipation visqueuse générée par leur présence. Par conséquent, la déviation positive qu'engendrent les fibres sur la viscosité se voit diminuer (Figure II.13).

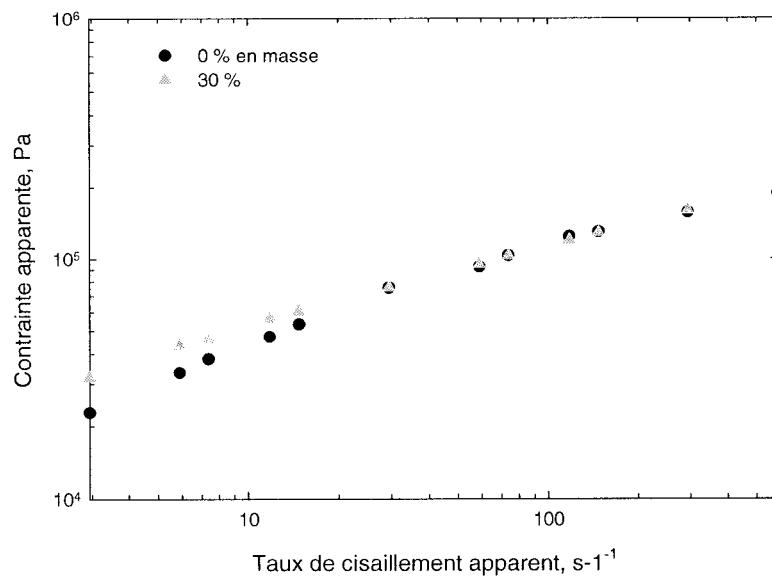


Figure II.26 Contrainte apparente en fonction du taux de cisaillement pour le polypropylène avec et sans fibres à 200 °C (Rhéomètre capillaire)

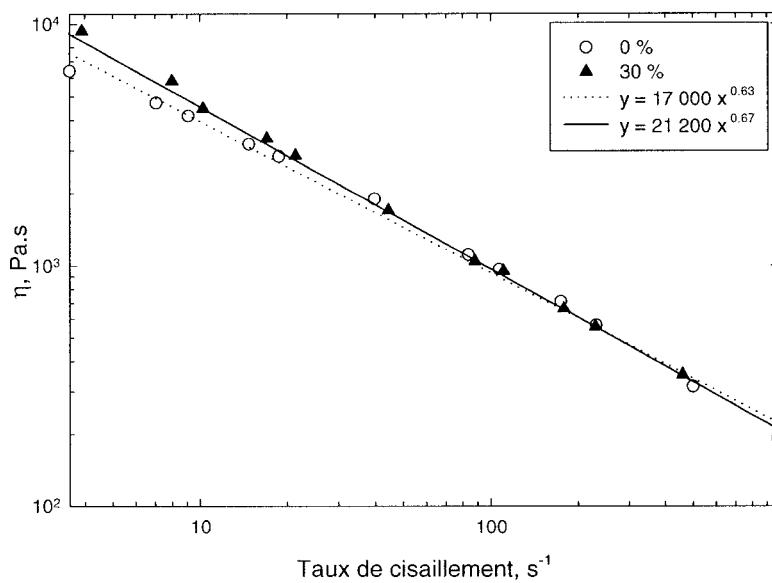


Figure II.27 Viscosité corrigée réelle en fonction de la vitesse de cisaillement pour le polypropylène seul et renforcé de 30 % en masse de fibres à 200 °C (Rhéomètre capillaire)

II.2.3 Le rhéomètre filière plate

II.2.3.1 Description du dispositif

Pour étudier le comportement rhéologique en cisaillement de nos matériaux pour des conditions proches à celle rencontrées lors du procédé d'injection, un rhéomètre filière plate a été développé. Le principe consiste à le monter à la place d'un moule conventionnel sur une presse à injection électrique Sumitomo SE50S.

L'ensemble du dispositif est présenté schématiquement à la figure II.28. Le rhéomètre est constitué de trois parties principales en acier (P20) : un convergent, une fente rectangulaire et un divergent. La fente fait 25 mm de large pour une hauteur minimale de 2 mm. Elle permet de balayer une gamme de vitesse de cisaillement apparente comprise entre 10^1 et 10^5 s⁻¹. Trois capteurs (Grefan ISI 0101 et Dynisco TPT) de pression situés à 25, 60 et 95 mm de l'entrée affleurent à la paroi de la fente. Deux autres capteurs de pression (Grefan ISI 0101 et Dynisco TPT), toujours affleurant à la paroi, sont placés l'un à l'entrée du convergent et l'autre à la sortie du divergent. Une courbe de calibration pour chaque capteur de pression a été mesurée à température ambiante. Pour chaque position, le capteur de pression a été choisi selon sa plage de mesure. Deux sondes de température situées à mi-hauteur du chenal en amont, T_1 , et en aval, T_2 , de la fente rectangulaire permettent de connaître la température du fluide. Une carte d'acquisition de National Instruments PCI 6034 E couplée à un logiciel développé sous Matlab permet d'acquérir ces pressions et ces températures à une fréquence d'échantillonnage de 40 Hz. Les différents éléments chauffant du montage sont régulés par des contrôleurs Omega

CN491A dont leur consigne est ajustée en fonction des températures T_1 et T_2 . L'écart de température le long du rhéomètre a pu ainsi être maintenu inférieur à 2°C. La vis de l'unité de plastification de la presse a un rayon de 16 mm et une course de 104 mm. La vitesse d'injection maximale dépend de la pression d'injection et s'étend dans le meilleur des cas jusqu'à 200 mm/s. Les paramètres d'injection qui ont été utilisés pour l'ensemble des mesures sont résumés dans le tableau II.2.

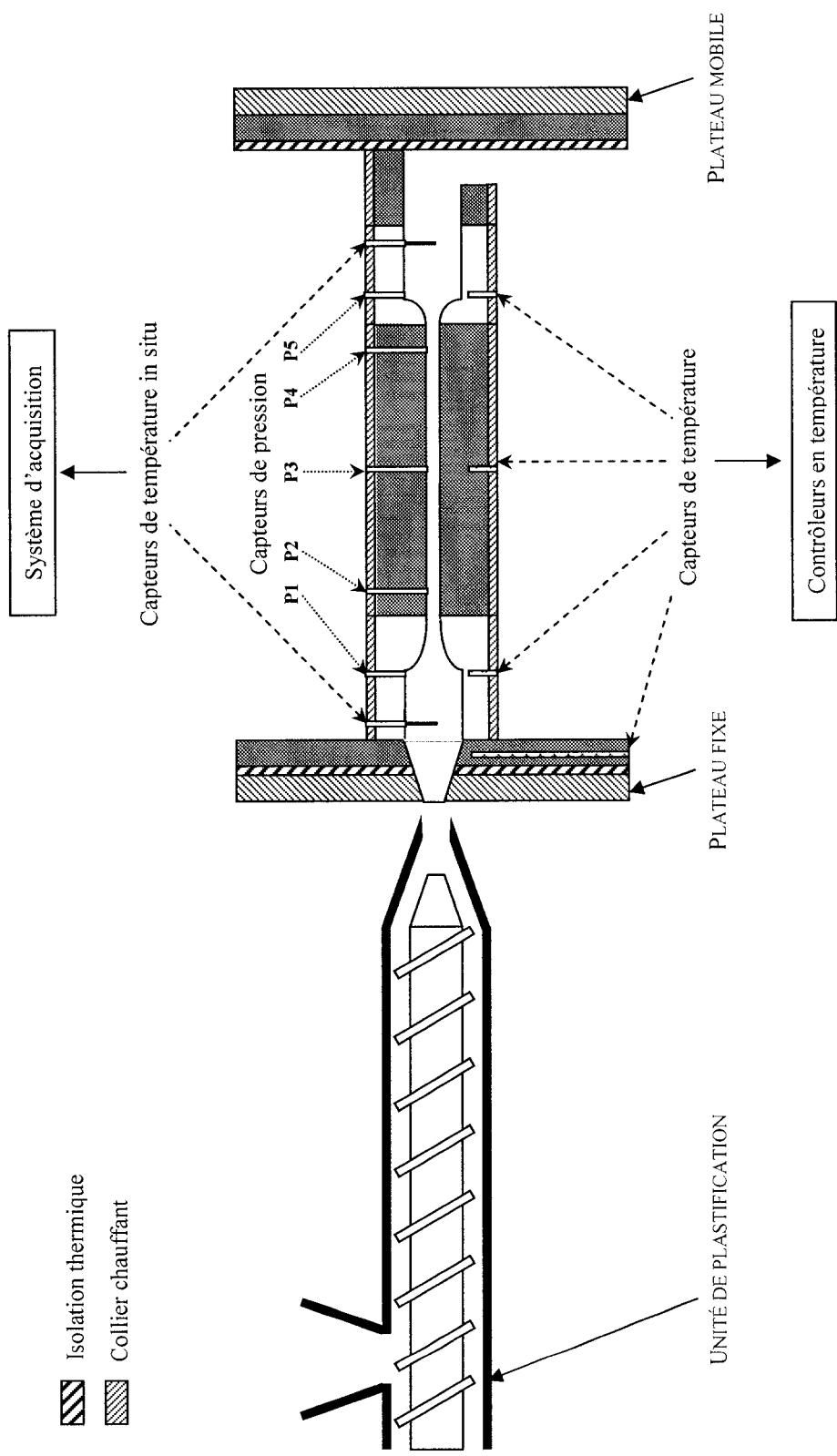


Figure II.28 Schéma du rhéomètre en ligne

II.2.3.2 Analyse des résultats

i) *Signaux des capteurs de pression et des capteurs de température in situ*

La figure II.29 présente les signaux des capteurs de pression de la fente rectangulaire en fonction du temps pour un taux de cisaillement apparent égal à 5019 s^{-1} (39). Dans un premier temps, les pressions augmentent ce qui correspond au développement de l'écoulement à l'intérieur de la fente puis des pressions relativement stables sont obtenues indiquant que le régime établi est atteint. Les pressions d'équilibre sont calculées à partir des moyennes sur cette période. Aucune différence notable n'a été relevée entre l'établissement des profils de pression du polypropylène et du polypropylène chargé de fibres à basse vitesse comme à haute vitesse d'injection.

Les températures délivrées par les deux capteurs de température in situ ne sont pas directement assimilables aux températures du fluide en amont et en aval de la filière plate. Leur présence affecte en effet l'écoulement du fluide et génère ainsi de la dissipation visqueuse. De plus, pour les plus hautes vitesses d'injection, leur temps de réponse est supérieur au temps d'injection et ne permet pas d'atteindre une température d'équilibre. Ces deux phénomènes deviennent apparents pour nos matériaux pour des vitesses d'injection supérieures à 1 mm/s (Figure II.30 & Figure II.31). L'amélioration de ces mesures nécessiterait d'augmenter la réponse dynamique des capteurs, de limiter les risques d'erreur par conduction et de réduire la dissipation visqueuse en utilisant des thermocouples parallèles à la direction de l'écoulement et pointant dans le sens contraire de l'écoulement [70].

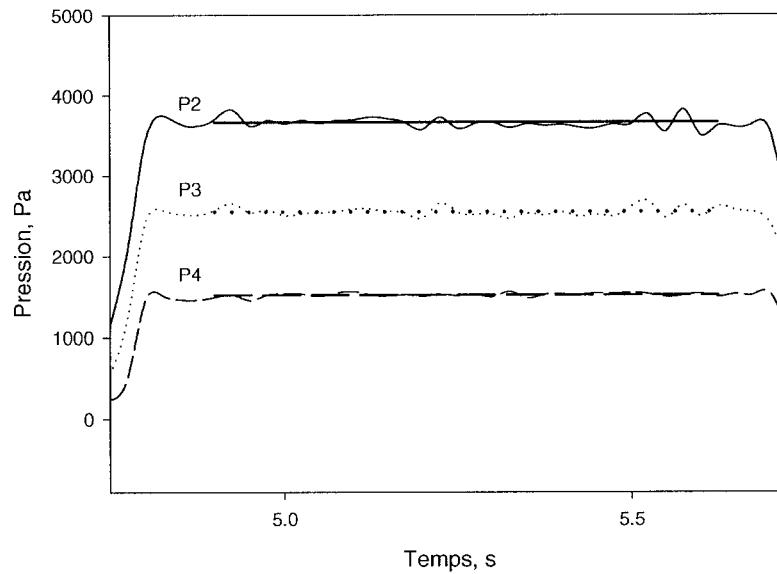


Figure II.29 Signaux des capteurs de pression en fonction du temps pour le polypropylène renforcé de 30 % en masse de fibres à 200°C (Rhéomètre en ligne)

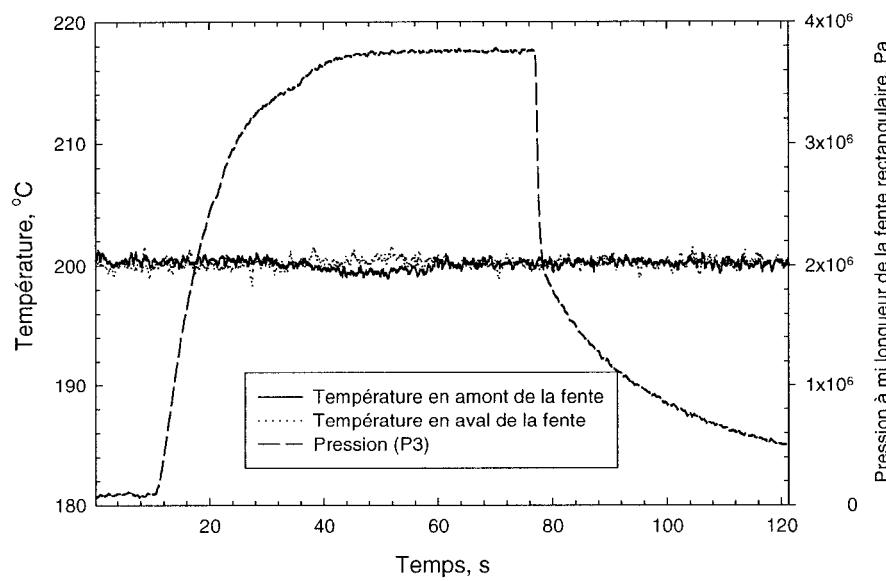


Figure II.30 Profils de température in situ pour une vitesse d'injection de 0.2 mm/s (Rhéomètre en ligne)

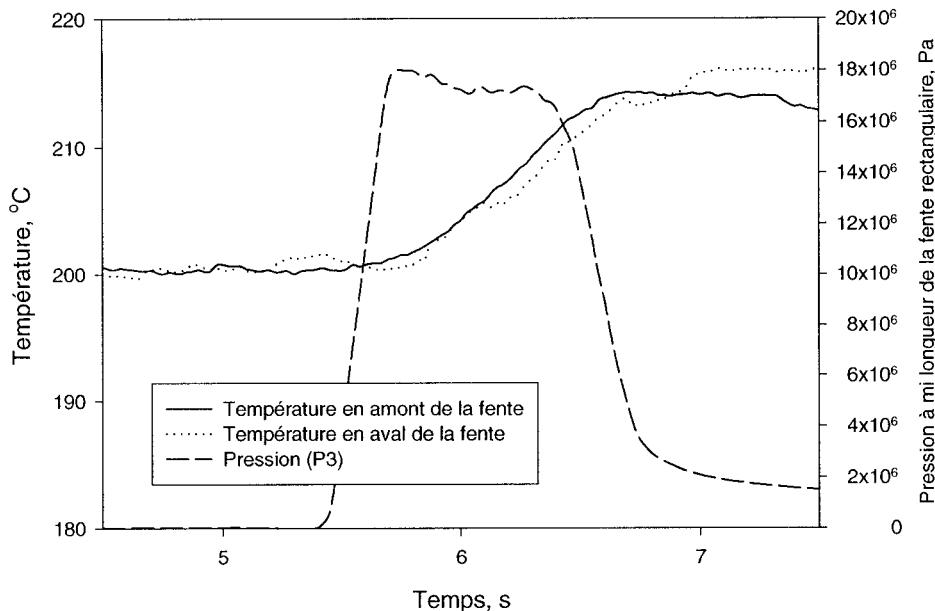


Figure II.31 Profils de température in situ pour une vitesse d'injection de 104 mm/s (Rhéomètre en ligne)

ii) Viscosité en cisaillement

L'analyse se fait de la même façon que pour le rhéomètre capillaire à l'exception de la correction de Bagley qui n'est plus utile ici, étant donné que les capteurs de pression sont situés directement à la paroi de la fente. En revanche, une condition supplémentaire vient s'ajouter aux hypothèses posées pour le rhéomètre capillaire : l'écoulement du fluide ne doit pas être perturbé par la présence des parois latérales. Il faut de plus s'assurer que le profil de pression à l'intérieur de la fente est linéaire. Le cas échéant montre qu'une des hypothèses citées précédemment n'est pas satisfaite. En effet, le fluide s'échauffe significativement lorsque le taux de cisaillement augmente ce qui entraîne une diminution de la viscosité du fluide. En contrepartie, la pression augmente et par conséquent la

viscosité du fluide. Si les deux effets se compensent, il est possible de conserver des profils de pression linéaires pour des taux de cisaillement important.

La contrainte à la paroi corrigée pour les effets des parois latérales, le taux de cisaillement apparent et réel s'écrivent alors de la façon suivante [87].

$$\tau_w = \frac{H\Delta P}{2(1+H/w)L} \quad (38)$$

$$\dot{\gamma}_a = \frac{6Q}{wH^2} \quad (39)$$

$$\dot{\gamma} = \frac{1}{3} \left\{ 2 + \frac{d \log \dot{\gamma}_a}{d \log \tau} \right\} \dot{\gamma}_a \quad (40)$$

où L est la longueur de la fente, H son épaisseur et w sa largeur.

Pour des vitesses de cisaillement comprises entre 13 et 14 000 s^{-1} , les viscosités en cisaillement obtenues pour le polymère chargé et non chargé sont confondues (Figure II.32). Ce résultat s'accorde avec les conclusions apportées par la rhéométrie capillaire. La superposition des résultats donnés par ces deux techniques est présentée à l'annexe IV. Aucune correction majeure des résultats, pour contrer l'influence de l'échauffement visqueux et de la pression, ne semble nécessaire étant donné que les profils de pression sont linéaires (Figure II.33 & Annexe III).

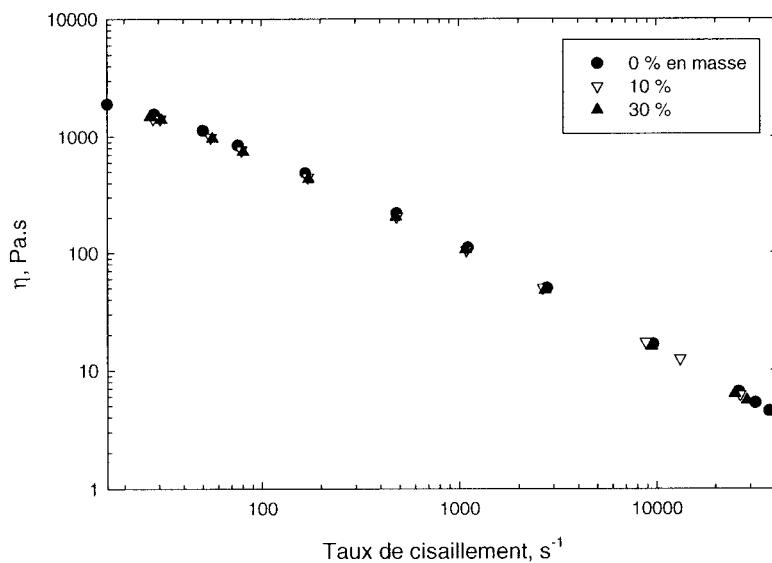


Figure II.32 Influence de la concentration massique de fibres sur la viscosité en cisaillement du polypropylène à 200°C (Rhéomètre en ligne)

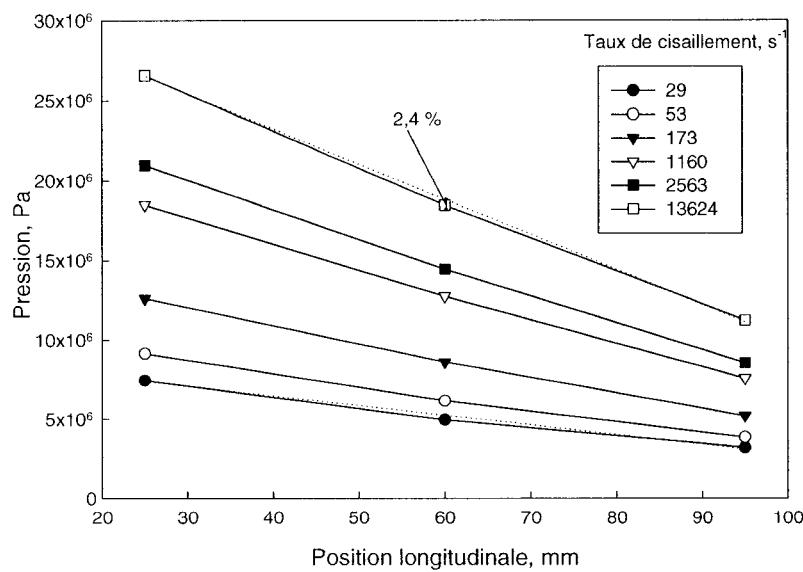


Figure II.33 Profils de pression dans la filière plate pour le polypropylène à 200°C (Rhéomètre en ligne)

iii) Application du principe de superposition temps température

La courbe d'écoulement du polypropylène non chargé et du polypropylène renforcé de 30 % en masse de fibres de verre ont été étendues avec des mesures effectuées à 180 et 220°C. Pour cela, l'ensemble des consignes en température du dispositif a été diminué de 20°C pour la première température et augmenté de 20°C pour la seconde (à l'exception de la consigne de la zone 1 de la vis d'injection). La courbe maîtresse de viscosité, de chacun des deux matériaux, est ensuite obtenue en appliquant le principe de superposition temps-température décrit au paragraphe II.2.1.1 (Figure II.34 & Figure II.35). La gamme de vitesse de cisaillement balayée se déploie ainsi de 10 à 25 000 s⁻¹.

iv) Présence de glissement aux parois

D'autres essais ont été menés afin de vérifier la présence éventuelle de glissement aux parois. Il peu être détecté en utilisant des filières de géométrie semblables mais d'états de surface différents. La filière utilisée a un aspect de surface lisse et donc propice au glissement. La modification de cet aspect de surface avec du papier sablé n'a pas donné de résultats concluants en raison de sa mauvaise adhésion aux parois.

