



HAL
open science

Modélisation thermomécanique visco-hyperélastique du comportement d'un polymère semi-cristallin : application au cas d'une matrice polyamide 6.6

Erwan Baquet

► **To cite this version:**

Erwan Baquet. Modélisation thermomécanique visco-hyperélastique du comportement d'un polymère semi-cristallin : application au cas d'une matrice polyamide 6.6. Matériaux. École Nationale Supérieure des Mines de Paris, 2011. Français. NNT : 2011ENMP0101 . pastel-00715693

HAL Id: pastel-00715693

<https://pastel.hal.science/pastel-00715693>

Submitted on 9 Jul 2012

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

École doctorale n°364 : Sciences Fondamentales et Appliquées

Doctorat ParisTech

T H È S E

pour obtenir le grade de docteur délivré par

l'École nationale supérieure des mines de Paris

Spécialité « Sciences et Génie des Matériaux »

présentée et soutenue publiquement par

Erwan BAQUET

le 15 décembre 2011

**Modélisation thermomécanique visco-hyperélastique du
comportement d'un polymère semi-cristallin : application au cas
d'une matrice polyamide 6.6**

Directeur de thèse : **Noëlle BILLON**
Co-encadrement de la thèse : **Jérôme BIKARD**

Jury

M. Christophe FOND, Professeur, IUT Robert Schumann, Strasbourg-IIIkirch
Mme. Sylvie CASTAGNET, Chargée de Recherche, ENSMA Poitiers
M. André CHRYSOCHOOS, Professeur, Université Montpellier 2
M. Issam DOGHRI, Professeur, Université Catholique de Louvain
M. Gilles ROBERT, Docteur, Senior Staff Scientist, Rhodia Engineering Plastics
M. Jérôme BIKARD, Docteur, CEMEF, Mines ParisTech
Mme. Noëlle BILLON, Professeur, CEMEF, Mines ParisTech
M. Olivier MOULINJEUNE, Simulation Expert, Rhodia Engineering Plastics

Président
Rapporteur
Rapporteur
Examineur
Examineur
Examineur
Invité

MINES ParisTech
Centre de Mise en Forme des Matériaux - UMR 7635
BP 207, 06904 Sophia Antipolis

**T
H
È
S
E**

TABLE DES MATIÈRES

TABLE DES MATIÈRES	i
NOTATIONS	v
REMERCIEMENTS	ix
CHAPITRE 1 : INTRODUCTION	1
1.1 Cadre de l'étude	2
1.2 Démarche générale	3
CHAPITRE 2 : BASE DE CONNAISSANCE MATÉRIAU	7
2.1 Nature du matériau	8
2.2 Structure des pièces injectées	9
2.2.1 Observations microstructurales	10
2.3 Analyse mécanique dynamique (DMA)	11
2.3.1 Principe de mesure	11
2.3.2 Sensibilité à la zone de prélèvement	12
2.3.3 Effet de la température	13
2.3.4 Principe d'équivalence temps / température	16
2.3.5 Loi d'évolution des facteurs de glissement	17
2.4 Essais à réaliser / Objectifs expérimentaux	19
CHAPITRE 3 : COMPORTEMENT THERMOMÉCANIQUE DU POLYAMIDE 66	21
3.1 Protocole d'essais mécanique et thermique	22
3.1.1 Suivi de déformations vidéométriques	22
3.1.2 Analyse d'image	23
3.1.3 Validation des mesures de déformations	26
3.1.4 Mesures 3D	27
3.1.5 Mesure de température	29
3.1.6 Asservissement en vitesse de traverse	31
3.1.7 Prélèvement et pré-conditionnement	32
3.1.8 Conclusion	35

3.2	Protocole de chargement, Traction uniaxiale	36
3.2.1	Analyse critique des essais	37
3.2.2	Comportement thermomécanique global	45
3.2.3	Chargements cycliques	54
3.3	Cisaillement simple	58
3.3.1	Système de cisaillement simple type Iosipescu	58
3.3.2	Mesures mécaniques et thermiques	60
3.3.3	Résultats	62
3.3.4	Conclusion	69
3.4	Bilan général comportement thermomécanique	70

CHAPITRE 4 : ETAT DE L'ART SUR LA MODÉLISATION DU COMPORTE-		
MENT THERMOMÉCANIQUE DES POLYMÈRES		71
4.1	Introduction	72
4.2	Thermodynamique en grandes transformations	76
4.2.1	Enoncés fondamentaux de la thermodynamique	76
4.2.2	Energie libre	77
4.2.3	Invariants de déformation	78
4.2.4	Expression du taux de déformation	79
4.2.5	Cas particulier de la décomposition des déformations	80
4.2.6	Equations constitutives	81
4.2.7	Entropie	82
4.2.8	Expression de la contrainte	82
4.2.9	Dissipation intrinsèque	83
4.2.10	Equation de la chaleur	84
4.2.11	Conclusion	85
4.3	Approches visco-élastiques et/ou viscoplastiques	86
4.3.1	Formulations intégrales et spectrales	86
4.3.2	Modèle solide standard modifié	88
4.3.3	Thermo-viscoélasticité	90
4.3.4	Viscoélasticité de la phase amorphe en charge décharge	93
4.3.5	Viscoélasticité et visco-plasticité couplées	96
4.3.6	Viscoélasticité et viscoplasticité à deux phases	99