Une autre technique consiste à faire varier la hauteur de la filière. La viscosité estimée du polypropylène à partir de deux filières de hauteurs différentes ($h = 2$ et 2.64 mm) se superposent parfaitement même aux plus hauts taux de cisaillement (Figure II.36). Aucun glissement n'est donc mis en évidence. Cependant, cette absence de glissement aux parois peut être accentué par l'influence des parois latérales qui vient compenser la présence de glissement. Les parois latérales ne sont pas en effet considérées lors de

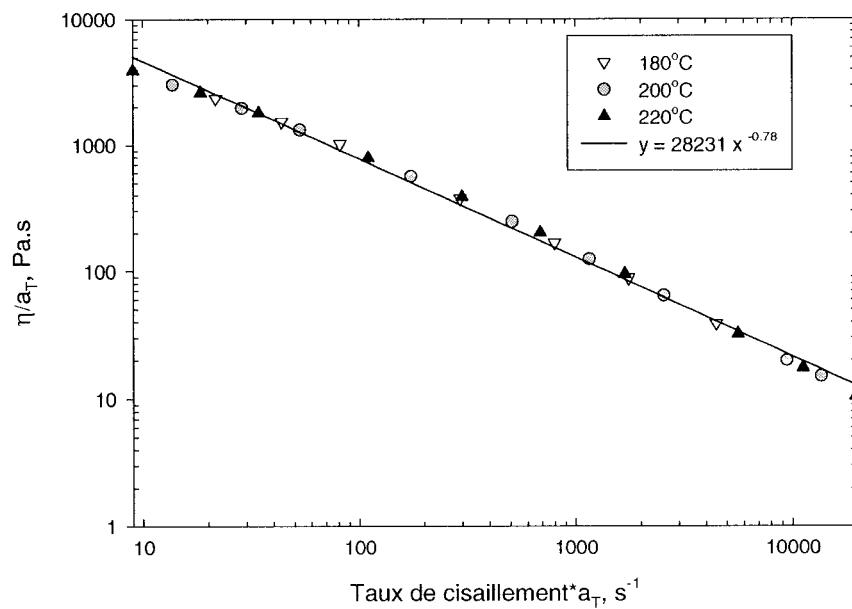


Figure II.34 Courbe maîtresse de viscosité pour le polypropylène à 200°C (Rhéomètre en ligne)

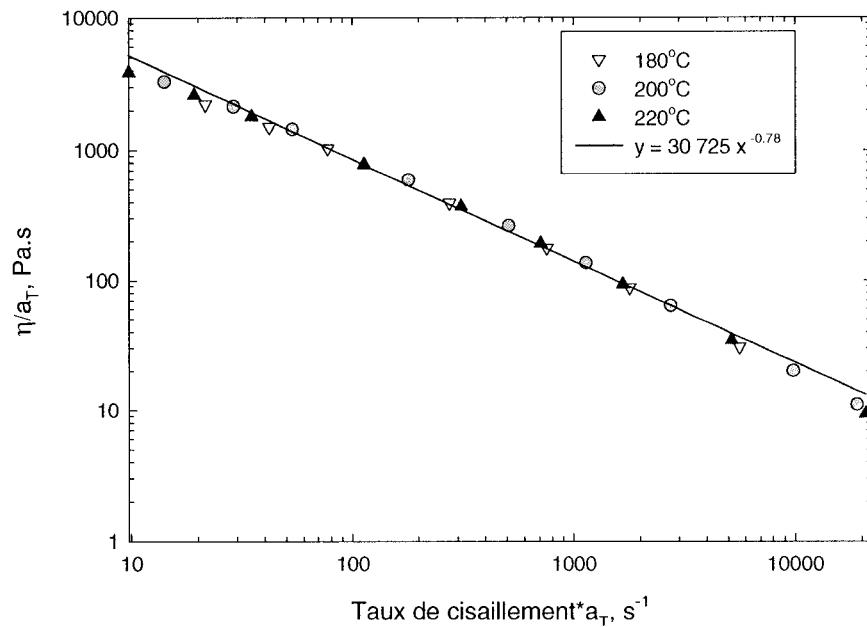


Figure II.35 Courbe maîtresse de viscosité pour le polypropylène renforcé de 30 % de fibres à 200°C (Rhéomètre en ligne)

l'analyse. La perte de charge due à la friction au niveau des parois principales est ainsi surestimée alors qu'elle est sous-estimée en présence de glissement. L'influence du glissement est d'autant plus conséquent que la hauteur de la filière est faible alors que dans ce cas, celle liée aux parois latérales diminue ce qui permet alors de les différencier. Une superposition similaire des résultats est également obtenue pour le polypropylène renforcé de 10 % en masse de fibres de verre ($L_n = 530 \mu\text{m}$) (Figure II.37). Un rapport entre la hauteur de la filière et la taille des fibres égale à 3.8 s'avère donc suffisant pour que les interactions entre les fibres et les parois de la filière plate soient négligeables.

v) *Première différence des contraintes normales*

L'estimation de la première différence des contraintes normales à partir de la pression de sortie de la fente est couramment utilisée mais aussi controversée. La première corrélation fut posée par Forgacs et Manson [42] (41) et étendue par la suite par Han et al. [71] (42).

$$N_1(\tau_w) = P_{\text{sortie}} \quad (41)$$

$$N_1 = P_{\text{sortie}} \left(1 + \frac{d \ln P_{\text{sortie}}}{d \ln \tau_w} \right) \quad (42)$$

Ces auteurs assument que l'écoulement est complètement développé à la sortie de la filière et par conséquent que seule la contrainte normale contribue à la pression de sortie. Choplin et Carreau [72] remettent en question cette hypothèse en analysant l'écoulement de sortie à partir d'un bilan macroscopique d'énergie mécanique [73]. Pour l'écoulement

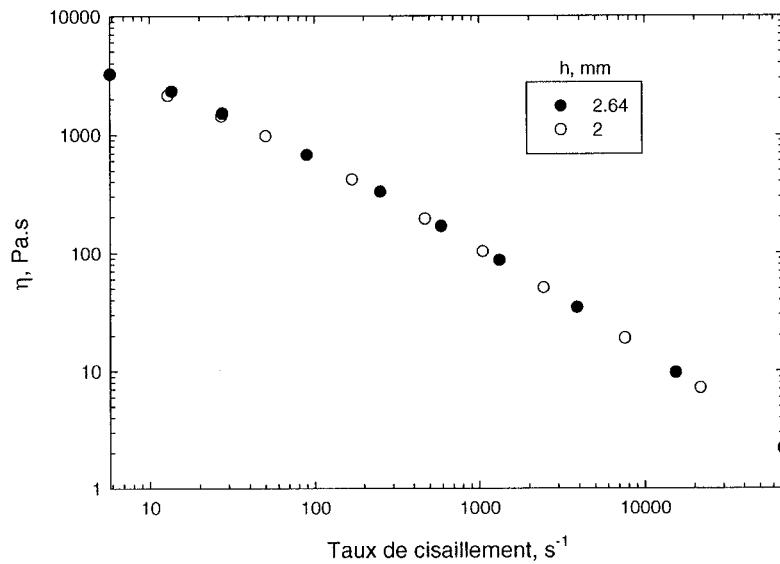


Figure II.36 Viscosité du polypropylène mesurée pour deux épaisseurs différentes de la fente rectangulaire (Rhéomètre en ligne) ; $T = 200^\circ\text{C}$

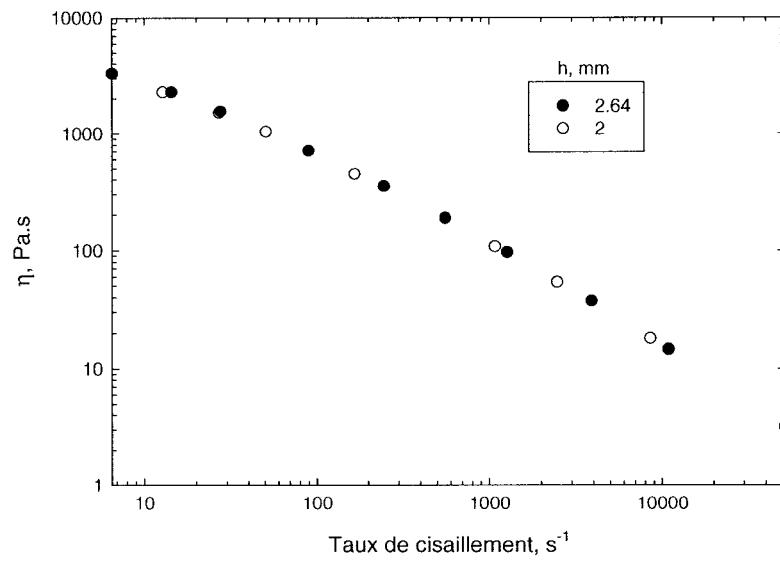


Figure II.37 Viscosité du polypropylène renforcé de 10 % en masse de fibres mesurée pour deux épaisseurs différentes de la fente rectangulaire (Rhéomètre en ligne) ; $T = 200^\circ\text{C}$

stationnaire d'un fluide incompressible viscoélastique, l'expression générale de ce bilan est la suivante :

$$\Delta \left(\frac{1}{2} \rho \langle v_x^3 \rangle S \right) + \Delta (\langle p v_x \rangle S) + \Delta (\langle \tau_{xx} v_x \rangle S) + E_v = 0 \quad (43)$$

Il diffère des bilans traditionnels par la présence du terme $\langle \tau_{xx} v_x \rangle$ induit par la nature élastique du fluide. Pour une expansion soudaine, l'application de ce bilan permet d'écrire une pression de sortie adimensionnelle sous la forme suivante :

$$\frac{\Delta P_{sortie}}{2 \tau_w} = n_{tot} = n_v - n_c + n_{\psi_1} \quad (44)$$

où pour un matériau visqueux (faible nombre de Reynolds) le facteur de correction, n_c , pour la variation d'énergie cinétique est négligeable. n_v est le terme de correction pour la dissipation visqueuse dû au réarrangement du profil de vitesse à la sortie et n_{ψ_1} représente le terme de correction dû aux contraintes normales. L'hypothèse précédente revient à négliger le terme, n_v , qui selon les travaux de Choplín et Carreau [72] contribue de façon importante à la pression de sortie. Les auteurs ont estimé cette contribution en déduisant de la perte de charge totale celles liées à l'inertie et aux contraintes normales. Pour ce faire, la première différence des contraintes normales a été mesurée à l'aide d'un rhéomètre Weissenberg et modélisée par une loi de puissance (45).

$$N_1 = -(\tau_{xx} - \tau_{yy}) = k \tau'_{xy} \quad (45)$$

La figure II.38 présente les termes majeurs intervenant dans le bilan d'énergie mécanique (44). Les paramètres des loi de puissance utilisées pour le développement de Choplín et Carreau correspondent pour la viscosité à ceux donnés par les mesures avec la filière plate (Figure II.34) et pour la première différence de contrainte normale, à ceux déterminés avec le rhéomètre à disques concentriques (Figure II.21). Une forte extrapolation est donc utilisée. Le coefficient d'énergie cinétique est négligeable tandis que n_v représente près de 90 % du coefficient de correction totale. La première différence des contraintes normales est donc surestimée si la dissipation visqueuse en sortie de filière est négligée comme c'est le cas aux figures II.39, II.47 et II.48. Cette conclusion permet d'expliquer l'écart observé à la figure II.39 entre les résultats obtenus avec un rhéomètre à plateaux parallèles et la fente rectangulaire. Une différence mineure est également observée entre le système chargé et la matrice.

A noter que pour l'ensemble des résultats reportés, les pressions de sortie et les contraintes aux parois qui leur sont associées sont supérieures aux limites inférieures données par Han [71] pour un polypropylène ($P_{\text{sortie}} > 50 \text{ kPa}$ et $\tau_w > 25 \text{ kPa}$). En dessous de ces valeurs limites, Han n'observe plus de corrélations satisfaisantes entre les mesures avec un rhéomètre cône et plan et la méthode de la pression de sortie. Il considère dans ce cas que l'extrapolation linéaire utilisée pour estimer la pression de sortie n'est plus valide.

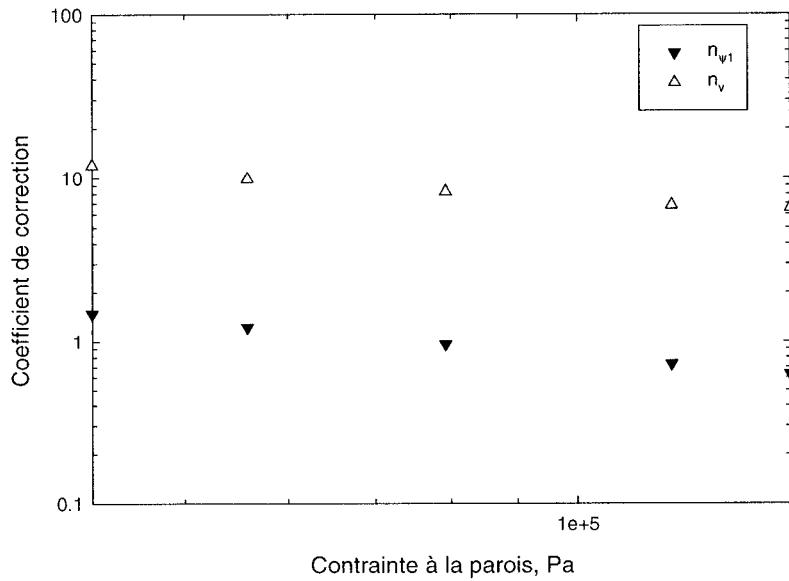


Figure II.38 Coefficients de correction visqueux et des contraintes normales pour le polypropylène (Rhéomètre en ligne) ; $T = 200^\circ\text{C}$

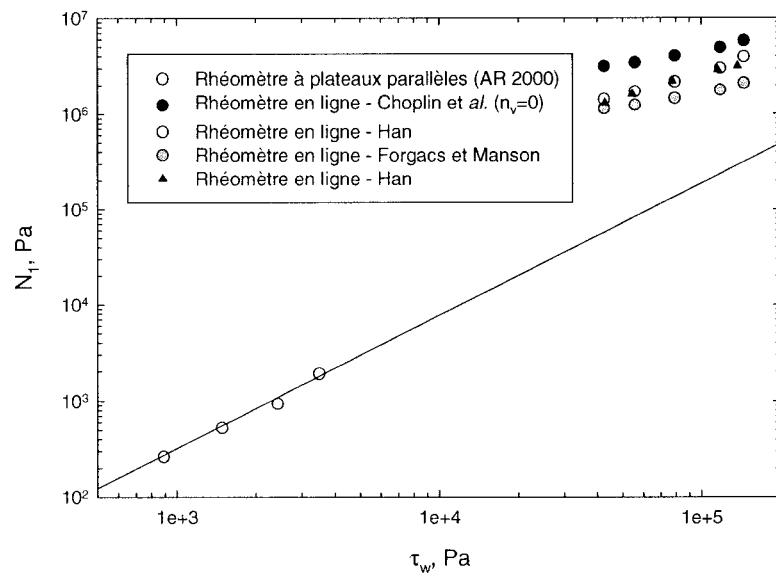


Figure II.39 Première différence des contraintes normales pour le polypropylène non renforcé (○) et renforcé de 30 % en masse de fibres (▲) (Rhéomètre en ligne & AR2000)

vi) *Microscope électronique à balayage*

L'état d'orientation des fibres dans la fente rectangulaire a été observé à l'aide d'un microscope électronique à balayage Jeol JSM 840. Des échantillons de polypropylène renforcés de 30 % en masse de fibres ont pour cela été prélevés de la fente rectangulaire après une injection à une vitesse de 110 mm/s (i.e., $\dot{\gamma}_a = 5308 \text{ s}^{-1}$). Les plans d'observation ont été obtenus par rupture fragile des échantillons après les avoir plongés dans de l'azote liquide.

Aucune évolution probante de l'orientation des fibres le long de la fente n'est observée avec les clichés II.40, II.41, II.42 et II.43. Les fibres sont globalement comprises dans le plan de cisaillement. Il est de plus difficile de conclure quant à leur orientation dans ce plan et sur la présence d'effets de parois et de migration. Il apparaît donc nécessaire pour conclure de faire appel à une méthode d'observation quantitative.

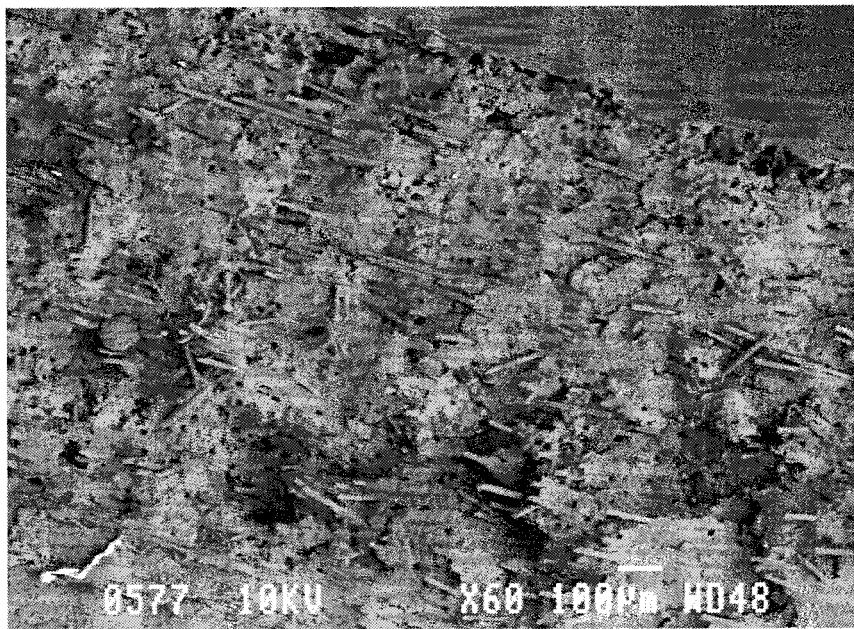


Figure II.40 Vue longitudinale à l'entrée de la fente rectangulaire pour le polypropylène renforcé de 30 % en masse de fibres de verre suite à une injection à 110 mm/s

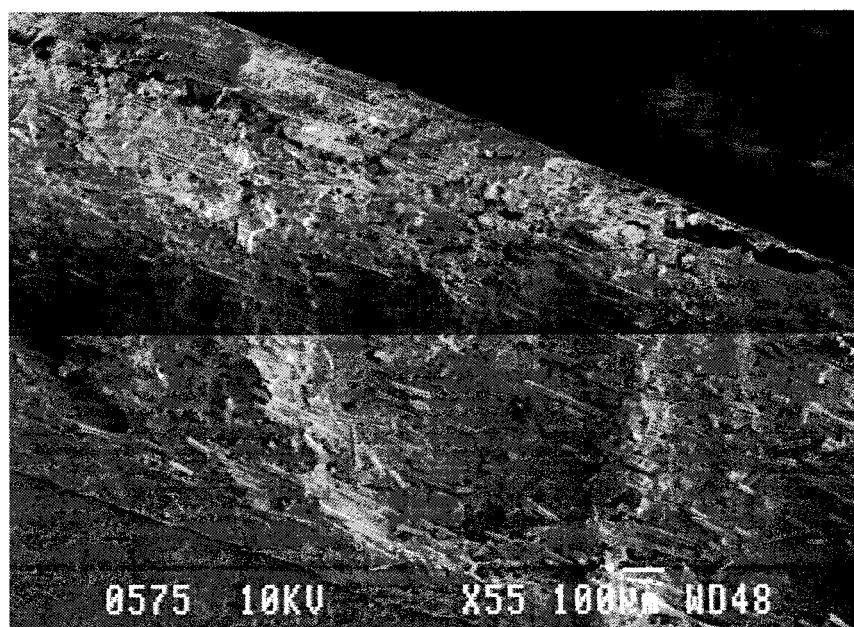


Figure II.41 Vue longitudinale à la sortie de la fente rectangulaire pour le polypropylène renforcé de 30 % en masse de fibres de verre suite à une injection à 110 mm/s

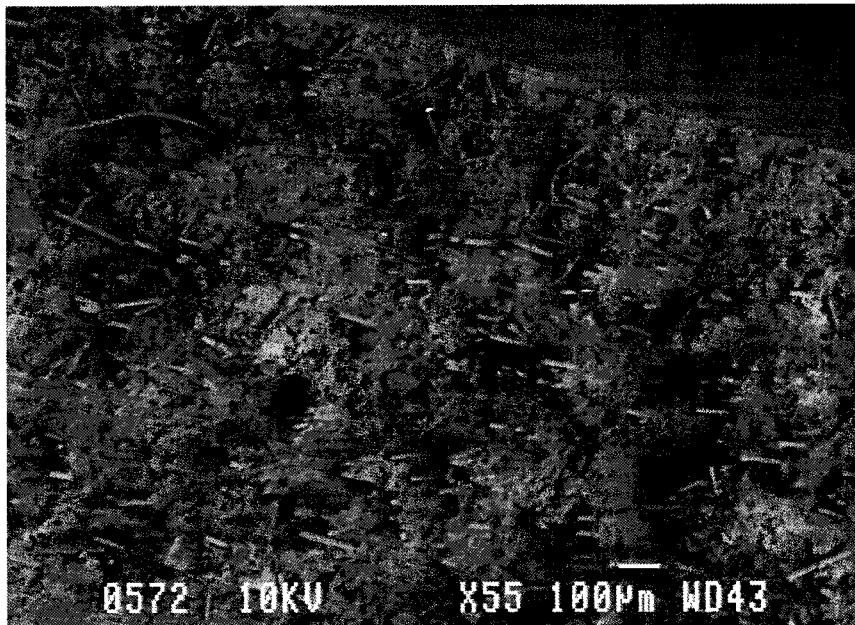


Figure II.42 Vue transversale à l'entrée de la fente rectangulaire pour le polypropylène renforcé de 30 % en masse de fibres de verre suite à une injection à 110 mm/s

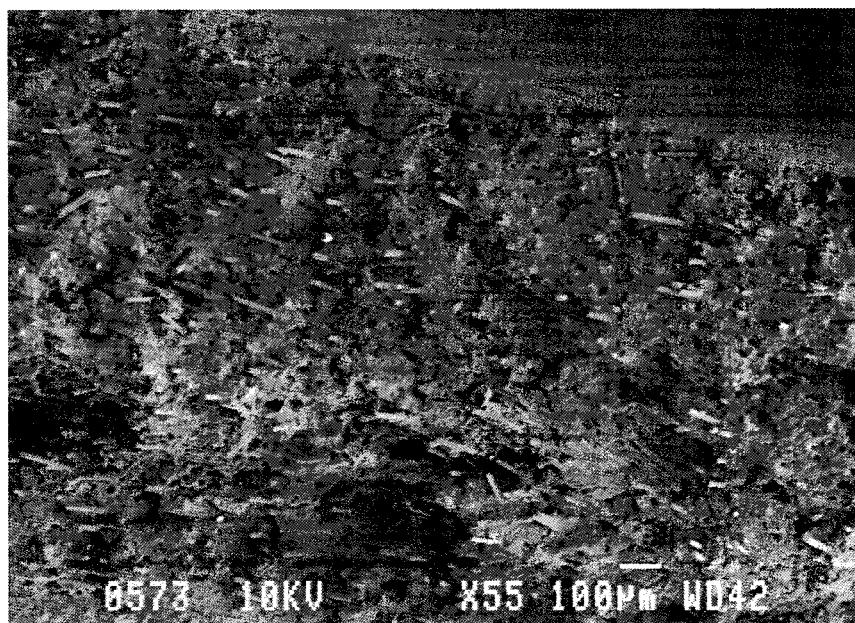


Figure II.43 Vue transversale en sortie de la fente rectangulaire pour le polypropylène renforcé de 30 % en masse de fibres de verre suite à une injection à 110 mm/s

II.3 Conclusion

Les viscosités en cisaillement obtenues sont récapitulées sur les figures suivantes. Elles permettent de vérifier l'empirisme de Cox-Merz qui associe la viscosité complexe à la viscosité en régime permanent des polymères en solution et des polymères fondus :

$$\eta(\dot{\gamma})|_{\dot{\gamma}=\omega} = \eta^*(\omega) = \sqrt{\eta^2(\omega) + \eta'^2(\omega)} \quad (46)$$

Cette relation s'accorde bien pour le polypropylène vierge (Figure II.44) mais elle est mise en défaut pour le polypropylène renforcé de fibres de verre aux plus hauts taux de cisaillement (Figure II.45 & Figure II.46). A noter que les viscosités complexes reportées pour les matériaux chargés correspondent à celles mesurées suite à leur précisaillement jusqu'à l'équilibre. Les structures initiales lors de ces mesures sont donc identiques à celles présentées lors des mesures en régime permanent aux faibles taux de cisaillement. La divergence des résultats aux plus hauts taux de cisaillement traduit alors vraisemblablement la formation d'une structure lors de l'écoulement en régime permanent qui diffère de celle présente en régime dynamique.

Les paramètres de la loi de Carreau par Yasuda et *al.* (46) de nos matériaux sont résumés dans le tableau II.6. Ils ont été estimés en considérant les données issues du rhéomètre plan-plan en régime permanent et en mode dynamique, du rhéomètre capillaire et du rhéomètre filière plate. Les deux classes de paramètres se différencient par l'importance accordée aux hauts taux de cisaillement.

$$\eta = \frac{\eta_0}{(1 + (\lambda \dot{\gamma})^a)^{(1-n)/a}} \quad (47)$$

Tableau II.6 Paramètres du modèle de Carreau Yasuda pour les différents systèmes

%massique de fibres	Classe	η_0 , Pa.s	λ , s	n	a
0	1	26 910	1.02	0.32	0.57
	2	25 390	0.63	0.20	0.62
10	1	30 075	0.88	0.26	0.57
	2	29 512	0.81	0.20	0.63
30	1	50 510	0.52	0.17	0.38
	2	43 810	1.00	0.20	0.49

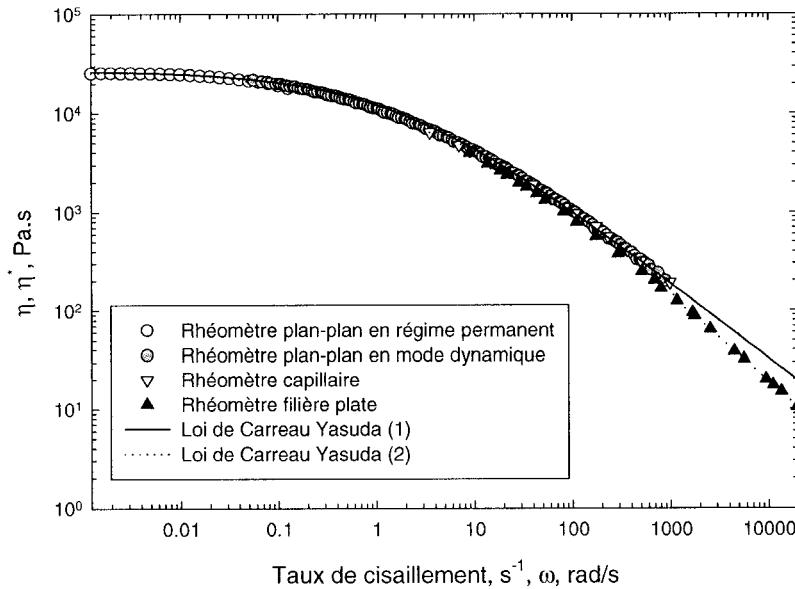


Figure II.44 Courbe d'écoulement du polypropylène à 200°C; Règle de Cox-Merz

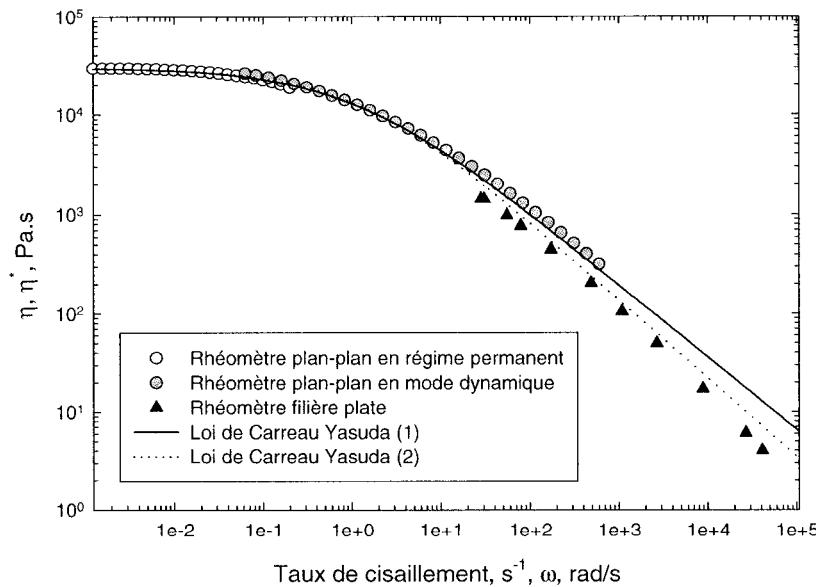


Figure II.45 Courbe d'écoulement du polypropylène renforcé de 10 % en masse de fibres de verre courtes à 200°C; Règle de Cox-Merz

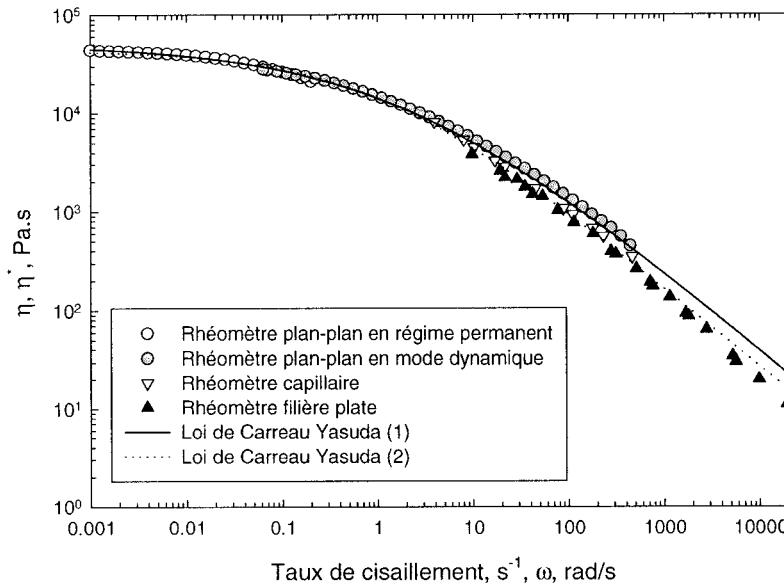


Figure II.46 Courbe d'écoulement du polypropylène renforcé de 30 % en masse de fibres de verre courtes à 200°C; Règle de Cox-Merz

Un second empirisme qui prédit le coefficient des contraintes normales primaires à partir de résultats de viscoélasticité linéaire a été proposé par Laun [21] :

$$\psi_1(\dot{\gamma}) = -\frac{N_1(\dot{\gamma})}{\dot{\gamma}^2} = \frac{2G'(\omega)}{\omega^2} \left[1 + \left(\frac{G'}{G''} \right)^2 \right]^{0.7} \Bigg|_{\omega=\dot{\gamma}} \quad (48)$$

En raison de son origine purement empirique, son domaine de validité doit être, tout comme le précédent, vérifié pour chaque classe de matériaux.

La figure II.47 présente le coefficient des contraintes normales primaires déduit des différentes mesures précédentes. Ceux donnés par le rhéomètre filière plate sont représentés à titre indicatif au regard du développement fait au paragraphe (II.2.3.2v).

Une corrélation satisfaisante est observée entre le rhéomètre plan-plan en mode dynamique et ce dernier en mode permanent. L'empirisme de Laun semble alors s'appliquer à notre polypropylène tout comme il s'appliquait au polypropylène utilisé par Laun pour son étude. Par contre, en présence de fibres courtes les données s'ajustent nettement moins bien et elles ne permettent pas de valider cet empirisme (Figure II.48).

A noter que les données aux plus faibles taux de déformation (Figure II.47 & Figure II.48) ne sont pas à fortiori significatives. Le cas contraire, elles signifient que la contrainte normale est constante aux faibles taux de déformation .

L'ajout de fibres à notre polypropylène a pour effet d'augmenter le coefficient des contraintes normales primaires mesuré avec le rhéomètre plan-plan. Cela ne signifie pas pour autant que les propriétés élastiques de notre suspension soient également augmentées. L'angle de déphasage n'est pas en effet affecté par la présence de fibres (Figure II.10). Cette augmentation refléterait davantage la présence d'interactions entre les fibres et d'effets de paroi [37]. Finalement, la pression de sortie extrapolée pour la filière plate n'est pas modifiée significativement avec l'ajout de fibres contrairement aux résultats rapportés par Kitano et *al.* [12] et Barbosa et *al.* [40].

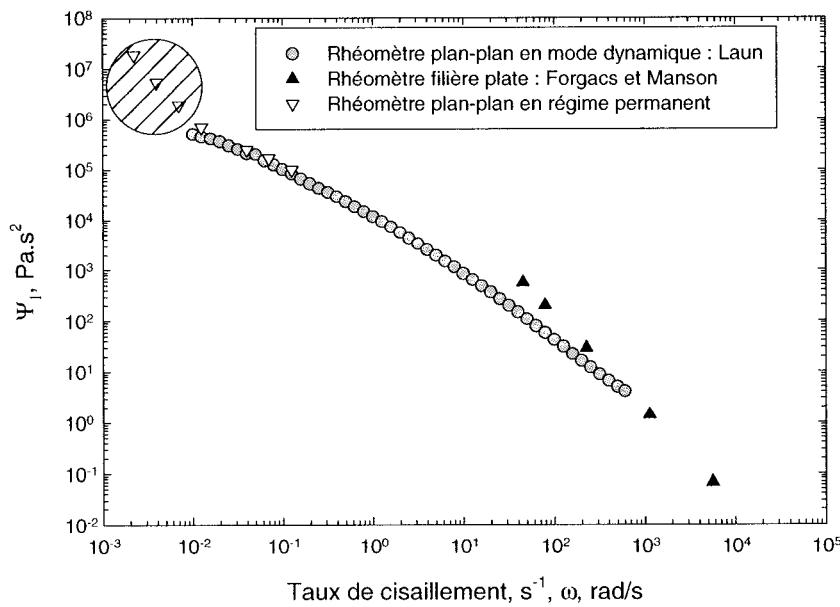


Figure II.47 Récapitulatif des coefficients des contraintes normales primaires pour le polypropylène ;
 $T = 200^\circ\text{C}$

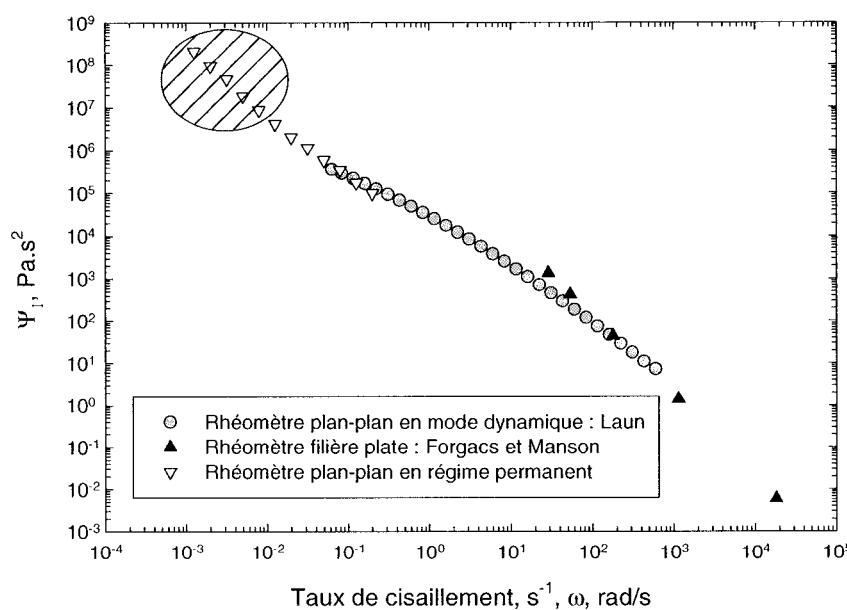


Figure II.48 Récapitulatif des coefficients des contraintes normales primaires pour le polypropylène renforcé de 30 % en masse de fibres ; $T = 200^\circ\text{C}$

CHAPITRE III : COMPORTEMENT RHÉOLOGIQUE EN ÉLONGATION

Quand un polymère fondu s'écoule à travers une géométrie convergente, telle que dans une filière d'extrusion ou une buse et un moule d'injection, il est soumis à une accélération qui crée une déformation élongationnelle uniaxiale ou planaire. Les écoulements élongationnels sont donc rencontrés dans tous les procédés de mise en forme des polymères fondus. Leur réponse en élongation jouent alors un rôle prépondérant sur leur mise en œuvre.

Des mesures précisent de viscosité élongationnelle nécessitent d'appliquer un taux de déformation constant, ce qui est difficilement réalisable pour les polymères fondus. Seuls les rhéomètres développés par Münsted [48] et Meissner [74] le permettent. Mais ils sont limités à des taux d'élongation de l'ordre de 1 s^{-1} , loin de ceux engendrés lors des procédés industriels. De plus, la viscosité élongationnelle est considérablement plus dépendante de la pression que son homologue en cisaillement [75]. Il est donc crucial de la mesurer dans des conditions proches de celles rencontrées lors de leur mise en forme. Une méthode simple pour générer des écoulements élongationnels à des taux d'élongation élevés consiste à imposer au fluide un écoulement convergent. Cogswell [76] fut le premier à proposer une méthode pour estimer la viscosité élongationnelle apparente à partir de la perte de pression dans un convergent. D'autres modèles ont été proposés par Binding [77] et Mackay et Astarita. [78]. Ils sont appliqués par la suite à nos matériaux après les avoir préalablement adaptés au cas des écoulements convergents planaires hyperboliques.

III.1 Méthodes d'analyse des écoulements convergents

III.1.1 Profil de convergence

La méthode de Cogswell [76] et la méthode de Binding [77] sont explicitées par la suite pour les cas de convergence forcée, c'est-à-dire, où les lignes d'écoulement du fluide suivent le profil du convergent. On considère alors tout au long des analyses qui vont suivre qu'il n'y a pas de zones de recirculation ou de zones mortes dans le convergent. La géométrie d'écoulement considérée est un convergent planaire à profil hyperbolique qui permet d'imposer un taux d'élongation constant au fluide tel que défini par James et *al.* [79] et Kim et *al.* [80].

Pour une géométrie planaire (Figure III.1), le taux d'élongation moyen s'écrit :

$$\langle \dot{\epsilon}(z) \rangle = \frac{d\langle V_z \rangle}{dz} = \frac{Q}{2w} \frac{d}{dz} \left(\frac{1}{h(z)} \right) \quad (49)$$

où, $\langle V_z \rangle$ est la vitesse moyenne pour une position z donnée, Q le débit volumique, w la largeur et h la hauteur du convergent telle qu'illustrée à la figure III.2.

Pour obtenir un taux d'élongation moyen constant selon z , il faut alors respecter le profil suivant :

$$h(z) = \left(2 \frac{\langle \dot{\epsilon} \rangle_{wz}}{Q} + \frac{1}{h_0} \right)^{-1} \quad (50)$$

Le taux d'élongation moyen s'écrit alors :

$$\langle \dot{\varepsilon}(Q) \rangle = \frac{Q}{2wL} \left(\frac{1}{h_f} - \frac{1}{h_0} \right) \quad (51)$$

où h_0 est la hauteur initiale du convergent et h_f sa hauteur finale.

À partir de l'équation précédente, deux convergents de longueurs différentes mais dont le temps de résidence du fluide (Annexe VI) est identique pour un même taux d'élongation ont été dessinés (Figure III.1 (a) et (b) & Tableau III.1). Les résultats donnés par ces deux convergents permettront de compléter l'étude numérique sur l'influence de la géométrie de Park et *al.* [81] basée sur les résultats expérimentaux de James et *al.* [79]. Les auteurs ont démontré l'influence du temps de résidence du fluide sur l'estimation de la viscosité élongationnelle. Ils ont pour cela comparé la viscosité élongationnelle estimée à partir de deux convergents de longueurs différentes (Figure III.2). Selon leurs travaux, la viscosité élongationnelle du matériau considéré (fluide M_1 modélisé par le modèle K-BKZ) estimée à partir d'un convergent augmente avec sa longueur.

Tableau III.1 Caractéristiques des convergents utilisés

Convergent	h_0 , mm	h_f , mm	Longueur, L, mm	Taux d'élongation maximum, $\dot{\varepsilon}_{\max}$, s^{-1} ($Q_{\max} = 161$ mL/s)
a	4	1	12	200
b	4	1	24.1	100

III.1.2 Méthode de Cogswell pour un convergent planaire hyperbolique

Cogswell assume que la perte de charge dans un convergent est la somme d'une perte de charge due au cisaillement, ΔP_s , et d'une perte de charge due à l'elongation, ΔP_e . Il considère que ces deux contributions sont séparables et suppose que :

- la viscosité en cisaillement suit une loi puissance ($\eta_s = k\dot{\gamma}^{n-1}$),
- la viscosité élongationnelle est indépendante de la contrainte ($\eta_e = l\dot{\epsilon}^{t-1}$ avec $t=1$),
- les effets d'inertie sont négligeables,
- le taux d'elongation est défini par l'équation (51).

Au regard de ces hypothèses, la perte de charge due au cisaillement est calculée pour un convergent conique et planaire avec l'hypothèse de lubrification hydrodynamique. Pour un convergent hyperbolique planaire comme défini précédemment, cette perte de charge est donnée en considérant la correction de Rabinowitsch et une condition de non glissement aux parois par :

$$\Delta P_s(Q) = \left(\frac{6Q}{4w} \frac{2n+1}{3n} \right)^n \frac{kL}{2(n+1) \left(\frac{1}{h_f} - \frac{1}{h_0} \right)} \left[\left(\frac{1}{h_f} \right)^{2(n+1)} - \left(\frac{1}{h_0} \right)^{2(n+1)} \right] \quad (52)$$

Tandis que la chute de pression en élongation est donnée par l'expression :

$$\Delta P_e(Q) = \eta_e \frac{Q}{2wL} \left(\frac{1}{h_f} - \frac{1}{h_0} \right) \ln \left(\frac{h_0}{h_f} \right) \quad (53)$$

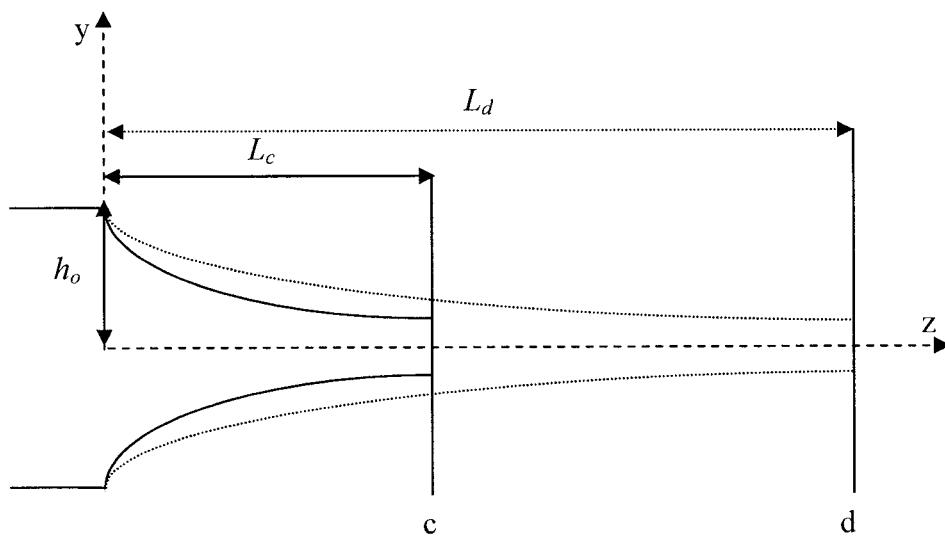


Figure III.1 Profil de deux convergents aux temps de résidence identiques pour un même taux d'elongation tel qu'utilisé pour cette étude

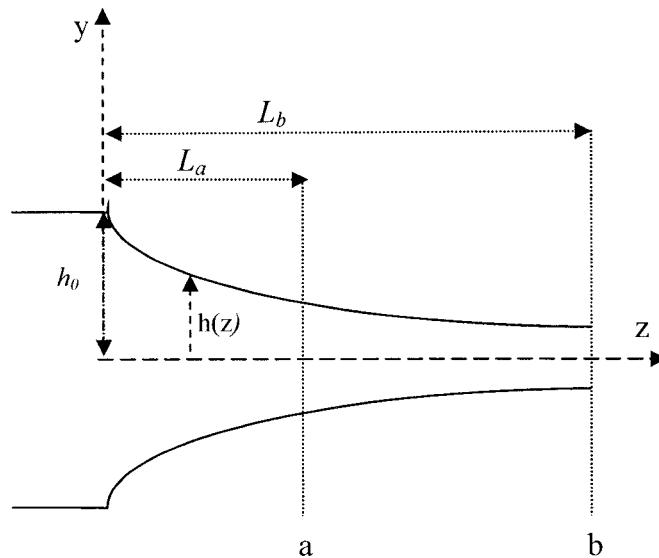


Figure III.2 Profil de deux convergents aux temps de résidence différents pour un même taux d'elongation tel qu'utilisé par Park et al. [81]

Nous pouvons étendre ce résultat pour évaluer le rapport entre ΔP_e et ΔP_s en écrivant la viscosité élongationnelle de la façon suivante :

$$\eta_e = l\dot{\epsilon}^{t-1} = l \left[\left(\frac{1}{h_f} - \frac{1}{h_0} \right) \frac{Q}{2wL} \right]^{(t-1)} \quad (54)$$

On trouve alors :

$$\frac{\Delta P_e}{\Delta P_s} = \frac{l \frac{Q^{t-n}}{w^{t-n} L^{t+1}} \left(\frac{1}{h_f} - \frac{1}{h_0} \right)^{(t-2n-1)} \ln \left(\frac{h_0}{h_f} \right)}{k \left(\frac{6}{4} \right)^n \left(\frac{2n+1}{3} \right)^n \frac{1}{2(n+1)}} \quad (55)$$

Pour un fluide newtonien, c'est à dire quand $n = t = 1$ et $k/l = 3$, la relation précédente devient :

$$\frac{\Delta P_e}{\Delta P_s} = \frac{8}{L^2} \left(\frac{1}{h_f} - \frac{1}{h_0} \right)^{-2} \ln \left(\frac{h_0}{h_f} \right) \quad (56)$$

Les deux convergents utilisés et définis au tableau II.1 peuvent dorénavant être différenciés plus clairement. Pour un même taux d'élongation, au regard de l'équation (52), les rapports de leur perte de charge due au cisaillement et à l'élongation sont :

$$\frac{\Delta P_{s-convergent_b} \Big|_{\dot{\epsilon}}}{\Delta P_{s-convergent_a} \Big|_{\dot{\epsilon}}} = 2^{n+1} \text{ et } \frac{\Delta P_{e-convergent_b} \Big|_{\dot{\epsilon}}}{\Delta P_{e-convergent_a} \Big|_{\dot{\epsilon}}} = 1 \quad (57)$$

Seule la contribution de la perte de charge liée au cisaillement différencie les deux convergents étant donné que leur temps de résidence est identique. Dans le cas où les

deux convergents permettraient d'obtenir des résultats similaires, la notion de découplage énoncée par Cogswell serait alors validée dans la limite de la précision des mesures.