4.3.7	Elasto-viscoplastique	100
4.3.8	Modélisations hyperélastiques	107
4.3.9	Bilan	111
4.4	Approche statistique de chaînes	112
4.4.1	Exemple de l'approche d'Arruda-Boyce	112
4.4.2	Exemple de l'approche de Ball et al	115
4.4.3	Exemple de l'approche d'Edwards-Vilgis	118
4.5	Bilan	121
CHAPITRE 5 : MODÉLISATION THERMOMÉCANIQUE		123
5.1	Modélisation visco-hyperélastique du matériau	124
5.1.1	Forme de l'énergie W	124
5.1.2	Anélasticité entropique	125
5.1.3	Expression de Clausius-Duhem	127
5.1.4	Entropie	128
5.1.5	Contrainte	129
5.1.6	Forces thermodynamiques	129
5.1.7	Coefficient de Taylor-Quinney	130
5.1.8	Loi de comportement anélastique	131
5.1.9	Couplages thermiques	132
5.1.10	Bilan	132
5.2	Implémentations numériques avec couplage thermique faible	133
5.2.1	Validation 1D isotherme	133
5.2.2	Sensibilité du modèle de comportement aux paramètres	144
5.2.3	Lois d'évolutions des paramètres globaux	147
5.3	Extension du formalisme thermodynamique en équivalence temps/température	151
5.3.1	Grandeurs équivalentes	151
5.3.2	Couplages thermiques forts	151
5.4	Implémentations numériques avec couplages thermomécaniques forts	153
5.5	Identification couplée des paramètres	156
5.6	Conclusion	160
CHAPITRE 6 : CONCLUSION ET PERSPECTIVES		162

BIBLIOGRAPHIE	165
I.1 Simplification de la dissipation intrinsèque	xiii
I.2 Expressions analytiques des dérivées partielles	xiv

NOTATIONS

T	Température
T_α	Température de transition mécanique α
δ	Angle de déphasage
$a_T(T)$	Facteur de glissement à la température T
T_r, T_d, T_{vf}	Température extérieure, de fusion et de Vogel-Fulcher
F	Force
S_0	Section initiale
V_0	Volume initial
σ	Tenseur des contraintes de Cauchy
σ_e	Tenseur des contraintes élastiques
σ_{ve}	Tenseur des contraintes viscoélastiques
σ_p	Tenseur des contraintes plastiques
σ_{vp}	Tenseur des contraintes viscoplastiques
ε	Tenseur des déformations totales
$\dot{\varepsilon}$	Tenseur des vitesses de déformation
ε_e	Tenseur des déformations élastiques
ε_{an}	Tenseur des déformations anélastiques
ε_p	Tenseur des déformations plastiques
ε_{vp}	Tenseur des déformations viscoplastiques
\mathbf{V}_k	Jeu de variables internes
\mathbf{A}_k	Forces thermodynamiques associées aux variables internes
\mathbb{E}	Tenseur d'élasticité de Hooke
α	Variable d'écrouissage cinématique
\mathbf{X}	Tenseur d'écrouissage cinématique
r'	Ecrouissage isotrope
R	Fonction d'écrouissage isotrope
$\hat{\varepsilon}$	Tenseur de déformation en notations matricielles de Voigt

\vec{q}	Flux de chaleur
r	Terme source d'énergie interne
$\phi, \phi_{int}, \phi_{visq}, \phi_{th}$	Dissipation totale, intrinsèque, visqueuse et thermique
Ψ	Energie libre spécifique
W	Densité volumique d'énergie libre lagrangienne
ρ	Densité
e	Energie libre spécifique
s	Entropie libre spécifique
\mathbf{F}	Gradient de transformation
$\dot{\mathbf{F}}$	Dérivée du gradient de transformation
\mathbb{C}	Tenseur de Cauchy-Green droit relatif
\mathbb{B}	Tenseur de Cauchy-Green gauche relatif
\mathbb{D}	Tenseur des taux de déformation
I_1, I_2, I_3	Invariants des déformations
\mathbf{l}	Gradient spatial
\mathbf{F}_e	Gradient de transformation élastique
\mathbf{F}_v	Gradient de transformation anélastique
\mathbb{D}_e	Tenseur des taux de déformation élastique
\mathbb{D}_v	Tenseur des taux de déformation anélastique
n	Densité de chaîne
N	Nombre de nœuds du réseau
E_a	L'énergie thermique de dissociation
N_c	Nombre de points de réticulation ou de nœuds figés
N_s	Nombre de points d'enchevêtrement ou de nœuds mobiles
η	Mesure du glissement potentiel dans les nœuds d'enchevêtrement
α	Potentiel d'extensibilité de la chaîne
λ_i	Extensions principales dans les directions $i = 1, 2, 3$
z_p	Force entropique des nœuds d'enchevêtrement

REMERCIEMENTS

CETTE étude a été réalisée dans le cadre d'un projet EUREKA, composé de deux partenaires industriels : Rhodia Polyamide et e-Xstream, et de deux partenaires académiques : L'Université Catholique de Louvain et le Centre de Mise en Forme des Matériaux. Travailler au sein de ce partenariat a été très enrichissant aussi bien au niveau professionnel que humain.

Cette étude doctorale est donc le fruit d'une collaboration de plusieurs équipes de recherche, qui m'a permis de mener à bien l'étude présentée dans ce manuscrit.