III.1.3 Méthode de Binding pour un convergent planaire hyperbolique

Binding utilise l'hypothèse de Cogswell mais cette fois ci appliquée au découplage de l'énergie totale dissipée lors de l'écoulement du fluide. Il considère l'énergie dissipée par cisaillement, l'énergie dissipée par élongation ainsi que la variation d'énergie cinétique. Dans une analyse subséquente, Binding [82] dissocie également de l'énergie dissipée par élongation, la contribution de la première différence des contraintes normales en cisaillement. On considérera ici que cette contribution élastique est faible devant la dissipation visqueuse élongationnelle. Tout comme Cogswell, la viscosité en cisaillement est modélisée par une loi-puissance ($\eta_s = k\dot{\gamma}^{n-1}$) mais la viscosité élongationnelle n'est plus considérée comme indépendante de la vitesse d'élongation ($\eta_e = l\dot{\epsilon}^{l-1}$).

Il exprime alors le taux de travail par unité de volume par :

$$\dot{W} = \dot{W}_s + \dot{W}_e + \dot{W}_{\text{cinétique}} \quad (58)$$

où les contributions dues au cisaillement et à l'élongation sont respectivement données par :

$$\dot{W}_s = k|\dot{\gamma}|^{n+1}, \dot{W}_e = l|\dot{\epsilon}|^{l+1} \quad (59)$$

L'expression de la vitesse longitudinale nécessaire pour le calcul du taux de cisaillement et du taux d'elongation est obtenue en considérant l'écoulement comme étant complètement développé :

$$V_z = \frac{Q(2n+1)}{2w(n+1)h(z)} \left\{ 1 - \left(\frac{y}{h(z)} \right)^{1+1/n} \right\} \quad (60)$$

Le taux d'elongation et le taux de cisaillement s'écrivent alors en négligeant pour ce dernier les termes impliquant $(dh/dz)^2$ et d^2h/dz^2 :

$$\dot{\epsilon}(y, z) = \frac{\partial V_z}{\partial z} = \frac{Q(2n+1)}{2w(n+1)} \left\{ \left(\frac{2n+1}{n} \right) \left(\frac{y}{h(z)} \right)^{1+1/n} - 1 \right\} \frac{1}{h(z)^2} \left(-\frac{dh(z)}{dz} \right) \quad (61)$$

et

$$\dot{\gamma}(y, z) = \frac{\partial V_z}{\partial y} = -\frac{Q(2n+1)}{4wnh(z)^2} \left(\frac{y}{h(z)} \right)^{1/n} \quad (62)$$

Mackay et Astarita [78] ont souligné que le taux d'elongation ainsi défini est non nul aux frontières et donc en contradiction avec le profil de vitesse supposé précédemment. Les lignes de niveau du taux d'elongation adimensionnel, $\dot{\epsilon}(y, z)^* = \dot{\epsilon}(y, z)wh(z)^2/Q$, sont représentées respectivement pour un convergent planaire rectangulaire et un convergent planaire hyperbolique à la figure III.3 et à la figure III.4.

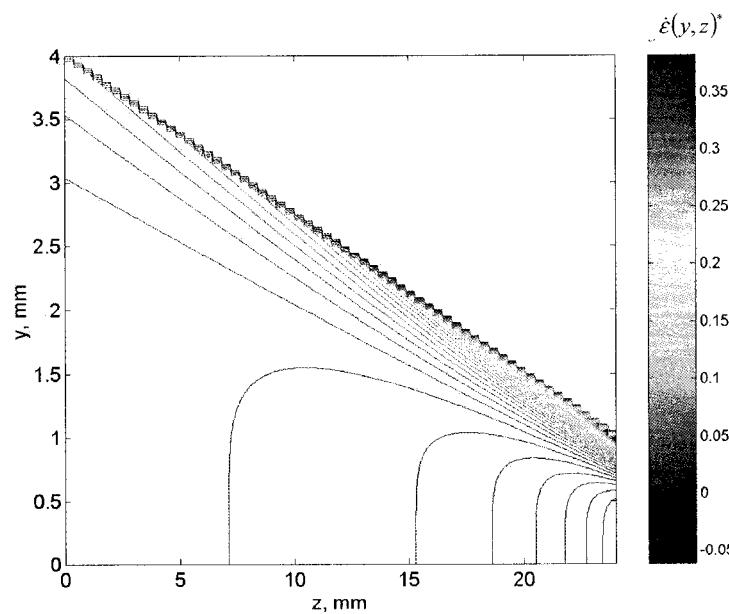


Figure III.3 Lignes de niveau du taux d'élongation adimensionnel selon Binding pour un convergent planaire rectangulaire ; $n=0.2$

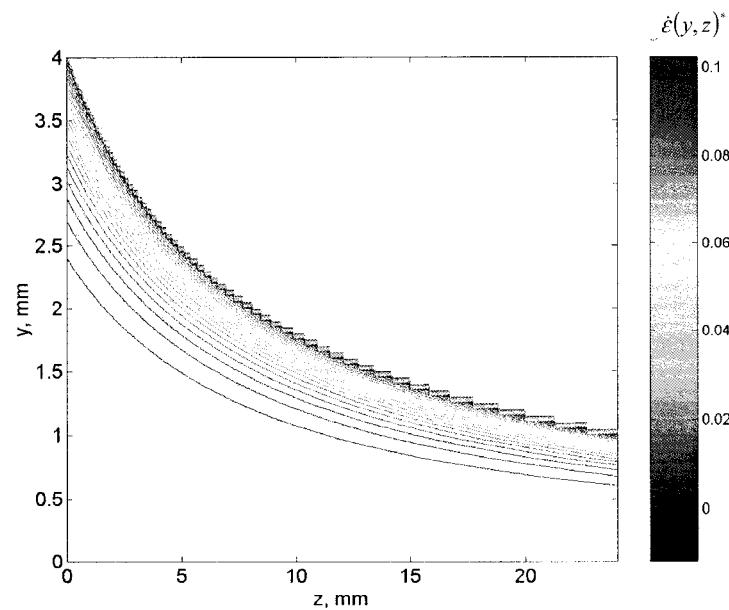


Figure III.4 Lignes de niveau du taux d'élongation adimensionnel selon Binding pour un convergent planaire hyperbolique ; $n=0.2$

On observe que le taux d'elongation est constant suivant les lignes de courant uniquement dans le cas d'un profil de convergence hyperbolique. Mais, il reste toutefois fonction de la hauteur du convergent.

Pour un élément de volume compris entre les plans z et $z+\delta z$, l'énergie totale dissipée s'exprime de la façon suivante :

$$\delta\dot{E} = 2w \left\{ \int_0^{h(z)} (\dot{W}_s + \dot{W}_e) dy \right\} \delta z + \delta\dot{W}_{cinétique} \quad (63)$$

L'intégration suivant la hauteur du convergent et l'évaluation de $\delta\dot{W}_{cinétique}$ permet alors d'écrire que :

$$\begin{aligned} \delta\dot{E} = & \frac{kQ}{h(z)} \left\{ \frac{Q(2n+1)}{2wnh(z)^2} \right\}'' \delta z + 2wh(z)J_{nt} \left\{ \frac{Q(2n+1)}{2w(n+1)h(z)^2} \left(\frac{-dh(z)}{dz} \right) \right\}^{t+1} \delta z \\ & + \frac{2W\rho(2n+1)^2Q^3}{3(3n+2)(4n+3)w^3h(z)^3} \left(\frac{-dh(z)}{dz} \right) \delta z \end{aligned} \quad (64)$$

Avec :

$$J_{nt} = \int_0^1 \left[abs \left\{ 1 - \left(\frac{2n+1}{n} \right) \phi^{1+\frac{1}{n}} \right\} \right]^{t+1} d\phi \quad (65)$$

Et donc :

$$\dot{E} = \int_0^l f \left(h(z), \frac{dh(z)}{z} \right) dz \quad (66)$$

Dans le cas d'une convergence libre, Binding prédit l'enveloppe d'écoulement en minimisant l'énergie totale dissipée (66). Pour une convergence forcée, l'enveloppe $h(z)$ correspond au profil de la paroi et on obtient alors :

$$\dot{E} = KQ \left[\frac{Q(2n+1)}{2wn} \right]^n \int_0^L \frac{1}{h(z)^{2n+1}} dz \quad (67)$$

$$+ 2wlJ_{nt} \left[\frac{Q(2n+1)}{2w(n+1)} \right]^{t+1} \int_0^L h(z) \left[\frac{1}{h(z)^2} \left(- \frac{dh(z)}{dz} \right) \right]^{t+1} dz \quad (68)$$

$$+ \frac{2w\rho(2n+1)^2 Q^3}{3(3n+2)(4n+3)w^3} \int_0^L \frac{1}{h(z)^3} \left(- \frac{dh(z)}{dz} \right) dz \quad (69)$$

En connaissant le comportement en cisaillement du matériau et le profil du convergent, la dissipation d'énergie due à la friction aux parois (67) et la variation d'énergie cinétique (69) peuvent être calculées. Les paramètres de la loi-puissance, l et t , de la viscosité élongationnelle sont alors déterminées en traçant l'énergie dissipée par élongation (68) en fonction du débit, en sachant que :

$$\dot{E} = \Delta P_{\text{expérimental}} Q \quad (70)$$

où, $\Delta P_{\text{expérimental}}$ représente la perte de charge totale mesurée expérimentalement.

III.1.4 Méthode de Mackay et Astarita

Mackay et Astarita utilisent l'équation de Bernoulli généralisée au lieu d'appliquer comme Binding un bilan d'énergie. Ils définissent un gradient de vitesse maximal au centre du convergent et nul aux frontières ce qui est cohérent avec le profil de vitesse

assumé. L'application d'hypothèses relatives à la cinématique leur permet de retrouver un résultat équivalent à celui donné par la méthode de Cogswell. Sans ces hypothèses, leur résultat est proche de celui donné par Binding et ne sera pas appliqué dans le cadre de cette étude.

III.1.5 Modélisation numérique du convergent "b"

La viscosité élongationnelle estimée par les méthodes précédentes dépend directement de l'évaluation de la perte de charge en cisaillement dans le convergent (III.1.2 & 58). Les expressions analytiques données précédemment à cette fin pour la méthode de Cogswell (52) et Binding (III.1.367) se basent sur l'hypothèse que la présence des parois latérales a peu d'importance face aux parois principales d'écoulement et sur un comportement en loi de puissance pour le matériau. La perte de charge en cisaillement est ainsi sous estimée avec la première hypothèse et sur estimée aux plus faibles débits avec la seconde (i.e, faible taux de cisaillement; Figure II.44).

Dans l'optique d'évaluer l'erreur induite par cette hypothèse et l'utilisation d'une loi de puissance, l'écoulement dans le convergent "b" a été simulé en trois dimensions, pour tenir compte de la friction liée aux parois latérales, tout en considérant la loi de Carreau, pour décrire fidèlement le comportement en cisaillement de notre polypropylène (Tableau II.6). L'erreur ainsi déterminée combine les erreurs induites par deux effets antagonistes et une erreur nulle équivaut alors à leur compensation. Les équations d'échanges qui en résultent ont été résolues avec la méthode des éléments finis à l'aide du logiciel

POLY3D™ (Rheotek Inc). Des conditions de Dirichlet de non glissement aux parois et d'un profil de vitesse hyperbolique à l'entrée du convergent ont été utilisées.

Les pertes de charges ainsi calculées sont représentées à la figure III.9 avec celles correspondantes en deux dimensions pour un fluide en loi de puissance. Une différence conséquente entre la solution analytique et numérique est remarquée pour les taux d'élongation supérieurs à 1 s^{-1} . En dessous de ce taux d'élongation, l'erreur induite par l'utilisation d'une loi de puissance et non du modèle de Carreau est négligeable ou se voit compensée par la prise en compte des parois latérales. Au delà de ce taux d'élongation, la divergence des résultats témoigne de l'influence des parois latérales. L'utilisation de la solution numérique à la place de la solution analytique (52) permet alors d'obtenir une viscosité élongationnelle plus précise et inférieure à celle donnée à la figure III.8.

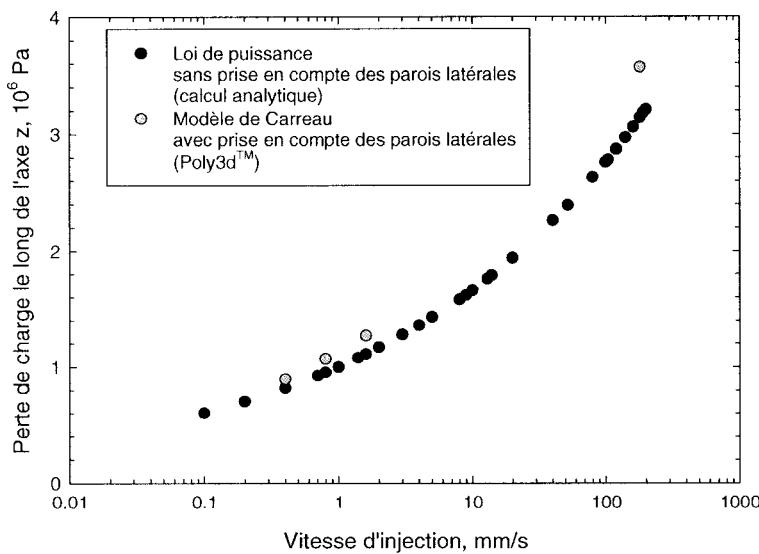


Figure III.5 Pertes de charge calculées analytiquement en deux dimensions (52) et avec POLY3D™ en trois dimensions dans le convergent "b" en fonction du taux d'élongation pour le polypropylène

III.2 Applications des méthodes précédentes

III.2.1 Microscope électronique à balayage

De la même façon que pour la fente rectangulaire, l'état d'orientation des fibres dans le convergent b a été observé à l'aide d'un microscope électronique à balayage Jeol JSM 840. Un alignement global des fibres dans la direction de l'élongation est apparent pour le polypropylène chargé de 30 % en masse de fibres (Figure III.6). Cette observation rejoint celle de Crowson et *al.* [33] (I.1.3.2) et la conclusion de Tucker et Advani [3] selon laquelle il existe en élongation une position d'équilibre stable des fibres, qui est la direction d'élongation.

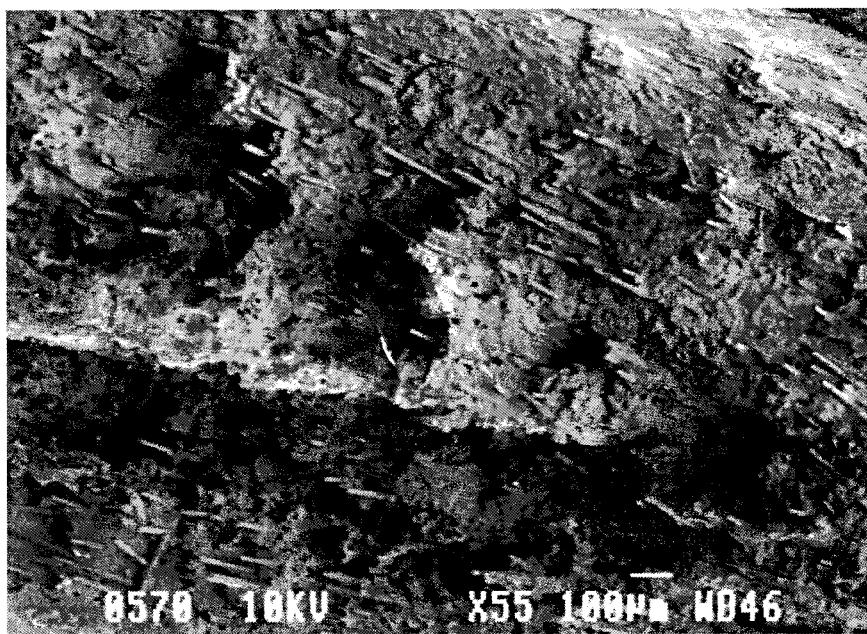


Figure III.6 Vue transversale à la sortie du convergent a pour le polypropylène renforcé de 30 % en masse de fibres de verre suite à une injection à 130 mm/s ($\dot{\epsilon} = 75s^{-1}$)

III.2.2 Viscosité élongationnelle

Les pertes de charge dans les deux convergents ont été mesurées, pour l'ensemble des débits appliqués, à l'aide de deux capteurs de pression différents, afin d'améliorer la précision et de s'assurer que leur réponse soit linéaire. Le premier avait une plage de mesure qui s'étendait jusqu'à $1.725 \cdot 10^6$ Pa tandis que le second permettait d'atteindre $6.9 \cdot 10^6$ Pa. La sortie de la matière se faisant à l'air libre, nous supposons que la pression de sortie relative est nulle. Les pertes de charge considérées pour l'application des deux premières méthodes décrites précédemment incluent alors les effets de sortie.

Chaque valeur de viscosité élongationnelle est obtenue grâce à un écoulement non stationnaire où le taux d'élongation varie suivant la hauteur du convergent. La viscosité élongationnelle ainsi mesurée doit donc être référée comme une viscosité élongationnelle apparente.

III.2.2.1 Comparaison entre l'analyse de Cogswell et l'analyse de Binding

La figure III.7 présente la viscosité élongationnelle apparente du polypropylène estimée à partir de la méthode de Binding et la méthode de Cogswell. Leurs résultats concordent pour des taux d'élongation supérieurs à 10 s^{-1} mais divergent pour les plus faibles taux d'élongation. Cette différence s'explique par le fait que Binding, à la différence de Cogswell, décrit dans son analyse la viscosité en élongation par une loi de puissance. L'application de la méthode de Binding suivant une démarche locale, c'est-à-dire en l'appliquant séparément pour des intervalles de taux d'élongation (par exemple de 0.2 à 1 s^{-1} puis de 0.4 à 3 s^{-1} et ainsi de suite), permet ainsi d'obtenir des paramètres de la loi de

puissance adapté a chaque plage de taux de cisaillement considéré. Cette démarche cède alors la place à des valeurs comparables à la méthode de Cogswell sur l'ensemble des taux d'elongation approchés. La méthode de Cogswell est donc plus appropriée pour caractériser notre polypropylène que la méthode de Binding appliquée à l'ensemble des taux de cisaillement atteint et lui sera par conséquent préférée par la suite. La viscosité elongationnelle étant une fonction matérielle qui ne doit dépendre que du taux d'elongation, il est rassurant d'atteindre des résultats comparables à partir de ces deux méthodes.

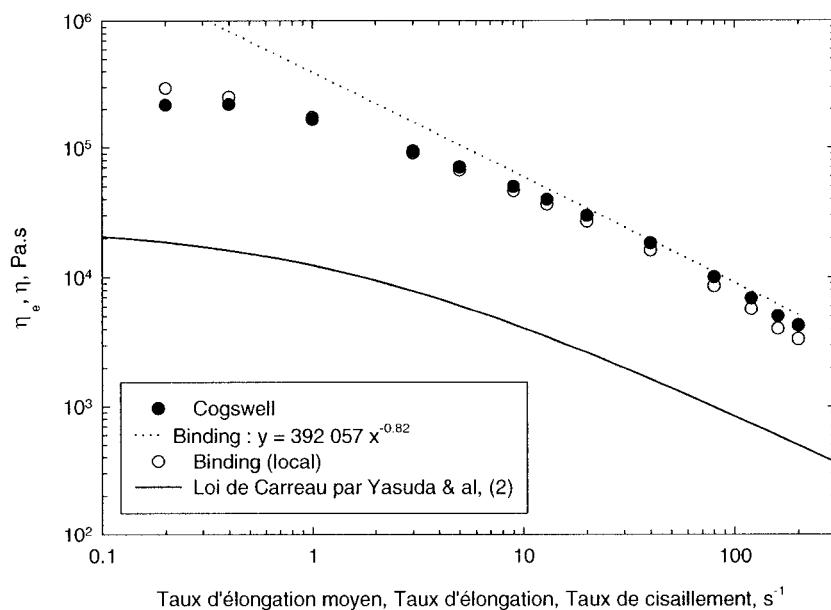


Figure III.7 Comparaison des méthodes de Binding et Cogswell appliquées au polypropylène pour le convergent a (Rhéomètre en ligne) ; $T = 200^\circ\text{C}$

III.2.2.2 Influence de la géométrie d'écoulement

L'influence de la géométrie d'écoulement est faible comme le montre la figure III.8 et la figure III.9. Les deux convergents permettent d'obtenir des viscosités élongationnelles apparentes comparables. D'un point de vue théorique, l'écoulement recherché est un écoulement libre de cisaillement. Le convergent "a" se rapprochant le plus de ce critère est par conséquent préférable au second (57).