Je souhaite remercier Sylvie Castagnet et André Chrysochoos d'avoir accepté d'être les rapporteurs de ce manuscrit. Merci pour vos remarques, questions et discussions constructives qui ont suivies.

Je remercie également Christophe Fond d'avoir accepté de faire parti de mon jury de thèse. Merci également pour vos remarques et les discussions qui ont suivies.

Je remercie également deux partenaires de ce projet EUREKA, Issam Doghri et Olivier Moulinjeune, qui ont accepté de faire parti de mon jury. Merci de votre présence, de votre patience et de nos discussions tous au long de cette étude.

Un grand merci, également, à Gilles Robert, pour son support tout au long de ce périple. Tu as su animer cette collaboration, apporter aussi bien tes connaissances techniques que culturelles, et faire avancer cette équipe. Merci également d'avoir accepté de faire parti de mon jury.

Cette thèse s'est déroulée sous la direction de Noëlle Billon, qui a su diriger, orienter et encourager un breton têtue à persévérer. Merci de ton soutien, de tes remarques et de ton accompagnement technique et humain au cours de ces trois ans au Cemef, et du temps extensif que tu as acceptée de consacrer pendant ma rédaction, pour tes corrections. Merci de m'avoir détourné du monde des métaux, pour la découverte du monde des polymères.

La co-direction de thèse a été réalisée sous la supervision de Jérôme Bikard, qui a, tout long de cette étude, vérifié le nombre de traits sous les lettres et remis de l'ordre dans mes équations. Merci pour ces dizaines de tableaux recouverts d'équations, de ton aide précieuse et indispensable durant ces années, et merci de ton temps consacré aux corrections.

Je remercie également l'ensemble des personnes qui m'ont accompagné pendant cette période, sans

qui cette thèse n'aurait pas pu se faire. Les citer sans oublier certains est toujours difficile, surtout après tout ce temps, mais un grand merci à Simon, Gilbert, Marie-Françoise, Andri, Gabi, Alain, Suzanne, toute l'équipe des outilleurs, le service informatique et tous ceux qui m'ont permis d'avancer pendant cette étude.

Une pensée également à José, qui a débuté l'aventure avec nous, et qui a dû partir plus tôt vers d'autres horizons. Merci à toi, José, pour ta collaboration dans nos essais expérimentaux complexes. Merci à toi pour ton apport dans la partie thermique, qui a su mettre en évidence que les matériaux refroidissent sous sollicitations mécaniques.

Merci à tous les collègues que j'ai pu côtoyer pendant cette étape de ma vie, qui au fil du temps sont devenus pour certains des amis, et sans qui rien n'aurait été possible : Andri, Benoît, Bruno, Cheima, Christelle, Christophe, Damien, Evelyne, Florian, Franck, Gilles, Hallem, Hicham, Jeff, Julien, José, Laurence, Marie-Cécile, Marie-Céline, Maxime, Nadia, Noura, Raphaëlle, Romain, Sabine, Severine, Sami, Thomas, ainsi que tout ceux que j'oublie et qui se reconnaîtrons.

Merci également à toi, Alexandra, qui partage ma vie depuis 3 ans, pour ton réconfort, ton soutien inébranlable, ta présence et ton amour.

Merci également à ma famille pour son soutien, en plus d'un grand merci à mes parents, de m'avoir permis de réaliser toutes ces longues années d'études, de leur confiance et de leur soutien immuable vers la voie de la sagesse et de la connaissance.

A Jean et Roger, partis trop tôt pour voir la conclusion de ce chapitre.

CHAPITRE 1

INTRODUCTION

LES polymères font désormais partie intégrante de notre quotidien. Leurs capacités à remplir des fonctions de "matériaux de structure", en garantissant d'excellentes propriétés de tenue mécanique pour des coûts et une masse faibles, les destinent à une utilisation de plus en plus large, dans des applications ne se cantonnant plus seulement aux pièces d'usage.

Pour cela, il faut disposer de modèles et de paramètres de comportement susceptibles d'autoriser un dimensionnement fiable. Pour autant que les polymères soient concernés, ce domaine reste ouvert et un effort de modélisation est encore nécessaire. L'ambition de cette étude doctorale est de fournir, dans un cadre thermodynamique propre, un tel formalisme, pour un polyamide 6.6, dans la zone de transition vitreuse de sa phase amorphe.

Avant de présenter la démarche et de rentrer dans le vif du sujet, commençons par l'historique de ce polymère, son domaine d'application et quelques données macro-économiques.

Les polyamides ([1]) ont leur origine avec le polyamide 6.6, préparé pour la première fois par W.H. Carothers, en 1935, à partir d'acide adipique et d'hexaméthylène diamine. Commercialisé par Du Pont de Nemours, en 1938, en tant que fibres textiles entièrement synthétiques, sous l'appellation Nylon®[®], les polyamides connurent rapidement une grande diffusion. Vers 1941, le Nylon®[®] commença à être aussi distribué sous forme de poudre (ou granulés) pour les applications de type pièces moulées. En effet, son caractère semi-cristallin le distinguait des polymères amorphes utilisés à l'époque par :

- D'une part, une transition très rapide de l'état solide à l'état liquide ;
- D'autre part, des propriétés mécaniques (rigidité, dureté, résistance au frottement) et une tenue en température supérieure.

L'ensemble de ces propriétés conduisit donc à qualifier le Nylon®[®] de "thermoplastique technique".

Les "plastiques techniques" ([2]) sont utilisés pour leurs performances mécaniques et thermiques dans des secteurs à haute technicité, comme l'automobile, les composants électriques ou électroniques,

les biens industriels ou de grande consommation, le sport ou encore les loisirs. Ils sont souvent utilisés en substitution d'aciers ou d'alliages d'aluminium, car ils permettent des allègements significatifs et contribuent ainsi au développement durable. Ils offrent également une plus grande liberté en termes de conception.

1.1 Cadre de l'étude

Dans ce contexte dynamique, l'étude présentée ici fait partie du projet Européen EUREKA numéro 3755, II, intitulé DAMOFIP, acronyme pour "DAMage Of FIlber reinforced Polyamid", consistant en une modélisation multi-échelle du comportement mécanique en endommagement des composites polyamides renforcés fibre de verre.

Ce projet a pour but de proposer une prédiction intégrée (de la mise en œuvre à l'utilisation) de l'endommagement et de la rupture de composites polyamide 6.6, renforcés de fibres de verre courtes. Quatre partenaires sont liés au projet : deux industriels et deux partenaires académiques :

- Rhodia Polyamide (coordinateur du projet) met en œuvre les matières et réalise la caractérisation mécanique et microstructurale des composites. De plus, il assure la validation des méthodes développées par les autres partenaires, et la réalisation de la base de donnée matériau.
- e-Xstream est un éditeur de logiciel, qui développe un logiciel de calcul micromécanique, DIGIMAT®. Ce code réalise l'homogénéisation mécanique du comportement d'un volume élémentaire représentatif, VER hétérogène, constitué de plusieurs phases, à partir de données sur leur comportement (par exemple matrice et fibres) et sur la distribution et l'orientation de la phase minoritaire. Dans le projet, il intègre les modèles académiques développés par les partenaires académiques et assure le couplage numérique, de cette homogénéisation, avec des codes de simulation de mise en œuvre d'une part et de calcul de structure d'autre part.
- L'Université Catholique de Louvain développe la part théorique des modèles d'homogénéisation visant à prédire comportement et rupture des composites, et aide à leur mise en œuvre numérique.
- Le CEMEF développe, quant à lui, un modèle thermomécanique couplé du comportement mécanique de la matrice, et identifie les données expérimentales et les paramètres qui s'y rattachent.

1.2 Démarche générale

Notre étude s'intéresse donc au seul polyamide 6.6. Elle doit, par contre, s'intégrer dans ce projet global. Ceci impose de combiner un certain niveau de pragmatisme à la pertinence de la démarche et de tenir compte de l'application finale.

Dans notre cas, la matrice polyamide 6.6 peut être utilisée dans la zone de transition vitreuse de sa phase amorphe, soit pour les pièces placées dans un environnement chaud (e.g., sous capot moteur si applications automobile), soit dans les zones chargées rapidement du fait des dissipations (e.g., en pointes de fibres dans un composite) ou encore lors de sollicitations lentes et/ou répétées.

Pendant cette élévation de température, la partie amorphe du polymère peut passer d'un comportement vitreux, plus ou moins "ductile" aux basses températures, à un comportement hyperélastique aux hautes températures, ou présentant un très fort aspect viscoélastique et/ou viscoplastique dans la zone intermédiaire (zone de transition α de l'amorphe). C'est dans cette zone, où on observe de fortes sensibilités couplées aux vitesses et températures de sollicitations, que nous nous plaçons. Il conviendra donc de proposer le moyen de modéliser cette visco-élasticité thermodépendente.

Le matériau utilisé est un polyamide de la gamme Technyl® naturel, sans fibre de verre. Il faut, toutefois, permettre une mise en œuvre sans dégradation et la plus représentative possible de l'usage final. Nous travaillerons donc sur la matrice formulée, c'est à dire comprenant tous les additifs nécessaires à sa transformation. Les éprouvettes sont injectées dans des conditions standards, uniques pour toute l'étude. Nous contrôlerons, par contre, l'humidité de nos échantillons au cours de nos essais pour en assurer la reproductibilité.

En terme de modélisation, nous considérerons le matériau comme un matériau homogène équivalent à l'échelle de la matrice, en ne tenant pas directement compte de sa nature bi-phasique semi-cristalline. Notre modèle sera donc construit via une **approche macroscopique** de ce point de vue.

Nous essaierons, toutefois, de tenir compte de la spécificité des polymères, en utilisant un modèle le plus **physiquement basé** possible et autorisant, à terme, la prise en compte plus précise de paramètres physiques (cristallinité, taux d'humidité, etc). Notre choix s'est porté sur l'utilisation de modèle dérivé de modèles de type **statistique de chaînes utilisant au mieux les équivalences**

temps / température. Il s'agit, en fait, d'une approche originale développée au CEMEF entre 2004 et 2007, dans le cadre du projet Européen APT pack [3] sur la base d'observations réunies dans les thèses d'Eric Gorlier [4], Aliza Erner [5] et Martin Picard [6]. Dans ce travail, nous validerons l'approche dans le cas du polyamide 6.6 et validerons son écriture 3D dans un cadre thermodynamique.

Pour mettre en évidence le comportement mécanique de notre matériau, nous nous appuyons sur un protocole expérimental nous garantissant une qualité de mesures mécanique et thermique aussi bonne que possible. Nous présenterons les résultats obtenus pour deux types de sollicitations : traction simple non-monotone avec suivi de la température, puis régulation de la température ; cisaillement simple de type Iosipescu cyclique avec suivi de la température. L'ensemble des essais nous permet de poser les grandes lignes du comportement thermomécanique de notre polyamide 6.6, de postuler les différentes hypothèses de modélisation, et de disposer d'une base expérimentale de validation.