Pour des taux d'élongations inférieurs à 0.3 s^{-1} pour le convergent "b", la perte de charge en cisaillement estimée analytiquement (52) est supérieure à la perte de charge totale mesurée. Cette limitation rencontrée aux plus faibles taux d'élongation doit avoir pour explication le fait que les écoulements rencontrés à ces taux d'élongation sont préférentiellement des écoulements de cisaillement.

III.2.2.3 Rapport de Trouton et viscosité élongationnelle relative

i) *Définition du rapport de Trouton*

Le rapport de Trouton, T_R , se définit comme le rapport de la viscosité élongationnelle et de la viscosité en cisaillement. Jones et al. [83] lèvent l'ambiguïté de cette définition pour laquelle le taux de déformation en élongation et en cisaillement restent à définir. La viscosité élongationnelle est en effet fonction du taux d'élongation tandis que la viscosité en cisaillement dépend du taux de cisaillement. Ils considèrent pour cela un fluide newtonien généralisé (inélastique) dont le tenseur des extra-contraintes s'écrit de la façon suivante :

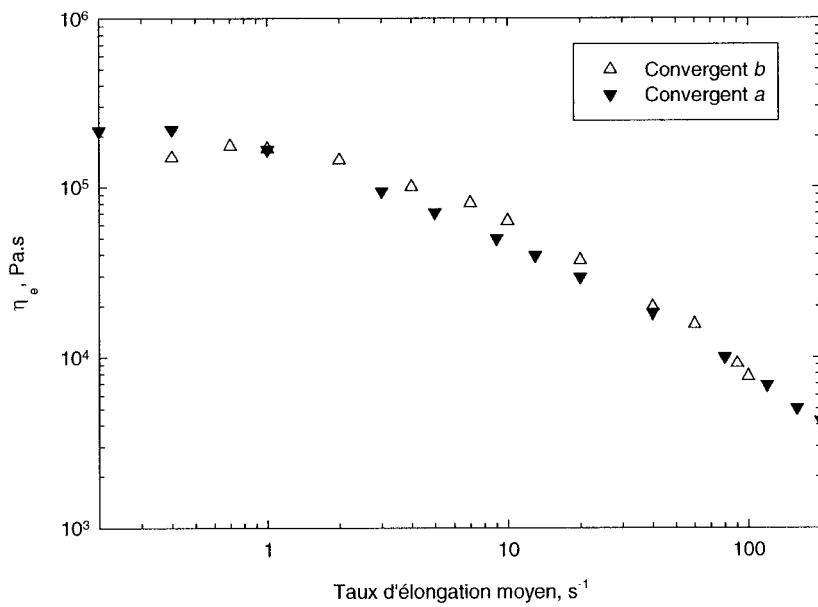


Figure III.8 Viscosité élongationnelle du polypropylène estimée avec le convergent *a* et le convergent *b* (Rhéomètre en ligne) ; Analyse de Cogswell, $T = 200^\circ\text{C}$

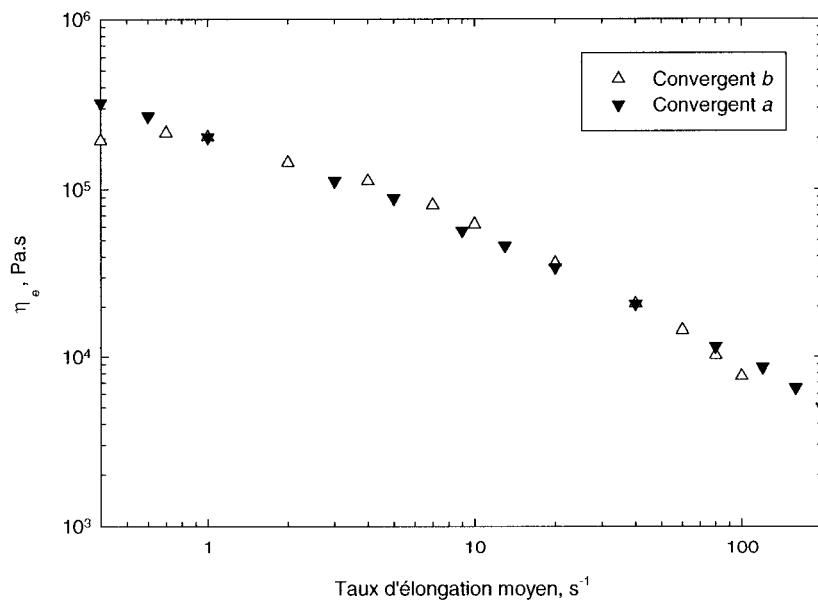


Figure III.9 Viscosité élongationnelle du polypropylène renforcé de 30 % en masse de fibres estimée avec le convergent *a* et le convergent *b* (Rhéomètre en ligne) ; Analyse de Cogswell, $T = 200^\circ\text{C}$

$$\underline{\underline{\tau}} = \eta \left(\sqrt{\frac{1}{2} II_{\underline{\underline{\dot{\gamma}}}}} \right) \underline{\underline{\dot{\gamma}}} \text{ avec } II_{\underline{\underline{\dot{\gamma}}}} = \text{tr}(\underline{\underline{\dot{\gamma}}} \underline{\underline{\dot{\gamma}}}) \quad (71)$$

Pour un écoulement élongationnel planaire, i.e., $v_x = \dot{\epsilon}x_1$, $v_y = -\dot{\epsilon}x_2$ et $v_z = 0$, la définition de la viscosité élongationnelle associée à la relation précédente permet d'établir que :

$$\tau_{11} - \tau_{22} = \dot{\epsilon} \eta_e(\dot{\epsilon}) = 4 \dot{\epsilon} \eta \left(\sqrt{2} \dot{\epsilon} \right) \quad (72)$$

et donc :

$$T_R = \frac{\eta_e(\dot{\epsilon})}{\eta(\dot{\gamma})} = \frac{\eta_e(\dot{\epsilon})}{\eta \left(\sqrt{2} \dot{\epsilon} \right)} = 4 \quad (73)$$

Un rapport égal à 4 est donc attendu pour les fluides newtoniens généralisés. Le cas échéant, la déviation fournie une indication sur l'influence du caractère viscoélastique du matériau sur son écoulement en élongation.

ii) *Observations expérimentales*

La viscosité élongationnelle de notre polypropylène se comporte d'une façon analogue à sa viscosité en cisaillement. Son rapport de Trouton varie de 15 à 10.5 pour des vitesses de déformation comprises entre 0.2 et 200 s⁻¹. Binding et *al.* rapportent des résultats analogues (Figure 13 de la référence [75]) pour un polypropylène en utilisant un rhéomètre capillaire pour mesurer sa viscosité en cisaillement et en élongation.

Le comportement rhéofluidifiant de la viscosité élongationnelle apparente du polypropylène renforcé de fibres de verre est le même qu'en l'absence de fibres (Figure III.10). Seule son intensité est modifiée. Pour notre polypropylène chargé de 30 % en

masse de fibres, sa viscosité élongationnelle augmente de 22 % tandis que pour une concentration de 10 % en masse, elle augmente de 6 % (Figure III.11 avec

$$\eta_{er} = \frac{\eta_{e-suspension} - \eta_{e-matrice}}{\eta_{e-matrice}}).$$

III.2.2.4 Thermodépendance de la viscosité élongationnelle

Les figures III.12 et III.13 présentent la thermodépendance de la viscosité élongationnelle du polypropylène chargé. De la même façon que pour Laun et Schuch, [84] la courbe maîtresse ainsi obtenue indique que la thermodépendance en élongation est de type Arrhénius et qu'elle est gouvernée par la même énergie d'activation qu'en cisaillement.

III.2.2.5 Confrontation du modèle de Goddard avec les résultats expérimentaux

La revue de la littérature (I.2.3) a révélé deux modèles aptes à prédire la contribution des fibres aux champs de contrainte lors d'un écoulement élongationnel. Le premier modèle, proposé par Batchelor (18), est limité aux suspensions à matrice newtonienne à la différence du second écrit par Goddard (20). Nos données expérimentales (Figure III.10) ne s'approchent pas du régime newtonien du polypropylène (Figure II.44). Seul, le modèle de Goddard (20) est alors confronté aux mesures de viscosité élongationnelles de nos matériaux renforcés.

Les paramètres nécessaires à l'application du modèle de Goddard (20) tels que l'indice de loi puissance et la longueur des fibres (apparentée à L_n) ont été extraits des tableaux II.1, II.3 et II.6. Les contraintes relatives (74) prédictes par ce modèle pour le polypropylène renforcé de 30 % et 10 % en masse valent ainsi respectivement 0.54 et 0.22.

$$\sigma_r = \frac{\sigma_{suspension} - \sigma_{matrice}}{\sigma_{matrice}} = \phi_v [\sigma] = \eta_{er} = \frac{\eta_{e-suspension} - \eta_{e-matrice}}{\eta_{e-matrice}} \quad (74)$$

Les rapports de 2.4 pour $\phi_m = 0.3$ et 3.6 pour $\phi_m = 0.1$ entre nos résultats expérimentaux (Figure III.11) et ce modèle sont du même ordre de grandeur que ceux trouvés par Goddard [88] pour les résultats expérimentaux de Chan et al. [11] (rapports compris entre 1 et 4; suspensions de polystyrène et de polyéthylène haute densité renforcées de fibres de verre : $r = 156$ et 79 pour $\phi_m = 0.2$ et 0.4 respectivement).

Mewis et Metzner [43] obtiennent quant à eux une excellente corrélation entre leurs résultats expérimentaux et les prévisions du modèle de Batchelor pour leurs suspensions de polybutène renforcé de fibres de verre ($\phi_v = [0.1 ; 1]$ pour $r = [280 ; 1260]$). Les écarts observés précédemment entre nos résultats expérimentaux et le modèle de Goddard ne soulignent pas alors forcément l'échec de ce modèle qui s'appuie sur le celui de Batchelor [51]. Les systèmes étudiés, de par la taille (Figure II.1 & Figure II.2) et l'orientation (Figure III.6) de leurs fibres, s'éloignent en effet des hypothèses posées par Goddard [49] qui énoncent que les fibres sont supposées être de même longueur et orientées dans la direction de l'écoulement. Son modèle requiert notamment que $r \gg \beta \gg 1$ (20). La viscosité élongationnelle relative donnée par le modèle, pour le polypropylène renforcé de 30 % en masse, reste insensible si les fibres dont $r \leq 4 \beta$ sont éliminées de l'analyse.

La dispersion d'orientation des fibres observée expérimentalement ne peut pas être approchée par le modèle de Goddard à la différence de celui de Dinh et Armstrong (22).

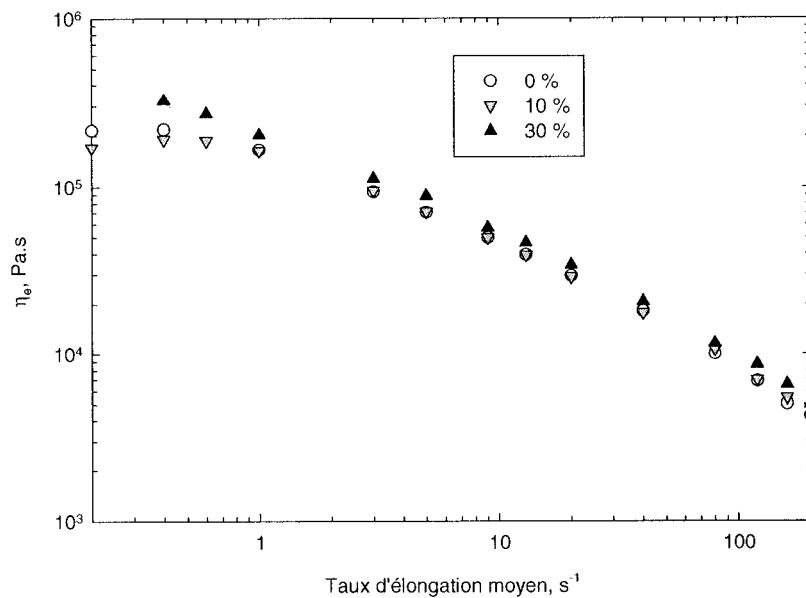


Figure III.10 Viscosité élongationnelle du polypropylène pour différentes concentrations massiques de fibres (Rhéomètre en ligne) ; convergent a , $T = 200^\circ\text{C}$

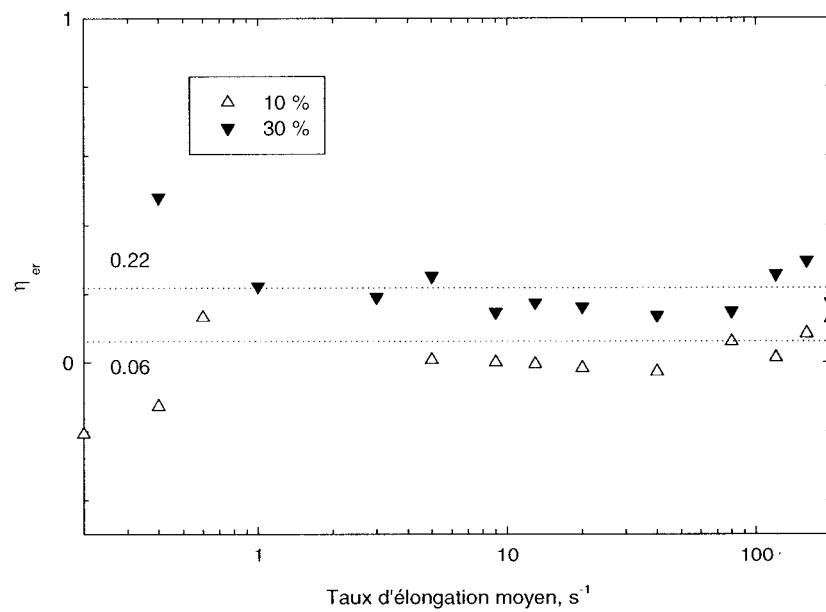


Figure III.11 Viscosité élongationnelle relative du polypropylène pour différentes concentrations massiques de fibres (Rhéomètre en ligne) ; $T = 200^\circ\text{C}$

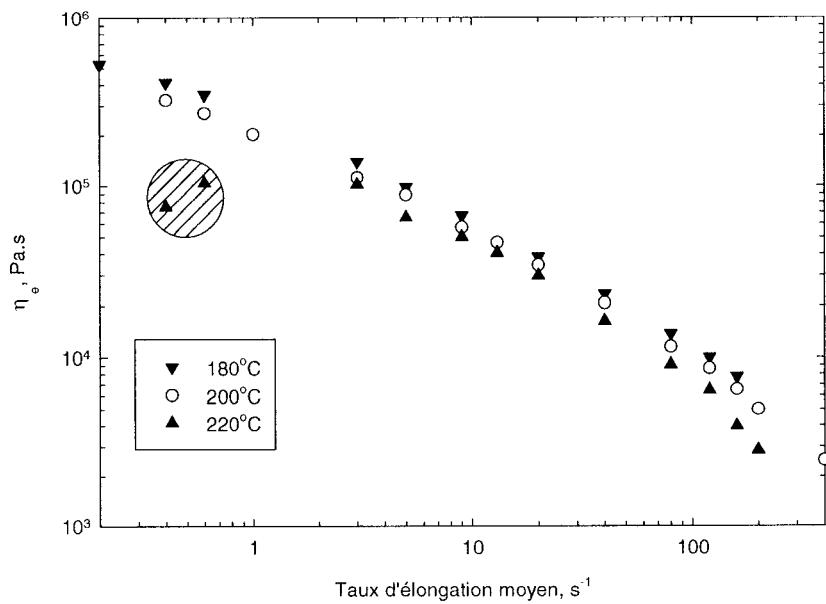


Figure III.12 Viscosité élongationnelle du polypropylène renforcé de 30 % en masse de fibres pour différentes températures (Rhéomètre en ligne) ; convergent *a*

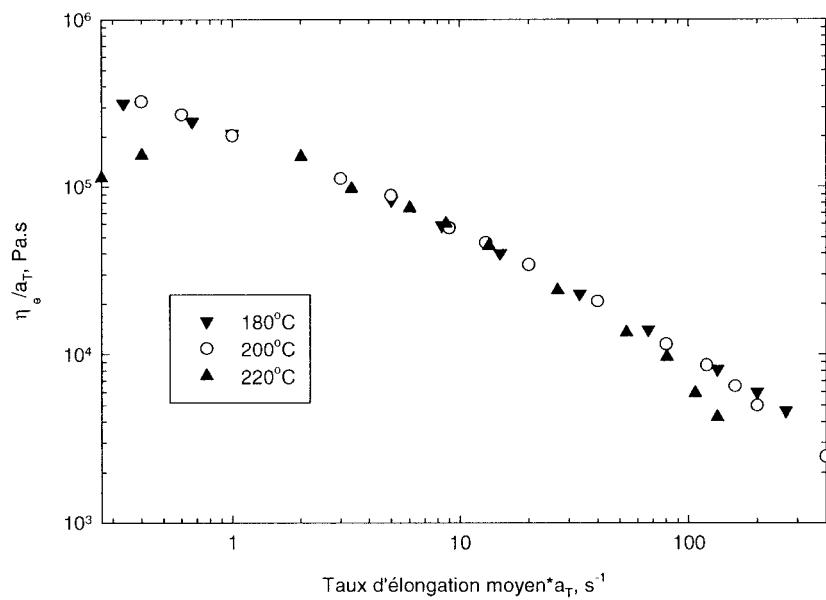


Figure III.13 Courbe maîtresse en élongation du polypropylène renforcé de 30 % en masse de fibres (Rhéomètre en ligne) ; convergent *a*, $T_{référence} = 200^{\circ}\text{C}$

Il apparaît clairement à la vue de ce dernier qu'une orientation non unidirectionnelle des fibres a pour conséquence de diminuer la contribution des fibres au champ de contrainte ; l'amplitudes des composantes du tenseur d'orientation d'ordre 4 valent 1 lorsque les fibres sont parfaitement alignées selon l'écoulement et diminuent au fur et à mesure que leur orientation devient aléatoire. Bien que ce modèle s'applique aux suspensions dont la matrice est newtonienne un comportement similaire est attendu pour les modèles s'appliquant aux suspensions à matrice non-newtonienne.

L'influence de la distribution de taille des fibres pourrait par contre être intégrée à l'analyse de Goddard (20). Nous évaluons par la suite l'impact de la distribution de taille des fibres contenues dans le polypropylène renforcé de 30 % en masse de fibres (Figure II.2) sur les prédictions du modèle de Batchelor (18). Ce modèle, bien qu'inadapté à nos suspensions, est préféré à celui de Goddard (20) pour des raisons de simplicité. La contrainte intrinsèque, telle que posée par Batchelor, s'exprime alors de la façon suivante en tenant compte de la distribution de taille des fibres (Annexe VII) :

$$[\sigma] = \frac{\sigma^p}{3\eta_m \dot{\epsilon} c_v} = \frac{2}{9} \frac{1}{\ln(\beta)(d/2)^2} \frac{\sum_{i=1}^N l^3}{\sum_{i=1}^N l} \quad (75)$$

Pour écrire l'expression précédente, nous avons considéré que le facteur β (18) n'est pas affecté par la distribution de taille des fibres. Cette relation appliquée à notre population de fibres (Figure II.2) prédit une contrainte intrinsèque égale à 11.3 alors qu'initialement, en prenant comme longueur des fibres leur longueur moyenne en nombre, une valeur de

56.1 est donnée, soit un rapport proche de 5. Une incidence plus faible est attendue pour l'analyse de Goddard.

L'orientation des fibres non unidirectionnelle et leur distribution de taille peuvent donc à eux deux expliquer la différence entre nos résultats expérimentaux et l'analyse de Goddard.

III.3 Conclusion

L'association d'une presse à injection avec des géométries d'écoulement convergentes nous ont permis d'atteindre des taux d'élongation compris entre 0.2 et 200 s^{-1} . Au regard des résultats données par l'analyse de Cogswell, l'utilisation de la méthode de Binding sur l'ensemble de ces taux de déformation conduit à une erreur non négligeable sur l'estimation de la viscosité élongationnelle de notre polypropylène. Les deux convergents employés donnent des résultats similaires mais le convergent qui engendre la perte de charge en cisaillement la plus faible reste préférable au second.

La viscosité élongationnelle de notre polypropylène chargé de fibres de verre courtes augmente faiblement avec la fraction volumique de fibres et suit la même thermodépendance qu'en cisaillement. Elle ne s'accorde pas à celle prédicta par le modèle de Goddard. Ce désaccord est attribuable à l'alignement imparfait des fibres selon la direction d'écoulement et leur distribution de taille.

CHAPITRE IV : CONCLUSIONS ET PERSPECTIVES

IV.1 Conclusion générale

Le comportement rhéologique d'un polypropylène renforcé de fibres de verre courtes a été clairement identifié à travers la mise en évidence des phénomènes spécifiques liés à la présence des fibres. La description de notre système contribue ainsi à une meilleure compréhension des suspensions de fibres courtes. Cet objectif a pu être atteint grâce à la réalisation d'un rhéomètre filière plate en ligne sur une presse à injection associée à l'application des techniques rhéométriques de laboratoire. Plusieurs situations d'écoulement ont donc été explorées.

IV.1.1 Viscosité en cisaillement, en régime permanent

Pour les faibles taux de cisaillement ($\dot{\gamma} < 10 \text{ s}^{-1}$), la viscosité relative augmente significativement avec la fraction volumique de fibres et dépend fortement du taux de déformation. Seule la suspension semi-diluée atteint, d'une façon comparable au polypropylène, un plateau newtonien aux plus faibles taux de cisaillement ($\dot{\gamma} \approx 0.003 \text{ s}^{-1}$). La viscosité en cisaillement permanent dépend également de l'état d'orientation de la microstructure de la suspension. Les mesures en géométrie plan-plan laissent sous entendre que cette microstructure n'évolue pas uniquement avec la déformation mais aussi avec le taux de cisaillement.

À des taux d'elongation compris entre 10 et 10000 s^{-1} , la viscosité des suspensions est confondue avec celle du polypropylène. La migration des fibres qui crée une couche

diluée aux parois et l'augmentation du taux de cisaillement effectif par la présence des fibres sont les deux thèses qui permettent de l'expliquer. Ce comportement constitue un atout indéniable à l'échelle industrielle.

Aucun glissement aux parois de notre polypropylène n'a été observé en géométrie plan-plan et avec la filière plate. Les interactions éventuelles entre les fibres et les parois se sont révélées être trop faibles pour être également mises en évidence.