Tous ces **essais sont instrumentés (mesure de champ et contrôle des vitesses)** et réalisés dans une gamme de vitesses et températures les plus larges possible. Pour définir cette gamme, l'approche prend en compte les constatations expérimentales d'équivalence temps / température. Ainsi, les grandeurs caractéristiques d'un essai ne sont plus seulement la vitesse de déformation et la température, mais la combinaison de ces deux paramètres, nous permettant de dégager une grandeur caractéristique, **la vitesse équivalente à une température de référence.**

Cette grandeur est précisée à l'occasion de la présentation de notre protocole de préparation expérimental, au chapitre 2. La pertinence de l'approche sera vérifiée au travers des résultats expérimentaux présentés au chapitre 3, en même temps que les autres hypothèses de notre modélisation. Cette grandeur sera aussi mise à profit dans notre modélisation, qui fait l'objet du chapitre 5.

En effet, on verra dans le chapitre 3, que les effets thermiques et mécaniques sont indissociables dans notre cas, et peuvent être une cause de comportement fortement non-linéaire du matériau. Il est donc nécessaire de prendre en compte ces couplages thermiques forts. Les modèles de comportement de la littérature (illustrés au chapitre 4), sont couramment développés en dissociant les deux paramètres, vitesse et température. Ceci conduit à des modèles mathématiquement lourds et peu prédictifs, mais également rend plus difficile de raisonner sur la prise en compte des couplages thermomécaniques forts. Nous démontrons, au chapitre 5, qu'une utilisation phénoménologique de la vitesse de déformation à la température de référence comme paramètre du modèle est justifiable dans un cadre thermodynamique

et conduit à simplifier agréablement les modèles.

Finalement, nous proposerons un modèle de comportement thermomécanique visco-hyper élastique permettant, pour une large plage de vitesse de déformation et de température, de décrire le comportement sous chargement non monotone d'un polymère semi-cristallin, le polyamide 6.6.

Enfin, les apports et les limites de notre modélisation seront discutés dans le chapitre 6.

CHAPITRE 2

BASE DE CONNAISSANCE MATÉRIAU

NOUS présentons dans cette partie notre protocole de préparation d'éprouvette.

Nous analysons, ensuite, la dépendance vitesse / température du comportement de notre polymère, à l'aide de l'analyse dynamique mécanique. Cette étude nous conduit à une réflexion sur la grandeur caractéristique des essais expérimentaux, et de l'utilisation d'une grandeur couplant vitesse et température, pour la construction d'une base expérimentale large, exploitant l'ensemble des conditions expérimentales réalisables au laboratoire.

2.1 Nature du matériau

Le polyamide 6.6 est un polymère semi-cristallin. Dans ce type de polymère, coexistent des lamelles cristallines (d'épaisseur de l'ordre de 10 nm) et une phase amorphe. Ces deux phases sont interconnectées, une même chaîne pouvant appartenir aux deux phases, voire à deux lamelles successives. (fig. 2.1). A la base, le comportement mécanique d'un polymère semi-cristallin est donc la combinaison de mécanismes d'origine amorphe, de mécanismes d'origine cristallin et de leurs interactions. Le comportement est rendu encore plus complexe par l'organisation relative de ces deux phases.

Cette dernière résulte le plus souvent en une super structure semi-cristalline micronique, à partir d'un germe central : le sphérolite. Les sphérolites tendent à occuper tout l'espace disponible lors de la solidification du polymère. Lors de la cristallisation en condition statique, ils conservent une géométrie sphérique et conduisent, en fin de cristallisation, à une structure polyhédrale de type équiaxe. Si la cristallisation a lieu lors d'un procédé, cette géométrie de base peut être perturbée et les sphérolites dégénèrent progressivement en des ellipsoïdes, puis des disques ou des "shish kébab" pour des conditions d'écoulement plus sévères. Parallèlement à cette évolution géométrique, une certaine anisotropie cristalline apparaît.

A l'intérieur d'une pièce mise en œuvre, la microstructure locale peut passer d'une de ces formes à une autre en fonction des conditions locales de transformation. Pour toutes ces raisons, le comportement des polymères peut dépendre des conditions de transformation de l'éprouvette. A défaut de contrôler pleinement cet aspect, nous mettrons en place un protocole aussi strict que possible pour limiter les dispersions parasites.

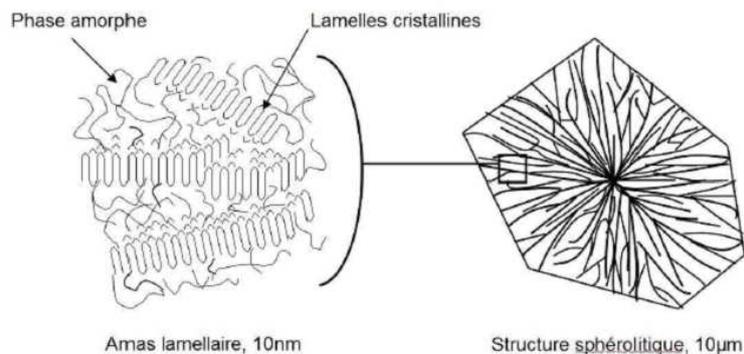


Figure 2.1 – Structure d'un polymère semi-cristallin à l'échelle des lamelles et des sphérolites [7]

2.2 Structure des pièces injectées

La matière utilisée dans notre étude est fournie sous forme de plaques injectées de 360x100x3mm. L'injection est faite en nappe sur la largeur de la plaque (fig. 2.2), dans une condition standard et unique pour toute l'étude, qui assure une certaine représentativité. Ce type de mise en œuvre doit autoriser le formage de plaques quasi uniformes, où les chaînes polymères et la microstructure sont peu ou pas orientées.

Les éprouvettes seront toutes usinées dans ces plaques et comporteront l'ensemble de l'épaisseur des plaques.

Dans une plaque injectée, coexistent des zones où les histoires thermomécaniques lors de la transformation sont suffisamment différentes pour engendrer des structures sphérolitiques très différentes. Très schématiquement, la peau en contact avec le moule, généralement froid, est plus orientée et la structure n'est pas réellement sphérolitique. Sous cette zone de peau, une zone dite de cisaillement est le siège d'une cristallisation influencée par l'écoulement. Le cœur est, quant à lui, proche d'une cristallisation statique. C'est la structure dite cœur-peau. L'épaisseur d'une peau est de l'ordre d'un à quelques centaines de μm .

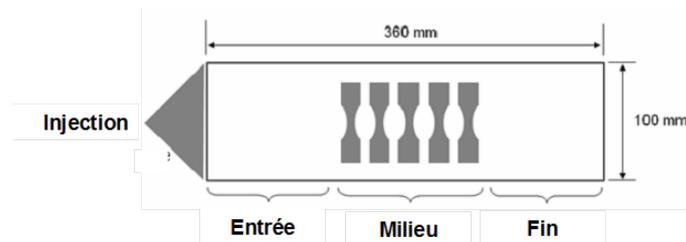


Figure 2.2 – Plaque utilisée dans l'étude

Au niveau très local, le comportement peut donc être modifié par des effets de structure (au sens mécanique) différents. A l'échelle de l'épaisseur d'une plaque, le comportement est toujours celui d'un stratifié. Nous ne décrirons pas explicitement ce phénomène, d'autant qu'un autre niveau d'hétérogénéité peut apparaître le long du chemin d'écoulement, d'un bout à l'autre de la pièce injectée.

Avant de commencer toute étude, il est par conséquent bon de s'assurer de l'écart à l'homogénéité et à l'isotropie de nos plaques, pour guider le protocole d'extraction d'échantillons. Dans notre cas, nous avons réalisé quelques observations microstructurales et une analyse DMA systématique, en plusieurs points des plaques.

2.2.1 Observations microstructurales

La structure cœur-peau de nos plaques est illustrée en fig.2.3 et 2.4, où une coupe de $2.5 \mu\text{m}$ d'épaisseur est réalisée à l'aide d'un microtome (couteau de verre) au centre de la plaque. On voit apparaître un effet cœur-peau assez faible. Sur $200 \mu\text{m}$, la taille des sphérolites augmente, passant de $10 \mu\text{m}$ aux bords à $30 \mu\text{m}$ vers le centre de l'échantillon. Nous avons donc 13% de l'épaisseur de la microstructure impactée par l'effet de la mise en forme.

Une légère orientation dans le sens de l'écoulement peut exister. Par précaution, tous nos prélèvements seront réalisés dans une direction, i.e. perpendiculairement à l'écoulement (fig. 2.2). L'homogénéité mécanique des plaques sera, quant à elle, testée par spectrométrie mécanique ou analyse mécanique dynamique.