IV.1.2 Viscosité en cisaillement, en régime dynamique

Contrairement aux conclusions d'études antérieures, la viscosité complexe relative de nos suspensions reste constante sur la plage de fréquence explorée ($\omega = [0.05 ; 300]$ rad/s). Ceci s'explique principalement par les faibles déformations imposées lors des mesures. L'influence d'un précisaillement jusqu'à l'équilibre à différentes contraintes imposées et indirectement de l'état d'orientation de la microstructure a ainsi pu être illustré. La viscosité complexe diminue avec l'augmentation de la contrainte utilisée lors du conditionnement et donc avec l'alignement des fibres. Par ailleurs, elle augmente avec la fraction volumique de fibres tout comme le module de conservation et le module de perte. Le module de conservation ne présente aucune discontinuité et l'angle de déphasage reste quant à lui constant.

L'empirisme de Cox-Merz s'applique correctement à notre polypropylène mais il est mis en défaut pour nos suspensions aux plus hauts taux de cisaillement.

IV.1.3 Viscosité en cisaillement, en régime transitoire

Les essais de fluage permettent de prendre conscience de l'importance de l'évolution de l'état d'orientation de la microstructure sur la viscosité de la suspension. L'amplitude du pic de viscosité augmente avec la fraction volumique de fibres et dépend de l'état d'orientation initial des fibres. Son amplitude relative par rapport à la viscosité stationnaire et la déformation nécessaire pour atteindre l'équilibre ne varient pas toutefois avec la fraction volumique de fibres.

IV.1.4 Première différence des contraintes normales

Les mesures en géométrie plan-plan montrent que la différence entre N_1 et N_2 augmente avec la fraction volumique de fibres et le taux de cisaillement. Nous n'avancerons pas cependant que le caractère élastique de nos suspensions est supérieur à celui du polypropylène au regard des résultats obtenus en mode dynamique.

L'empirisme établi par Laun pour prédire le coefficient des contraintes normales primaires s'applique davantage à notre polypropylène seul qu'à notre polypropylène renforcé de fibres courtes. La différence entre les deux cas est néanmoins faible.

IV.1.5 Viscosité élongationnelle apparente

La correction de Bagley ne permet pas d'estimer la viscosité élongationnelle du polypropylène et des suspensions étudiées. Nous avons donc eu recourt à la méthode de Cogswell et à la méthode de Binding appliquées à des convergents hyperboliques.

Le rapport de Trouton de notre polypropylène varie de 13.5 à 8.5 pour des vitesses de déformation comprises entre 0.2 et 200 s^{-1} . La viscosité élongationnelle de nos suspensions augmente de près de 6 % et de 22 % pour des fractions massiques de 10 % et de 30 % respectivement. La présence de fibres affecte donc peu le comportement élongationnel de notre polypropylène.

IV.2 Perspectives

IV.2.1 À court terme

Au niveau expérimental, la quantification de l'orientation des fibres dans la fente rectangulaire (mesure de la viscosité en cisaillement avec le rhéomètre en ligne) et suite à un balayage en fréquence permettrait de s'assurer que les structures qui s'y développent sont bien différentes et permettent alors de justifier la mise en échec de l'empirisme de Cox-Merz. Au regard des pressions mises en jeu lors des procédés de mise en forme, il serait souhaitable de mesurer la dépendance de la viscosité élongationnelle et en cisaillement avec la pression. À l'image des mesures en cisaillement, celles portant sur la viscosité élongationnelle pourraient être complétées par d'autres techniques permettant d'atteindre des taux d'élongation plus faibles.

D'un point de vue théorique, l'extension du modèle de Batchelor pour la distribution de taille des fibres pourrait être appliquée au modèle de Goddard.

IV.2.2 À long terme

Le comportement rhéologique du polypropylène renforcé de fibres de verre courtes étudié s'apparente à celui du polypropylène seul. On comprend mieux alors pourquoi les techniques de mise en forme conventionnelles s'appliquent également aux systèmes chargés de fibres courtes. De ce point de vue, leur mise en forme ne demande pas alors plus d'attention. Par contre, la volonté de prédire les propriétés mécaniques de la pièce finale requiert une description précise de leur comportement rhéologique étant donné que l'état d'orientation des fibres joue un rôle majeur. Nous avons vu que pour des systèmes concentrés soumis à des écoulements simples, il demeure complexe. La prise en compte des interactions, qui sont responsables de cette complexité, dans un modèle rhéologique reste un défi actuel tout comme leur validation. Il faut en effet connaître l'évolution ou du moins l'état d'orientation initial des fibres. Les techniques actuelles permettant de relier l'orientation des fibres au tenseur d'orientation d'ordre 2 reposent sur la visualisation par microscopie optique des fibres [85]. Il serait souhaitable que ces techniques fastidieuses laissent place à des techniques de mesure indirectes comme les méthodes de mesure acoustiques qui sont à développer [86].

BIBLIOGRAPHIE

Par ordre d'apparition :

1. DOI M. et EDWARDS S. F. (1978). Dynamics of rod-like macromolecules in concentrated solution. Part 1. Journal of Chemical Society, 2, 560-570.
2. MILLIKEN W. J. et POWELL R. L. (1994). Short-fiber suspensions, Elsevier Science, 54-57.
3. TUCKER C. L. et ADVANI S. G. (1994). Flow and rheology in polymer composites manufacturing, Elsevier Science, Amsterdam , New York,, 147-202.
4. ATTANASIO A., BERNINI U., GALLOPO P., et SEGRE G. (1972). Significance of viscosity measurement in macroscopic suspensions of elongated particles. Transactions of the society of rheology, 16, 147-154.
5. BLAKENEY W. R. (1966). Viscosity of suspensions of straight rigid rods. Journal of Colloidal Interface Science, 22, 324-330.
6. BIBBO M. A., DINH S. M., et ARMSTRONG R. C. (1985). Shear flow of semi-concentrated fiber suspensions. Journal of Rheology, 29, 905-929.
7. MILLIKEN W. J., GOTTLIEB M., GRAHAM A. L., MONDY L. A., et POWELL R. L. (1989). The viscosity volume fraction relation for suspensions of randomly oriented rods by falling ball rheometry. Journal of Fluid Mechanics, 202, 217-232.
8. POWELL R. L. (1991). Rheology of suspensions of rodlike particles. Journal of Stat. Physics, 62, 1073-1095.

9. GOTO S., NAGAZONO H., et KATO H. (1986). The flow behavior of fiber suspensions in Newtonian fluids and polymer solutions.I . Mechanical properties. Rheologica Acta, 25, 119-129.
10. GREENE J. P. et WILKES J. O. (1995). Steady-state and dynamic properties of concentrated fiber-filled thermoplastics. Polymer Engineering and Science, 35, 1670-1681.
11. CHAN Y., WHITE J. L., et OYANAGI Y. (1978). A fundamental study of the rheological properties of glass-fiber-reinforced polyethylene and polystyrene melts. Journal of Rheology, 22, 507-524.
12. KITANO T., KATAOKA T., et NAGATSUKA Y. (1984). Shear flow rheological properties of vinylon-and glass fiber reinforced polyethylene melts. Rheology Acta, 23, 20-30.
13. GANANI E. et POWELL R. L. (1986). Rheological properties of rodlike particles in a Newtonian and Non-Newtonian fluid. Journal of Rheology, 30, 995-1013.
14. KITANO T. et KATAOKA T. (1981). The rheology of suspensions of vinylon fibers in polymer liquids. I. Suspensions in silicone oil. Rheologica Acta, 20, 390-402.
15. GANANI E. et POWELL R. L. (1984). Suspensions of rodlike particles : literature review and data correlations. Journal of Composite Materials, 19, 194-215.

16. CZARNECKI L. et WHITE J. L. (1980). Shear flow properties, fiber damage, and mastification characteristics of aramid-, glass-, and cellulose-fiber-reinforced polystyrene melts. Journal of Applied Polymer Science, 25, 1217-1244.
17. MONDY L. A., MORISSON T. G., et GRAHAM A. L. (1990). Measurements of the viscosities of suspensions of oriented rods using falling ball rheometry. International Journal of Multiphase Flow, 16, 651-662.
18. ONOGI S. et MATSUMOTO T. (1981). Rheological properties of polymer solutions and melts containing suspended particles. Polymer Engineering Reviews, 1, 46-87.
19. KITANO T., KATAOKA T., et NAGATSUKA Y. (1984). Dynamic flow properties of vinylon fibre and glass fiber reinforced polyethylene melts. Rheologica Acta, 23, 408-416.
20. ROSCOE R. (1964). An empirical constitutive equation for elastoviscous liquids. British Journal of Applied Physic, 1, 1095-1101.
21. LAUN H. M. (1986). Prediction of elastic strains of polymer melts in shear and elongation. Journal of Rheology, 30, 459-501.
22. KIM K. J. et SONG J. H. (1997). Rheological properties and fiber orientations of short fiber-reinforced plastics. Journal of Rheology, 41, 1061-1085.
23. HARLEN O. G. et KOCH D. (1997). Orientational drift of a fibre suspended in a dilute polymer solution during oscillatory shear flow. Journal of Non-Newtonian Fluid Mechanics, 73, 81-93.

24. PETRICH M. P., CHAOUCHE M., KOCH D. I., et COHEN C. (2000). Oscillatory shear alignment of a non-Brownian fiber in a weakly elastic fluid. Journal of Non-Newtonian Fluid Mechanics, 91, 1-14.
25. HARLEN O. G. et KOCH D. L. (1997). Orientational drift of a fibre suspended in a dilute polymer solution during oscillatory shear flow. Journal of Non-Newtonian Fluid Mechanics, 73, 81-93.
26. LAUN H. M. (1984). Orientation effects and rheology of short glass fiber-reinforced thermoplastics. Colloidal Polymer Science, 262, 257-269.
27. AUSIAS G., AGASSANT J. F., et VINCENT M. (1992). Rheology of short glass fiber reinforced polypropylene. Journal of Rheology, 36, 525-341.
28. RAMAZANI A., AIT-KADI A., et GRMELA M. (2001). Rheology of fiber suspensions in viscoelastic media: experiments and model predictions. Journal of Rheology, 45, 945-962.
29. SEPEHR M., CARREAU P. J., BAR F., et AUSIAS G. (2002) Comportement rhéologique d'un fluide modèle chargé de fibres courtes dans un écoulement aller retour. Conférence du Groupe Français de Rhéologie
30. MASCHMEYER R. O. et HILL C. T. (1977). Rheology of concentrated suspensions of fibers in tube flow. II. An exploratory study. Transactions of the Society of Rheology, 21, 183-194.

31. MOSES K. B., ADVANI S. G., et REINHARDT A. (2001). Investigation of fiber motion near solid boundaries in simple shear flow. Rheologica Acta, 40, 296-306.
32. BARBOSA S. E. et KENNY J. M. (2000). Processing of short-fiber reinforced polypropylene. I. Influence of processing conditions on the morphology of extruded filaments. Polymer Engineering and Science, 40, 11-22.
33. CROWSON R. J., FOLKES M. J., et BRIGHT P. F. (1980). Rheology of short glass fiber-reinforced thermoplastics and its application to injection molding I. Fiber motion and viscosity measurement. Polymer Engineering and Science, 20, 925-933.
34. MASCHMEYER R. O. et HILL C. T. (1977). Rheology of concentrated suspensions of fibers in tube flow. III. Suspensions with the same fiber length distribution. Transactions of the Society of Rheology, 21, 195-207.
35. CHARRIER J. M. et RIEGER J. M. (1974). Flow of short glass fibre-filled polymer melts. Fibre Science Technology, 7, 161-172.
36. THOMASSET J., GRMELA M., et CARREAU P. J. (1997). Microstructure and rheology of polymer melts reinforced by long glass fibres: direct simulations. Journal of Non-Newtonian Fluid Mechanics, 73, 195-203.
37. ZIRNSAK M. A., HUR D. U., et BOGER D. V. (1994). Normal stress in fibre suspensions. Journal of Non-Newtonian Fluid Mechanics, 54, 153-193.

38. HUR D. U. (1987). Flow of semidilute glass fiber suspensions in tubular entry flows. Thèse de doctorat, Université de Melbourne, Australie.
39. CROWSON R. J., FOLKES M. J., et BRIGHT P. F. (1980). Rheology of short glass fiber-reinforced thermoplastics and its application to injection molding. II. The effect of material parameters. Polymer Engineering and Science, 20, 934-940.
40. BARBOSA S. E. et KENNY J. M. (1995). Rheology of thermoplastic matrix short glass fiber composites. ANTEC, 3116-3122.
41. HINCH E. J. et LEAL L. G. (1976). Constitutive equations in suspension mechanics. Part 2. Approximate forms for a suspensions affected by Brownian rotations. Journal of Fluid Mechanics, 76, 187-208.
42. FORGACS O. L. et MASON S. G. (1959). Particle motions in sheared suspensions. IX. Spin and deformation of threadlike particles. Journal of Colloid Science, 14, 457-472.
43. MEWIS J. et METZNER A. B. (1974). The rheological properties of suspensions of fibres in Newtonian fluids subjected to extensional deformations. Journal of Fluid Mechanics, 62, 593-600.
44. WEINBERGER G. B. et GODDARD J. D. (1974). Extensional flow of behavior of polymer solutions and particle suspensions in spinning motion. International Journal of Multiphase Flow, 1, 465-486.

45. LOBE W. M. et WHITE J. L. (1979). Experimental study of the influence of carbon black on the rheological properties of a polystyrene melt. Polymer Engineering and Science, 19, 617-624.
46. TANAKA H. et WHITE J. L. (1980). Experimental investigations of shear and elongational flow properties of polystyrene melts reinforced with calcium carbonate, titanium dioxyde, and carbon black. Polymer Engineering and Science, 20, 949-956.
47. IDE Y. et WHITE J. L. (1978). Experimental study of elongational flow and failure of polymer melts. Journal of Applied Polymer Science, 22, 1061-1079.
48. MÜNSTEDT H. (1975). Viscoelasticity of polystyrene melts in tensile creep experiments. Rheology Acta, 14, 1077-1088.
49. GODDARD J. D. (1976). Tensile stress contribution of flow-oriented slender particles in Non-Newtonian fluids. Journal of Non-Newtonian Fluid Mechanics, 1, 1-17.
50. GODDARD J. D. (1976). The stress field of slender particles oriented by a non-newtonian extensional flow. Journal of Fluid Mechanics, 78, 177-206.
51. BATCHELOR G. K. (1971). The stress generated in a non-dilute suspension of elongated particles by pure straining motion. Journal of Fluid Mechanics, 46, 813-829.
52. PRAGER S. (1957). Trans. Soc. Rheol., 1, 53.

53. ADVANI S. G. et TUCKER III C. L. (1987). The use of tensors to describe and predict fiber orientation in short fiber composites. Journal of Rheology, 31, 751-784.
54. JEFFREY G. B. (1922). The motion of ellipsoidal particles immersed in a viscous fluid. Proc. R. Soc. London, Ser. A 102, 161-178.
55. AKBAR S. et ALTAN M. (1992). On the solution of fiber orientation in two-dimensional homogeneous flows. Polymer Engineering and Science, 32, 810-822.
56. FOLGAR F. et TUCKER III C. L. (1984). Orientatiion behavior of fibers in concentrated suspensions. Journal of Reinforced Plastic Composites, 3, 98-119.
57. KAMAL M.R. et MUTEL A. T. (1989). The prediction of flow and orientation behavior of short fiber reinforced melts in simple flow systems. Polymer Composites, 10, 337-343.
58. BAY R. S. (1991). Fiber orientation in injection molded composites : a comparison of theory and experiment. Thèse de doctorat, Illinois, Urbana.
59. HINCH E. J. et LEAL L. G. (1975). Constitutive equations in suspensions mechanics. Part 1. General formulation. Journal of Fluid Mechanics, 71, 481-495.
60. ADVANI S.G. et TUCKER III C. L. (1990). Closure approximations for three-dimensional structure tensors. Journal of Rheology, 34, 367-386.
61. BATCHELOR G. K. (1970). The stress system in a suspension of force-free particles. Journal of Fluid Mechanic, 41, 545-570.

62. ALTAN M. C., ADVANI S. G., GUCERY S. I., et PIPES R. B. (1989). On the description of the orientation state for fiber suspensions in homogeneous flows. Journal of Rheology, 33, 1129-1155.
63. SHAQFEH E. S. G. et FREDRICKSON G. H. (1990). The hydrodynamic stress in a suspension of rods. Physics Fluids A, 2, 7-24.
64. DINH S. M. et ARMSTRONG R. C. (1984). A rheological equation of state for semiconcentrated fiber suspensions. Journal of Rheology, 28, 207-227.
65. LIPSCOMB II G. G., DENN M. M., HUR D. U., et BOGER D. V. (1988). The flow of fiber suspensions in complex geometries. Journal of Non-Newtonian Fluid Mechanics, 26, 297-325.
66. ERICKSEN J. L. (1960). Transversely isotropic fluids. Kolloid Z., 173, 117-133.
67. AGASSANT J. F., AVENAS P., SERGENT J. P., VERGNES B., et VINCENT M. (1996). La mise en forme des matières plastiques, T. DOC Lavoisier, Londres, 613.
68. CARREAU P. J., DE KEE D., et CHABRA R. P. (1997). Rheology of polymeric systems : principles and applications., Hanser Publishers, Munich,
69. YOSHIMURA A. et PRUD'HOMME R. K. (1988). Wall slip corrections for couette and parallel disk viscometers. Journal of Rheology, 31, 53-67.
70. GRISKEY R. G. (1995). Polymer process engineering, Thomson publishing,
71. HAN C. D. (1974). On slit- and capillary-die rheometry. Transactions of the society of Rheology, 18, 163-190.

72. CHOPLIN L. et CARREAU P. J. (1981). Excess pressure losses in a slit. Journal of Non-Newtonian Fluid Mechanics, 9, 119-146.
73. BIRD BYRON R., STEWART WARREN E., et LIGHTFOOT EDWIN N. (1960). Transport phenomena, J.W. Sons New York, Chichester, Brisbane, Toronto, Singapore,
74. MEISSNER J. (1994). A new elongational rheometer for polymer melts and other highly viscoelastic liquids. Rheologica Acta, 33, 1-21.
75. BINDING D. M., COUCH M. A., et WALTERS K. (1998). The shear and elongational pressure dependence of the properties of polymer melts. Journal of Non-Newtonian Fluid Mechanic, 79, 137-155.
76. COGSWELL F. N. (1972). Converging flow of polymer melts in extrusion dies. Polymer Engineering and Science, 12, 64-73.
77. BINDING D. M. (1988). An approximate analysis for contraction and converging flows. Journal of Non-Newtonian Fluid Mechanics, 7, 173.
78. MACKAY M. E. et ASTARITA G. (1997). Analysis of entry flow to determine elongational flow properties revisited. Journal of Non-Newtonian Fluid mechanics, 70, 219-235.
79. JAMES D. F., CHANDLER G. M., et ARMOUR S. J. (1990). A converging channel rheometer for the measurement of extensional viscosity. Journal of Non-Newtonian Fluid Mechanics, 35, 421-443.

80. KIM H. C., PENDSE A., et COLLIER J. R. ((1994)). Polymer melt lubricated elongationale flow. Journal of Rheology, 38, 831-845.
81. PARK H. J., KIM D., et LEE K. J. (1993). Numerical simulation in converging channel flow of the fluid M1 using an integral constitutive equation. Journal of Non-Newtonian Fluid Nechanics, 52, 69-89.
82. BINDING D. M. (1993). Contraction flows and new theories for estimating extensional viscosity., Chapman & Hall, London - Glasgow - New York; Tokyo - Melbourne - Madras,
83. JONES D. M., WALTERS K., et WILLIAMS P. R. (1987). On the extensional viscosity of mobile polymer solutions. Rheologica Acta, 26, 20-30.
84. LAUN H. M. et SCHUCH H. (1989). Transient elongational viscosities and drawability of polymer melts. Journal of Rheology, 33, 119-175.
85. LEE Y. H., LEE S. W., YOUN J. R., CHUNG K., et KANG T. J. (2002). Characterization of fiber orientation in short fiber reinforced composites with an image analysis processing technique. Materials Research Innovations, 6, 65-72.
86. KAWAMURA M., MURITA S., TANAKA M., et TACHIBANA T. (1997). Measurement of three dimensional fiber orientation distribution in fiber reinforced thermoplastics using scanning acoustic microscopy. Seiko Kako, 9, 913-919.
87. LAUN H. M. (1983). Polymer melt rheology with a slit die. Rheologica Acta, 22, 171-185.

88. GODDARD J. D. (1978). Tensile behavior of power-law fluids containing oriented slender fibers. Journal of Rheology, 22, 615-622.

Par ordre alphabétique :

60. ADVANI S.G. et TUCKER III C. L. (1990). Closure approximations for three-dimensional structure tensors. Journal of Rheology, 34, 367-386.
53. ADVANI S. G. et TUCKER III C. L. (1987). The use of tensors to describe and predict fiber orientation in short fiber composites. Journal of Rheology, 31, 751-784.
67. AGASSANT J. F., AVENAS P., SERGENT J. P., VERGNES B., et VINCENT M. (1996). La mise en forme des matières plastiques, T. DOC Lavoisier, Londres, 613.
55. AKBAR S. et ALTAN M. (1992). On the solution of fiber orientation in two-dimensional homogeneous flows. Polymer Engineering and Science, 32, 810-822.
62. ALTAN M. C., ADVANI S. G., GUCERY S. I., et PIPES R. B. (1989). On the description of the orientation state for fiber suspensions in homogeneous flows. Journal of Rheology, 33, 1129-1155.
4. ATTANASIO A., BERNINI U., GALLOPO P., et SEGRE G. (1972). Significance of viscosity measurement in macroscopic suspensions of elongated particles. Transactions of the society of rheology, 16, 147-154.