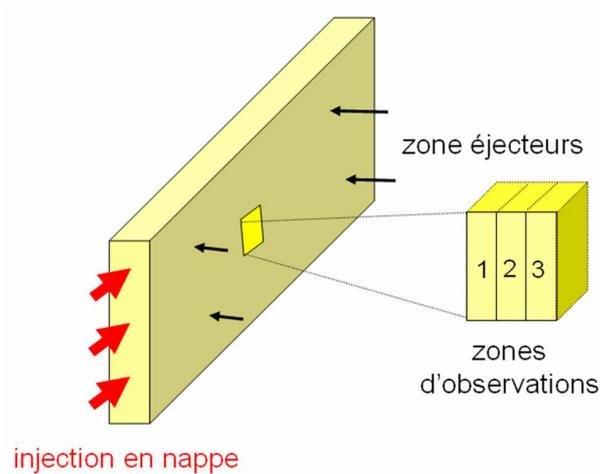


Figure 2.3 – Zones de prélèvement dans la plaque injectée

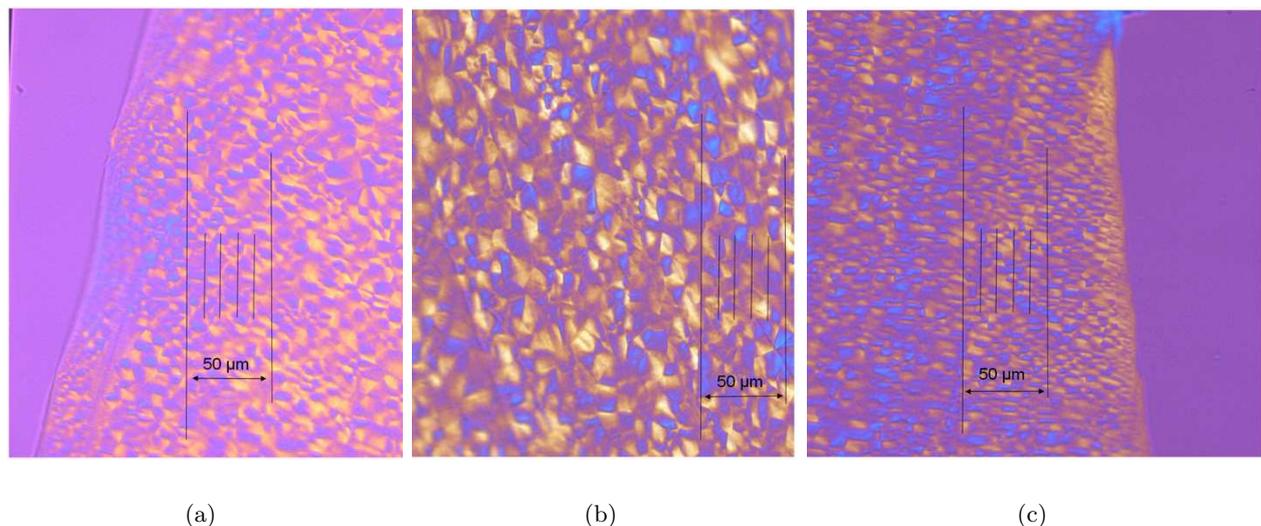


Figure 2.4 – Observations au microscope optique (a) zone 1 : face arrière. (b) zone 2 : centre plaque. (c) zone 3 : coté éjecteurs.

2.3 Analyse mécanique dynamique (DMA)

2.3.1 Principe de mesure

L'analyse mécanique dynamique permet de mettre en évidence le caractère anélastique du comportement du matériau en petites déformations. Par le suivi du module complexe, cette technique met en évidence aussi les relaxations mécaniques du matériau. Nous nous intéressons plus particulièrement à la température de transition α , associée à la transition vitreuse T_α .

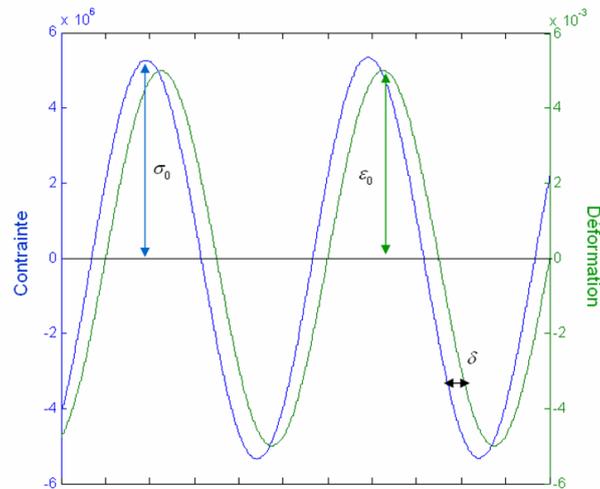


Figure 2.5 – Déphasage contrainte déformation

Le système applique un déplacement oscillatoire d_{max} à l'échantillon, et la force résultante transmise est mesurée. Le déphasage entre les signaux d'entrée et les signaux de sortie est donné par l'angle de déphasage δ . La fig. 2.5 présente une courbe de réponse typique. Le déplacement imposé est du type :

$$d(t) = \frac{d_{max}}{2} (1 - \cos(2\pi f.t)) \quad (2.1)$$

Avec $w = 2\pi f$, la déformation imposée est de la forme :

$$\epsilon(t) = \epsilon_0 \sin(w.t) \quad (2.2)$$

et la contrainte résultante avec le déphasage δ prend la forme suivante :

$$\sigma(t) = \sigma_0 \sin(w.t + \delta) \quad (2.3)$$

On définit alors les modules réel, $E'(w)$ et de perte, $E''(w)$ par :

$$E'(w) = \frac{\sigma_0}{\epsilon_0} \cos \delta \quad (2.4)$$

$$E''(w) = \frac{\sigma_0}{\epsilon_0} \sin \delta \quad (2.5)$$

Avec l'expression du module global E^* :

$$E^*(w) = E'(w) + iE''(w) \quad (2.6)$$

Le facteur de perte $\tan \delta$ est le rapport des modules élastique et de perte :

$$\tan \delta = \frac{E''}{E'} \quad (2.7)$$

2.3.2 Sensibilité à la zone de prélèvement

Une campagne d'essais DMA est réalisée suivant la cartographie de la figure 2.6.