27. AUSIAS G., AGASSANT J. F., et VINCENT M. (1992). Rheology of short glass fiber reinforced polypropylene. Journal of Rheology, 36, 525-341.
32. BARBOSA S. E. et KENNY J. M. (2000). Processing of short-fiber reinforced polypropylene. I. Influence of processing conditions on the morphology of extruded filaments. Polymer Engineering and Science, 40, 11-22.
40. BARBOSA S. E. et KENNY J. M. (1995). Rheology of thermoplastic matrix short glass fiber composites. ANTEC, 3116-3122.
51. BATCHELOR G. K. (1971). The stress generated in a non-dilute suspension of elongated particles by pure straining motion. Journal of Fluid Mechanics, 46, 813-829.
61. BATCHELOR G. K. (1970). The stress system in a suspension of force-free particles. Journal of Fluid Mechanic, 41, 545-570.
58. BAY R. S. (1991). Fiber orientation in injection molded composites : a comparison of theory and experiment. Thèse de doctorat, Illinois, Urbana.
6. BIBBO M. A., DINH S. M., et ARMSTRONG R. C. (1985). Shear flow of semi-concentrated fiber suspensions. Journal of Rheology, 29, 905-929.
77. BINDING D. M. (1988). An approximate analysis for contraction and converging flows. Journal of Non-Newtonian Fluid Mechanics, 7, 173.
82. BINDING D. M. (1993). Contraction flows and new theories for estimating extensional viscosity., Chapman & Hall, London - Glasgow - New York; Tokyo - Melbourne - Madras,

75. BINDING D. M., COUCH M. A., et WALTERS K. (1998). The shear and elongational pressure dependence of the properties of polymer melts. Journal of Non-Newtonian Fluid Mechanic, 79, 137-155.
73. BIRD BYRON R., STEWART WARREN E., et LIGHTFOOT EDWIN N. (1960). Transport phenomena, J.W. Sons New York, Chichester, Brisbane, Toronto, Singapore,
5. BLAKENEY W. R. (1966). Viscosity of suspensions of straight rigid rods. Journal of Colloidal Interface Science, 22, 324-330.
68. CARREAU P. J., DE KEE D., et CHABRA R. P. (1997). Rheology of polymeric systems : principles and applications, Hanser Publishers, Munich,
11. CHAN Y., WHITE J. L., et OYANAGI Y. (1978). A fundamental study of the rheological properties of glass-fiber-reinforced polyethylene and polystyrene melts. Journal of Rheology, 22, 507-524.
35. CHARRIER J. M. et RIEGER J. M. (1974). Flow of short glass fibre-filled polymer melts. Fibre Science Technology, 7, 161-172.
72. CHOPLIN L. et CARREAU P. J. (1981). Excess pressure losses in a slit. Journal of Non-Newtonian Fluid Mechanics, 9, 119-146.
76. COGSWELL F. N. (1972). Converging flow of polymer melts in extrusion dies. Polymer Engineering and Science, 12, 64-73.
33. CROWSON R. J., FOLKES M. J., et BRIGHT P. F. (1980). Rheology of short glass fiber-reinforced thermoplastics and its application to injection molding I.

- Fiber motion and viscosity measurement. Polymer Engineering and Science, 20, 925-933.
39. CROWSON R. J., FOLKES M. J., et BRIGHT P. F. (1980). Rheology of short glass fiber-reinforced thermoplastics and its application to injection molding. II. The effect of material parameters. Polymer Engineering and Science, 20, 934-940.
16. CZARNECKI L. et WHITE J. L. (1980). Shear flow properties, fiber damage, and mastification characteristics of aramid-, glass-, and cellulose-fiber-reinforced polystyrene melts. Journal of Applied Polymer Science, 25, 1217-1244.
64. DINH S. M. et ARMSTRONG R. C. (1984). A rheological equation of state for semiconcentrated fiber suspensions. Journal of Rheology, 28, 207-227.
1. DOI M. et EDWARDS S. F. (1978). Dynamics of rod-like macromolecules in concentrated solution. Part 1. Journal of Chemical Society, 2, 560-570.
66. ERICKSEN J. L. (1960). Transversely isotropic fluids. Kolloid Z., 173, 117-133.
56. FOLGAR F. et TUCKER III C. L. (1984). Orientatiion behavior of fibers in concentrated suspensions. Journal of Reinforced Plastic Composites, 3, 98-119.
42. FORGACS O. L. et MASON S. G. (1959). Particle motions in sheared suspensions. IX. Spin and deformation of threadlike particles. Journal of Colloid Science, 14, 457-472.
13. GANANI E. et POWELL R. L. (1986). Rheological properties of rodlike particles in a Newtonian and Non-Newtonian fluid. Journal of Rheology, 30, 995-1013.

15. GANANI E. et POWELL R. L. (1984). Suspensions of rodlike particles : literature review and data correlations. Journal of Composite Materials, 19, 194-215.
88. GODDARD J. D. (1978). Tensile behavior of power-law fluids containing oriented slender fibers. Journal of Rheology, 22, 615-622.
49. GODDARD J. D. (1976). Tensile stress contribution of flow-oriented slender particles in Non-Newtonian fluids. Journal of Non-Newtonian Fluid Mechanics, 1, 1-17.
50. GODDARD J. D. (1976). The stress field of slender particles oriented by a non-newtonian extensional flow. Journal of Fluid Mechanics, 78, 177-206.
9. GOTO S., NAGAZONO H., et KATO H. (1986). The flow behavior of fiber suspensions in Newtonian fluids and polymer solutions.I . Mechanical properties. Rheologica Acta, 25, 119-129.
10. GREENE J. P. et WILKES J. O. (1995). Steady-state and dynamic properties of concentrated fiber-filled thermoplastics. Polymer Engineering and Science, 35, 1670-1681.
70. GRISKEY R. G. (1995). Polymer process engineering, Thomson publishing,
71. HAN C. D. (1974). On slit- and capillary-die rheometry. Transactions of the society of Rheology, 18, 163-190.

23. HARLEN O. G. et KOCH D. (1997). Orientational drift of a fibre suspended in a dilute polymer solution during oscillatory shear flow. Journal of Non-Newtonian Fluid Mechanics, 73, 81-93.
59. HINCH E. J. et LEAL L. G. (1975). Constitutive equations in suspensions mechanics. Part 1. General formulation. Journal of Fluid Mechanics, 71, 481-495.
41. HINCH E. J. et LEAL L. G. (1976). Constitutive equations in suspension mechanics. Part 2. Approximate forms for a suspensions affected by Brownian rotations. Journal of Fluid Mechanics, 76, 187-208.
38. HUR D. U. (1987). Flow of semidilute glass fiber suspensions in tubular entry flows. Thèse de doctorat, Université de Melbourne, Australie.
47. IDE Y. et WHITE J. L. (1978). Experimental study of elongational flow and failure of polymer melts. Journal of Applied Polymer Science, 22, 1061-1079.
79. JAMES D. F., CHANDLER G. M., et ARMOUR S. J. (1990). A converging channel rheometer for the measurement of extensional viscosity. Journal of Non-Newtonian Fluid Mechanics, 35, 421-443.
54. JEFFREY G. B. (1922). The motion of ellipsoidal particles immersed in a viscous fluid. Proc. R. Soc. London, Ser. A 102, 161-178.
83. JONES D. M., WALTERS K., et WILLIAMS P. R. (1987). On the extensional viscosity of mobile polymer solutions. Rheologica Acta, 26, 20-30.

57. KAMAL M.R. et MUTEL A. T. (1989). The prediction of flow and orientation behavior of short fiber reinforced melts in simple flow systems. Polymer Composites, 10, 337-343.
86. KAWAMURA M., MURITA S., TANAKA M., et TACHIBANA T. (1997). Measurement of three dimensional fiber orientation distribution in fiber reinforced thermoplastics using scanning acoustic microscopy. Seiko Kako, 9, 913-919
80. KIM H. C., PENDSE A., et COLLIER J. R. (1994). Polymer melt lubricated elongationale flow. Journal of Rheology, 38, 831-845.
22. KIM K. J. et SONG J. H. (1997). Rheological properties and fiber orientations of short fiber-reinforced plastics. Journal of Rheology, 41, 1061-1085.
19. KITANO T., KATAOKA T., et NAGATSUKA Y. (1984). Dynamic flow properties of vinylon fibre and glass fiber reinforced polyethylene melts. Rheologica Acta, 23, 408-416.
14. KITANO T. et KATAOKA T. (1981). The rheology of suspensions of vinylon fibers in polymer liquids. I. Suspensions in silicone oil. Rheologica Acta, 20, 390-402.
12. KITANO T., KATAOKA T., et NAGATSUKA Y. (1984). Shear flow rheological properties of vinylon-and glass fiber reinforced polyethylene melts. Rheology Acta, 23, 20-30.

26. LAUN H. M. (1984). Orientation effects and rheology of short glass fiber-reinforced thermoplastics. Colloidal Polymer Science, 262, 257-269.
87. LAUN H. M. (1983). Polymer melt rheology with a slit die. Rheologica Acta, 22, 171-185
21. LAUN H. M. (1986). Prediction of elastic strains of polymer melts in shear and elongation. Journal of Rheology, 30, 459-501.
84. LAUN H. M. et SCHUCH H. (1989). Transient elongational viscosities and drawability of polymer melts. Journal of Rheology, 33, 119-175.
85. LEE Y. H., LEE S. W., YOUN J. R., CHUNG K., et KANG T. J. (2002). Characterization of fiber orientation in short fiber reinforced composites with an image analysis processing technique. Materials Research Innovations, 6, 65-72.
65. LIPSCOMB II G. G., DENN M. M., HUR D. U., et BOGER D. V. (1988). The flow of fiber suspensions in complex geometries. Journal of Non-Newtonian Fluid Mechanics, 26, 297-325.
45. LOBE W. M. et WHITE J. L. (1979). Experimental study of the influence of carbon black on the rheological properties of a polystyrene melt. Polymer Engineering and Science, 19, 617-624.
78. MACKAY M. E. et ASTARITA G. (1997). Analysis of entry flow to determine elongational flow properties revisited. Journal of Non-Newtonian Fluid mechanics, 70, 219-235.

30. MASCHMEYER R. O. et HILL C. T. (1977). Rheology of concentrated suspensions of fibers in tube flow. II. An exploratory study. Transactions of the Society of Rheology, 21, 183-194.
34. MASCHMEYER R. O. et HILL C. T. (1977). Rheology of concentrated suspensions of fibers in tube flow. III. Suspensions with the same fiber length distribution. Transactions of the Society of Rheology, 21, 195-207.
74. MEISSNER J. (1994). A new elongational rheometer for polymer melts and other highly viscoelastic liquids. Rheologica Acta, 33, 1-21.
43. MEWIS J. et METZNER A. B. (1974). The rheological properties of suspensions of fibres in Newtonian fluids subjected to extensional deformations. Journal of Fluid Mechanics, 62, 593-600.
7. MILLIKEN W. J., GOTTLIEB M., GRAHAM A. L., MONDY L. A., et POWELL R. L. (1989). The viscosity volume fraction relation for suspensions of randomly oriented rods by falling ball rheometry. Journal of Fluid Mechanics, 202, 217-232.
2. MILLIKEN W. J. et POWELL R. L. (1994). Short-fiber suspensions, Elsevier Science, 54-57.
17. MONDY L. A., MORISSON T. G., et GRAHAM A. L. (1990). Measurements of the viscosities of suspensions of oriented rods using falling ball rheometry. International Journal of Multiphase Flow, 16, 651-662.

31. MOSES K. B., ADVANI S. G., et REINHARDT A. (2001). Investigation of fiber motion near solid boundaries in simple shear flow. Rheologica Acta, 40, 296-306.
48. MÜNSTEDT H. (1975). Viscoelasticity of polystyrene melts in tensile creep experiments. Rheology Acta, 14, 1077-1088.
18. ONOGI S. et MATSUMOTO T. (1981). Rheological properties of polymer solutions and melts containing suspended particles. Polymer Engineering Reviews, 1, 46-87.
81. PARK H. J., KIM D., et LEE K. J. (1993). Numerical simulation in converging channel flow of the fluid M1 using an integral constitutive equation. Journal of Non-Newtonian Fluid Mechanics, 52, 69-89.
24. PETRICH M. P., CHAOUCHE M., KOCH D. I., et COHEN C. (2000). Oscillatory shear alignment of a non-Brownian fiber in a weakly elastic fluid. Journal of Non-Newtonian Fluid Mechanics, 91, 1-14.
8. POWELL R. L. (1991). Rheology of suspensions of rodlike particles. Journal of Stat. Physics, 62, 1073-1095.
52. PRAGER S. (1957). Trans. Soc. Rheol., 1, 53.
28. RAMAZANI A., AIT-KADI A., et GRMELA M. (2001). Rheology of fiber suspensions in viscoelastic media: experiments and model predictions. Journal of Rheology, 45, 945-962.

20. ROSCOE R. (1964). An empirical constitutive equation for elastoviscous liquids. British Journal of Applied Physic, 1, 1095-1101.
29. SEPEHR M., CARREAU P. J., BAR F., et AUSIAS G. (2002) Comportement rhéologique d'un fluide modèle chargé de fibres courtes dans un écoulement aller retour. Conférence du Groupe Français de Rhéologie
63. SHAQFEH E. S. G. et FREDRICKSON G. H. (1990). The hydrodynamic stress in a suspension of rods. Physics Fluids A, 2, 7-24.
46. TANAKA H. et WHITE J. L. (1980). Experimental investigations of shear and elongational flow properties of polystyrene melts reinforced with calcium carbonate, titanium dioxyde, and carbon black. Polymer Engineering and Science, 20, 949-956.
36. THOMASSET J., GRMELA M., et CARREAU P. J. (1997). Microstructure and rheology of polymer melts reinforced by long glass fibres: direct simulations. Journal of Non-Newtonian Fluid Mechanics, 73, 195-203.
3. TUCKER C. L. et ADVANI S. G. (1994). Flow and rheology in polymer composites manufacturing., Elsevier Science, Amsterdam , New York,, 147-202.
44. WEINBERGER G. B. et GODDARD J. D. (1974). Extensional flow of behavior of polymer solutions and particle suspensions in spinning motion. International Journal of Multiphase Flow, 1, 465-486.
69. YOSHIMURA A. et PRUD'HOMME R. K. (1988). Wall slip corrections for couette and parallel disk viscometers. Journal of Rheology, 31, 53-67.

37. ZIRNSAK M. A., HUR D. U., et BOGER D. V. (1994). Normal stress in fibre suspensions. Journal of Non-Newtonian Fluid Mechanics, 54, 153-193.

ANNEXE I : FORCES MESURÉES EN RHÉOMÉTRIE CAPILLAIRE, Kg

Tableau IV.1 Polypropylène à 200°C

L/D	Vitesse du piston, cm/min					
	5.00E-02	1.00E-01	1.25E-01	2.00E-01	2.50E-01	5.00E-01
24.7	16.7	23.9	27.2	33.4	37.7	48.0
35.5	21.5	32.5	36.7	46.7	50.5	70.6
40.0	27.0	39.1	48.0	57.3	63.3	86.4
80.1	52.9	77.6	88.5	109.6	123.7	175.4

L/D	Vitesse du piston, cm/min			
	1.00E+00	1.25E+00	2.00E+00	2.50E+00
24.7	62.2	69.4	79.0	89.1
35.5	89.7	99.9	121.9	128.9
40.0	103.6	115.2	137.8	150.0
80.1	215.0	240.3	288.5	303.3

Tableau IV.2 Polypropylène renforcé à 30 % en masse de fibres de verre courtes à 200°C

L/D	Vitesse du piston, cm/min					
	0.05	0.1	0.125	0.2	0.25	0.5
24.7	20.8	29.4	33.5	40.1	43.1	54.7
35.5	33.6	46.4	49.9	62.4	65.5	82.2
40.0	37.0	50.0	53.7	65.2	70.0	88.0

L/D	Vitesse du piston, cm/min				
	1	71.25	2	2.5	5
24.7	69.2	73.6	87.0	92.8	114.2
35.5	101.0	109.0	121.0	134.0	168.0
40.0	110.0	120.0	140.0	150.0	186.0

ANNEXE II : PERTES DE CHARGE DANS LA FILIÈRE PLATE, Pa

Tableau IV.3 Polypropylène à 180°C

Capteur de pression	Vitesse d'injection, mm/s					
	0.2	0.4	0.7	2	5	10
P1	8.31E+06	1.07E+07	1.32E+07	1.76E+07	2.12E+07	2.45E+07
P2	6.84E+06	8.77E+06	1.07E+07	1.41E+07	1.71E+07	1.96E+07
P3	4.54E+06	5.89E+06	7.29E+06	9.66E+06	1.17E+07	1.35E+07
P4	2.96E+06	3.71E+06	4.47E+06	5.83E+06	6.98E+06	7.99E+06

Capteur de pression	Vitesse d'injection, mm/s	
	20	50
P1	2.75E+07	3.08E+07
P2	2.20E+07	2.46E+07
P3	1.51E+07	1.68E+07
P4	8.98E+06	1.00E+07

Tableau IV.4 Polypropylène à 200°C

Capteur de pression	Vitesse d'injection, mm/s					
	0.2	0.4	0.7	2	5	10

P1	6.90E+06	9.05E+06	1.12E+07	1.55E+07	1.99E+07	2.30E+07
P2	5.72E+06	7.45E+06	9.16E+06	1.26E+07	1.61E+07	1.85E+07
P3	3.76E+06	4.97E+06	6.16E+06	8.61E+06	1.11E+07	1.27E+07
P4	2.56E+06	3.21E+06	3.86E+06	5.21E+06	6.60E+06	7.58E+06

Vitesse d'injection, mm/s						
Capteur de pression	20	50	104	140	160	
P1	2.62E+07	3.00E+07	3.22E+07	3.28E+07	3.35E+07	
P2	2.10E+07	2.39E+07	2.54E+07	2.60E+07	2.66E+07	
P3	1.45E+07	1.65E+07	1.78E+07	1.81E+07	1.85E+07	
P4	8.55E+06	9.71E+06	1.05E+07	1.11E+07	1.12E+07	

Tableau IV.5 Polypropylène à 220°C

Vitesse d'injection, mm/s						
Capteur de pression	0.2	0.4	0.7	2	5	10
P1	5.98E+06	7.92E+06	9.95E+06	1.39E+07	1.84E+07	2.19E+07
P2	5.01E+06	6.56E+06	8.17E+06	1.13E+07	1.49E+07	1.77E+07
P3	3.26E+06	4.34E+06	5.46E+06	7.70E+06	1.02E+07	1.21E+07
P4	2.32E+06	2.89E+06	3.51E+06	4.75E+06	6.11E+06	7.19E+06

Vitesse d'injection, mm/s						
Capteur de pression	20	50	104	140	160	180

P1	2.53E+07	2.89E+07	3.18E+07	3.29E+07	3.31E+07	3.30E+07
P2	2.03E+07	2.30E+07	2.51E+07	2.61E+07	2.61E+07	2.62E+07
P3	1.39E+07	1.57E+07	1.75E+07	1.79E+07	1.83E+07	1.79E+07
P4	8.21E+06	9.31E+06	1.04E+07	1.07E+07	1.09E+07	1.08E+07

Tableau IV.6 Polypropylène renforcé de 10 % en masse de fibres de verre courtes à 200°C

Capteur de pression	Vitesse d'injection, mm/s					
	0.3	0.4	0.7	1	2	5
P1	6.32E+06	6.81E+06	8.67E+06	9.67E+06	1.23E+07	1.61E+07
P2	4.52E+06	4.88E+06	6.19E+06	6.91E+06	8.85E+06	1.16E+07
P3	3.02E+06	3.25E+06	4.15E+06	4.64E+06	5.95E+06	7.86E+06
P4	1.47E+06	1.59E+06	2.07E+06	2.33E+06	3.04E+06	4.13E+06

Capteur de pression	Vitesse d'injection, mm/s					
	10	21	52	104	120	130
P1	1.91E+07	2.22E+07	2.58E+07	2.80E+07	2.86E+07	2.91E+07
P2	1.37E+07	1.59E+07	1.85E+07	2.02E+07	2.02E+07	2.06E+07
P3	9.30E+06	1.09E+07	1.27E+07	1.39E+07	1.40E+07	1.41E+07
P4	4.98E+06	5.94E+06	7.09E+06	7.88E+06	7.96E+06	8.13E+06

Vitesse d'injection, mm/s	
Capteur de	140
pression	
P1	2.83E+07
P2	2.02E+07
P3	1.40E+07
P4	7.90E+06

Tableau IV.7 Polypropylène renforcé de 30 % en masse de fibres de verre courtes à 180°C

		Vitesse d'injection, mm/s					
Capteur de	pression	0.2	0.4	0.7	2	5	10
P1		7.98E+06	1.04E+07	1.32E+07	1.78E+07	2.20E+07	2.57E+07
P2		6.47E+06	8.40E+06	1.03E+07	1.40E+07	1.74E+07	2.01E+07
P3		4.25E+06	5.62E+06	6.93E+06	9.54E+06	1.18E+07	1.37E+07
P4		2.87E+06	3.65E+06	4.33E+06	5.88E+06	7.21E+06	8.25E+06

Vitesse d'injection, mm/s	
Capteur de	20
pression	
P1	2.83E+07
P2	2.22E+07
P3	1.52E+07
P4	9.20E+06

Tableau IV.8 Polypropylène renforcé de 30 % en masse de fibres de verre courtes à 200°C

Capteur de pression	Vitesse d'injection, mm/s					
	0.2	0.4	0.7	2	5	10
P1	7.73E+06	1.02E+07	1.25E+07	1.73E+07	2.18E+07	2.54E+07
P2	6.36E+06	8.26E+06	1.01E+07	1.39E+07	1.74E+07	2.02E+07
P3	4.21E+06	5.54E+06	6.87E+06	9.53E+06	1.20E+07	1.39E+07
P4	2.85E+06	3.59E+06	4.34E+06	5.86E+06	7.29E+06	8.40E+06

Capteur de pression	Vitesse d'injection, mm/s			
	20	50	104	140
P1	2.88E+07	3.24E+07	3.51E+07	3.62E+07
P2	2.28E+07	2.54E+07	2.72E+07	2.81E+07
P3	1.58E+07	1.76E+07	1.91E+07	1.98E+07
P4	9.46E+06	1.06E+07	1.15E+07	1.18E+07

Tableau IV.9 Polypropylène renforcé de 30 % en masse de fibres de verre courtes à 220°C

Capteur de pression	Vitesse d'injection, mm/s					
	0.2	0.4	0.7	2	5	10
P1	6.41E+06	8.35E+06	1.04E+07	1.44E+07	1.86E+07	2.21E+07
P2	5.31E+06	6.85E+06	8.44E+06	1.16E+07	1.49E+07	1.77E+07
P3	3.44E+06	4.54E+06	5.66E+06	7.90E+06	1.01E+07	1.21E+07
P4	2.47E+06	3.08E+06	3.70E+06	4.97E+06	6.23E+06	7.38E+06

Capteur de pression	Vitesse d'injection, mm/s				
	20	50	104	140	160
P1	2.53E+07	2.92E+07	3.22E+07	3.28E+07	3.27E+07
P2	2.01E+07	2.31E+07	2.52E+07	2.57E+07	2.56E+07
P3	1.38E+07	1.59E+07	1.76E+07	1.78E+07	1.77E+07
P4	8.35E+06	9.60E+06	1.05E+07	1.08E+07	1.09E+07

ANNEXE III : PROFILS DE PRESSION DANS LA FILIÈRE PLATE

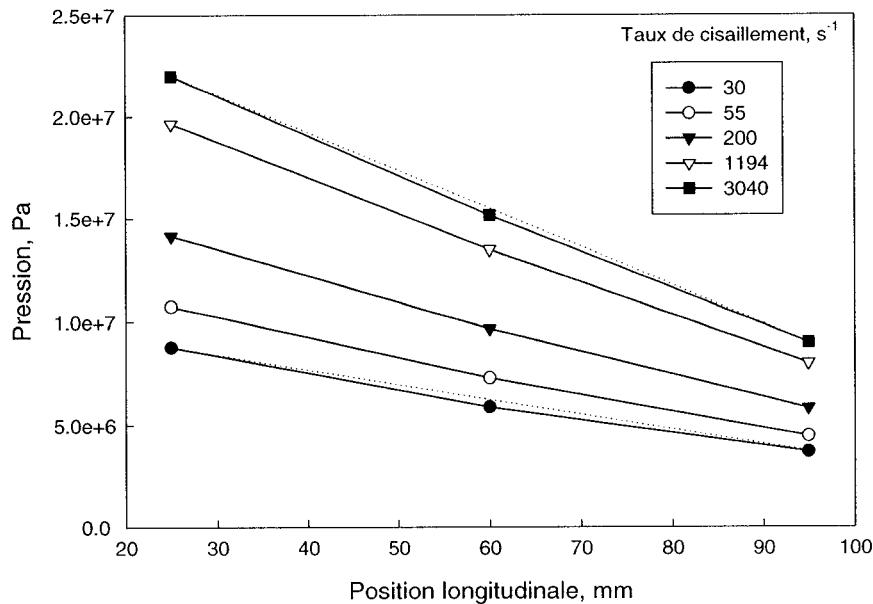


Figure IV.1 Profils de pression dans la filière plate pour le polypropylène à 180°C

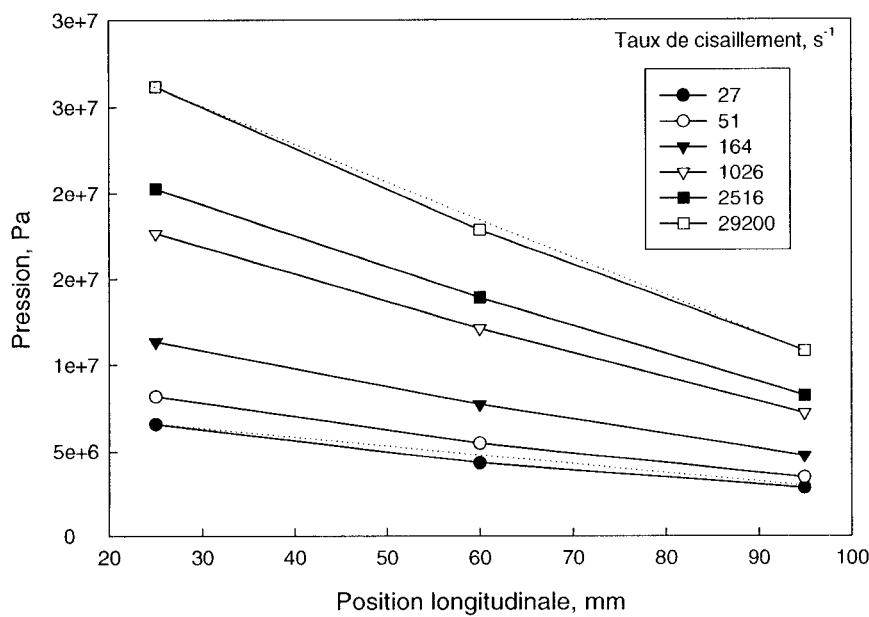


Figure IV.2 Profils de pression dans la filière plate pour le polypropylène à 220°C

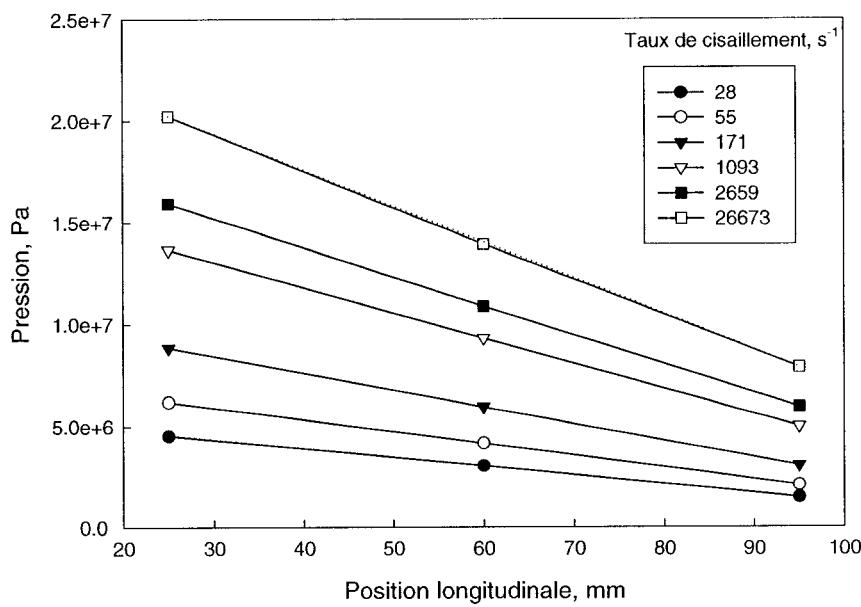


Figure IV.3 Profils de pression dans la filière plate pour le polypropylène renforcé de 10 % en masse de fibres de verre courtes à 200°C

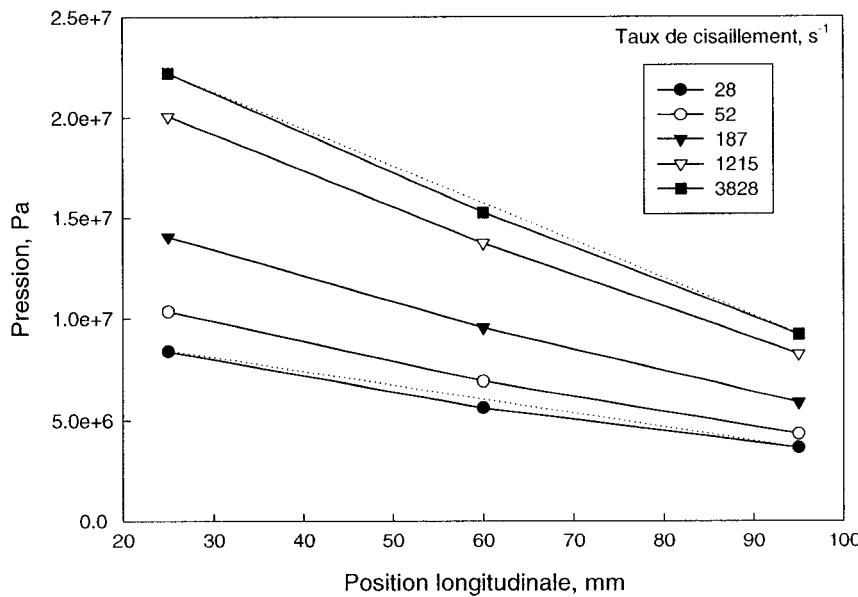


Figure IV.4 Profils de pression dans la filière plate pour le polypropylène renforcé de 30 % en masse de fibres de verre courtes à 180°C

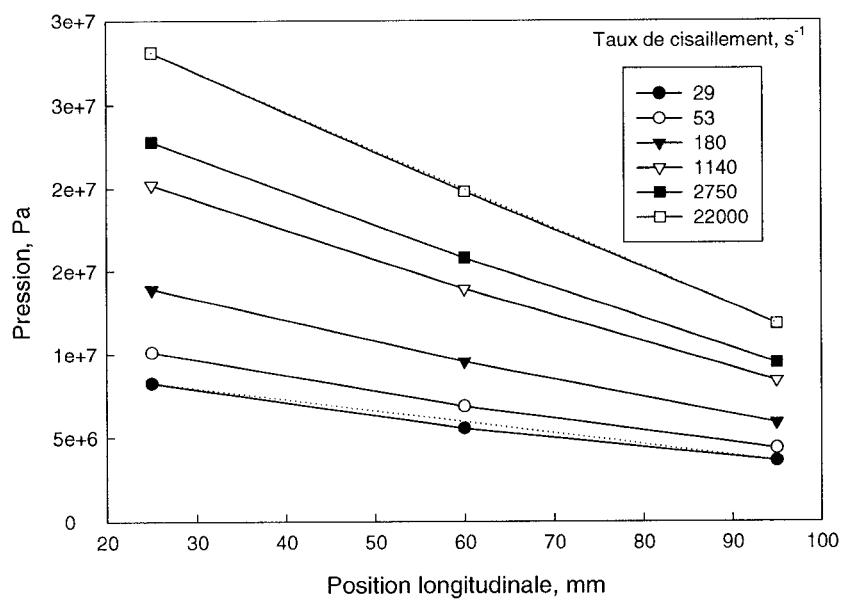


Figure IV.5 Profils de pression dans la filière plate pour le polypropylène renforcé de 30 % en masse de fibres de verre courtes à 200°C

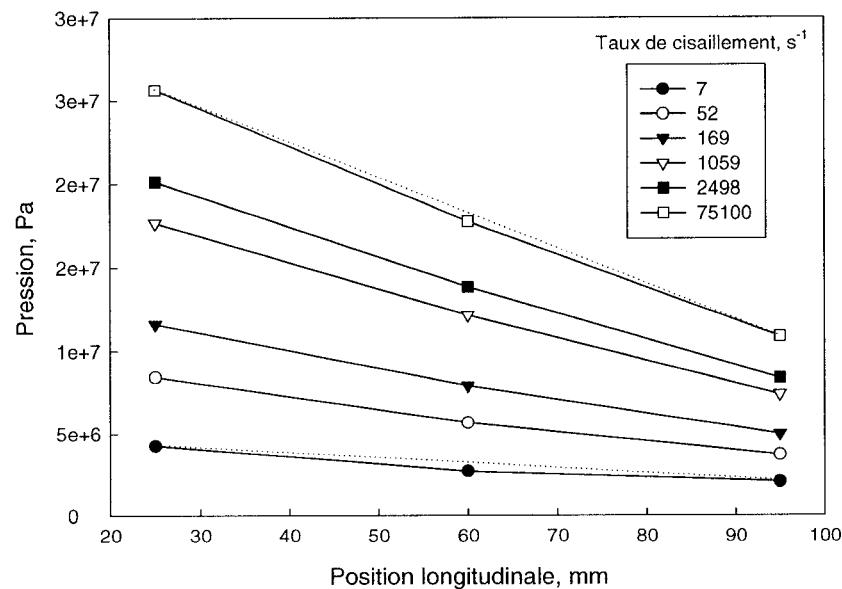


Figure IV.6 Profils de pression dans la filière plate pour le polypropylène renforcé de 30 % en masse de fibres de verre courtes à 220°C

ANNEXE IV : VISCOSITÉS EN CISAILLEMENT AUX TAUX DE CISAILLEMENT ÉLEVÉS

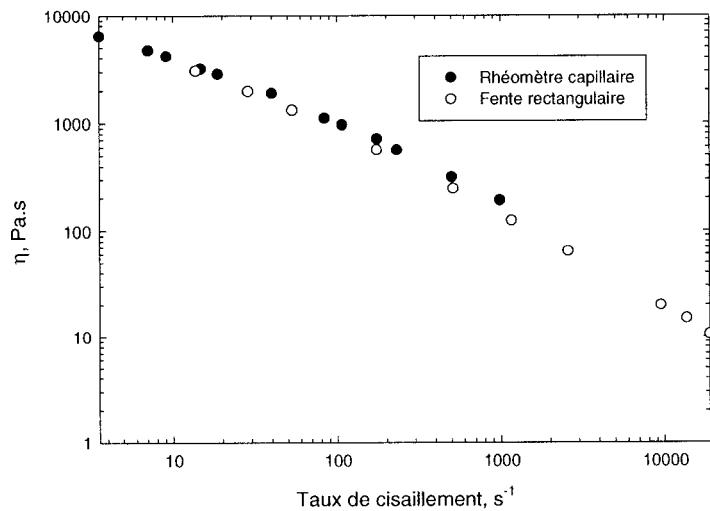


Figure IV.7 Courbe d'écoulement du polypropylène à 200°C

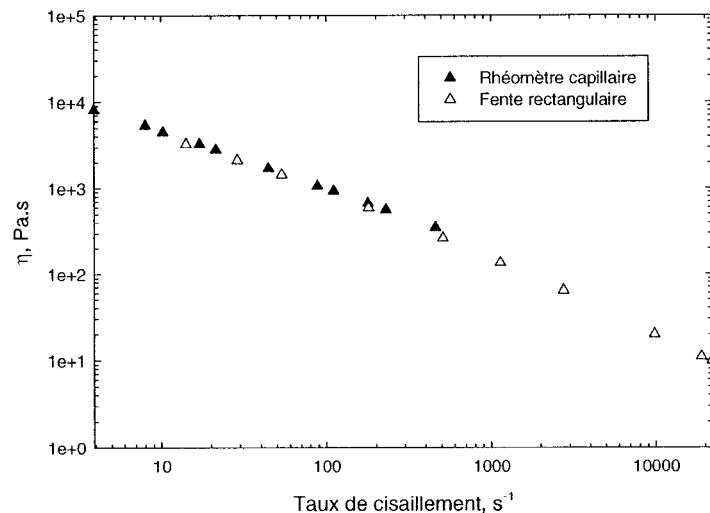


Figure IV.8 Courbe d'écoulement du polypropylène renforcé de 30 % en masse de fibres de verre courtes à 200°C

ANNEXE V : PERTES DE CHARGE DANS LES CONVERGENTS, Pa

Tableau IV.10 Polypropylène

Convergent	Température, °C	Vitesse d'injection, mm/s					
		0.1	0.2	0.8	1.0	1.4	
a	200	4.11E+05	5.31E+05	7.31E+05	-	-	
b	200	6.40E+05	8.01E+05	1.04E+06	1.25E+06	1.40E+06	

Convergent	Températures °C	Vitesse d'injection, mm/s					
		2.0	3.0	4.0	5.0	8.0	
a	200	1.03E+06	-	1.20E+06	-	1.43E+06	
b	200	-	1.76E+06	-	2.14E+06	-	

Convergent	Températures °C	Vitesse d'injection, mm/s					
		10.0	13.0	14.0	20.0	52.0	
a	200	1.59E+06	-	1.79E+06	2.14E+06	2.42E+06	
b	200	-	2.57E+06	2.81E+06	3.28E+06	3.72E+06	

Convergent	Températures °C	Vitesse d'injection, mm/s					
		104.0	120.0	140.0	160.0	190.0	
a	200	2.58E+06	-	2.64E+06	-	2.78E+06	
b	200	4.17E+06	4.11E+06	-	4.28E+06	4.28E+06	

Tableau IV.11 Polypropylène renforcé de 10 % en masse de fibres de verre courtes

Convergent	Températures	Vitesse d'injection, mm/s					
		°C	0.2	0.4	0.6	0.8	1.0
a	200	4.08E+05	5.26E+05	6.16E+05	-	-	7.42E+05
b	200	6.30E+05	8.11E+05	-	-	1.05E+06	-

Convergent	Températures	Vitesse d'injection, mm/s					
		°C	1.4	2	3	4	5
a	200	-	-	-	1.05E+06	-	1.23E+06
b	200	1.27E+06	1.41E+06	-	-	1.74E+06	-

Convergent	Températures	Vitesse d'injection, mm/s					
		°C	8	9	13	14	20
a	200	-	1.45E+06	1.61E+06	-	-	1.80E+06
b	200	2.16E+06	-	-	-	2.53E+06	2.78E+06

Convergent	Températures	Vitesse d'injection, mm/s					
		°C	40	80	120	140	160
a	200	2.14E+06	2.52E+06	2.63E+06	-	-	2.78E+06
b	200	3.22E+06	3.68E+06	3.99E+06	4.07E+06	-	-

Tableau IV.12 Polypropylène renforcé de 30 % en masse de fibres de verre courtes

Convergent	Température °C	Vitesse d'injection, mm/s				
		0.2	0.4	0.6	0.8	1.0
a	180	5.52E+05	7.15E+05	8.23E+05	-	-
	200	4.72E+05	6.25E+05	7.13E+05	-	8.26E+05
	220	4.08E+05	5.33E+05	6.24E+05	-	-
b	200	6.91E+05	8.87E+05	-	1.15E+06	-

Convergent	Température °C	Vitesse d'injection, mm/s				
		1.4	2.0	3.0	4.0	5.0
a	180	-	-	1.47E+06	-	1.63E+06
	200	-	-	1.16E+06	-	1.39E+06
	220	-	-	1.05E+06	-	1.21E+06
b	200	1.38E+06	1.55E+06	-	1.88E+06	-

Convergent	Température °C	Vitesse d'injection, mm/s				
		8.0	9.0	13.0	14.0	20.0
a	180	-	1.96E+06	2.18E+06	-	2.42E+06
	200	-	1.60E+06	1.80E+06	-	2.00E+06
	220	-	1.44E+06	-	-	1.79E+06
b	200	2.34E+06	-	-	2.73E+06	2.97E+06

Convergent	Température °C	Vitesse d'injection, mm/s				
		40.0	80.0	120.0	160.0	200.0
a	180	2.75E+06	3.17E+06	3.43E+06	3.40E+06	3.43E+06
	200	2.37E+06	2.70E+06	3.00E+06	3.11E+06	3.13E+06
	220	2.14E+06	2.49E+06	2.73E+06	2.86E+06	-
b	200	3.47E+06	4.01E+06	4.32E+06	4.46E+06	4.56E+06

ANNEXE VI : TEMPS DE RÉSIDENCE DANS LES CONVERGENTS

La vitesse moyenne et la hauteur à une position z donnée s'exprime pour les deux convergents par :

$$\langle V_z \rangle = \frac{Q}{2wh(z)}; \quad h(z) = \left(2 \frac{\dot{\varepsilon}_{\max} w z}{Q_{\max}} + \frac{1}{h_0} \right)^{-1} \quad (76)$$

Le temps de résidence s'écrit :

$$t_R = \int_0^L \frac{1}{\langle V_z \rangle} dz = \frac{2w}{Q} \int_0^L h(z) dz \quad (77)$$

Soit :

$$t_R = \frac{Q_{\max}}{\dot{\varepsilon}_{\max} Q} \ln \left(1 + 2 \frac{w \dot{\varepsilon}_{\max} L h_0}{Q_{\max}} \right) \quad (78)$$

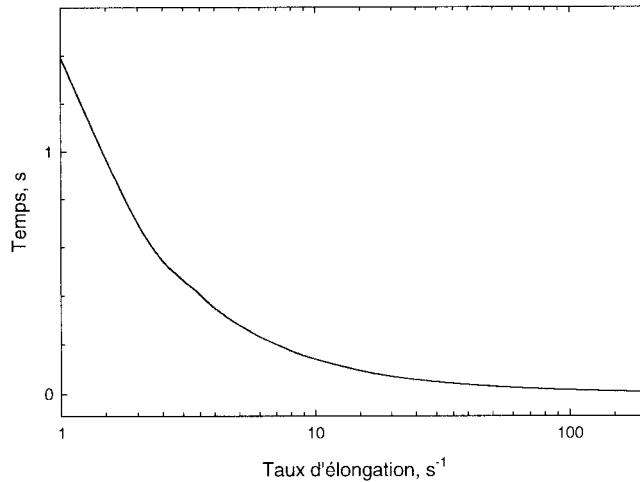


Figure IV.9 Temps de convergence en fonction du taux d'elongation dans les convergents *a* et *b*

ANNEXE VII : MODÈLE DE BACHELOR ET DISTRIBUTION DE TAILLE DES FIBRES

Pour des suspensions de particules de forme quelconque dans un fluide newtonien à une concentration arbitraire, Batchelor [61] exprime leur contribution, $\langle \sigma^p \rangle$, au champ de contrainte homogène macroscopique de la façon suivante :

$$\langle \sigma_{ij}^p \rangle = \frac{1}{V} \sum_{m=1}^N \int_{V_m} \sigma_{ij}^m dv = \frac{1}{V} \sum_{m=1}^N \int_{\partial V_m} \sigma_{ik}^m x_j n_k ds \quad (79)$$

où x désigne la position d'un point dans le repère utilisé, $\sigma_{ik}^m n_k$ la force par unité de surface exercée par le fluide sur la surface où n est le vecteur unitaire normale à cette surface, N le nombre de fibres contenues dans le volume V et v_m le volume de la fibre m .

Pour des particules allongées de longueur $2l_m$, l'équation (78) devient :

$$\langle \sigma_{ij}^p \rangle = -\frac{1}{V} \sum_{m=1}^N p_i p_j l_m^2 \int_{-l_m}^{l_m} \underline{p} \cdot \underline{F} s ds \quad (80)$$

où sl_m représente la distance le long de l'axe de la particule m à partir de son centre, \underline{p} , le vecteur unitaire porté par son axe et \underline{F} , la force par unité de longueur exercée par la particule sur le fluide ambiant à la position s .

Dans certaines circonstances, comme lors d'un écoulement élongationnel, les particules tendent à rejoindre la même orientation et l'expression devient alors :

$$\langle \sigma_{ij}^p \rangle = -\frac{p_i p_j}{V} \sum_{m=1}^N l_m^{-2} \int_{-l}^l p_F s ds \quad (81)$$

Pour un écoulement élongationnel d'une suspension de particules proches alignées selon la direction z de l'écoulement, Batchelor [61] propose l'expression suivante pour la force F_z s'appliquant à une distance sl_m du centre d'une particule m :

$$F_z = -\frac{2\pi\mu\dot{\epsilon}_{zz}sl_m}{\ln\left(\frac{2k}{D_m}\right)} \quad (82)$$

où k représente la distance moyenne entre les particules estimée par les auteurs de l'ordre de $(2nl)^{-1/2}$ avec n le nombre de particules par unité de volume.

En substituant cette équation dans l'expression du champ de contrainte et en considérant que les particules se différencient les unes des autres uniquement par leur longueur, ce dernier s'écrit alors :

$$\langle \sigma_{11}^p \rangle = \frac{4\pi\mu\dot{\epsilon}_{zz}}{3V \ln\left(\frac{2k}{D}\right)} \sum_{m=1}^N l_m^3 \quad (83)$$

Or $V = \frac{\pi D^2 \sum_{m=1}^N l_m}{2c_v}$ et $\frac{2k}{D} = \left(\frac{\pi}{c_v}\right)^{\frac{1}{2}}$ soit :

$$\langle \sigma_{zz}^p \rangle = \frac{4}{3} \frac{\mu\dot{\epsilon}_{zz}c_v}{\ln\left(\frac{\pi}{c_v}\right)(D/2)^2} \frac{\sum_{i=1}^N l_i^3}{\sum_{i=1}^N l_i} \quad (84)$$

Si les fibres sont toutes de la même taille, l'équation précédente se réduit à celle donnée par Batchelor [61] :

$$\langle \sigma_{11}^p \rangle = \frac{4}{3} \frac{\mu \dot{\epsilon}_{zz} c_v r^2}{\ln\left(\frac{\pi}{c_v}\right)} \quad (85)$$