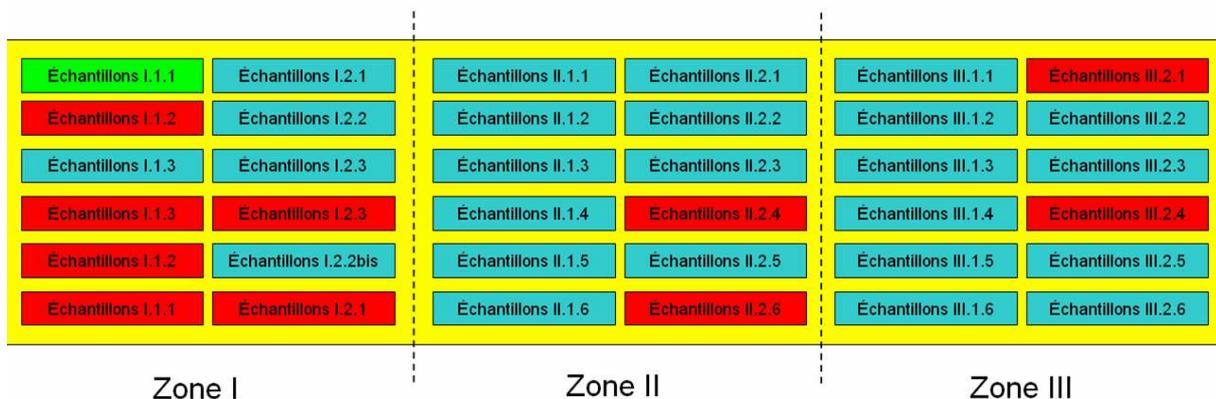


Figure 2.6 – Zone de prélèvement des échantillons de DMA

Nous représentons sur la figure 2.7 l'évolution du module réel à 25°C en fonction de la position dans la plaque. Celui-ci peut varier de 20 à 30% sans que l'on puisse facilement identifier une forme d'évolution, qui semble se concentrer dans la zone d'entrée du moule. Plus important, les différences sont d'un ordre de grandeur inférieur à celle induites par un mauvais contrôle du taux d'humidité du matériau.

Par précaution, nous privilégierons une zone, la zone médiane (fig. 2.2), et nous contrôlerons l'humidité de notre polymère.

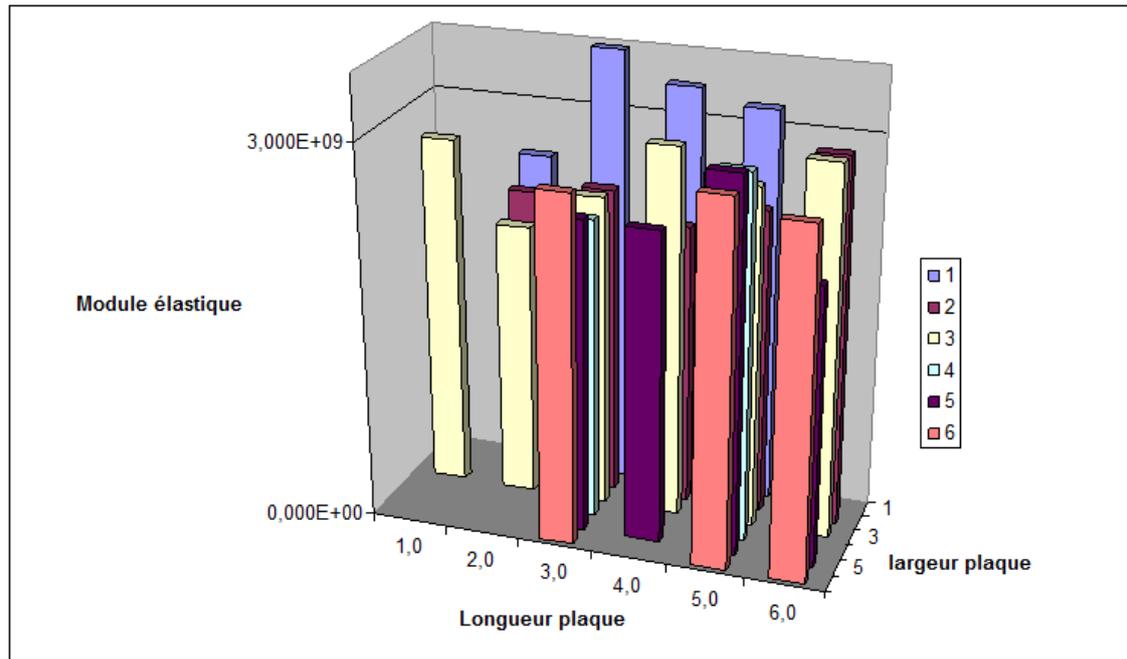


Figure 2.7 – Module réel à 25°C en fonction de la zone de prélèvement

2.3.3 Effet de la température

La température joue un rôle important dans le comportement mécanique des polymères. La figure 2.8 présente l'évolution du module en fonction de la température aux alentours de la transition α .

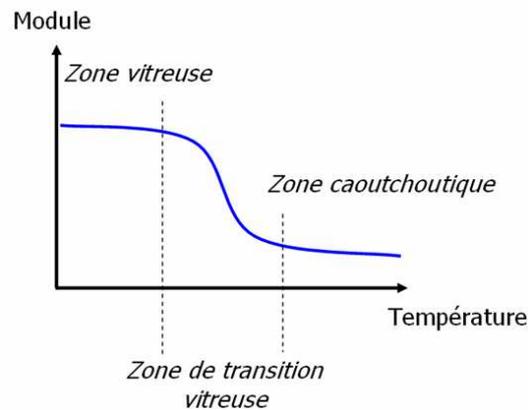


Figure 2.8 – Evolution du module avec la température

On distingue usuellement trois zones :

- Dans la zone vitreuse, les polymères sont rigides, avec des modules très importants, pouvant dépasser le GPa . Leur comportement est souvent peu ductile, ils peuvent se fissurer et présentent des ruptures fragiles, à des niveaux de déformation faibles par rapport à ceux rencontrés dans les zones à plus haute température. Dans cette zone, les polymères présentent un comportement proche de l'élasto-plasticité endommageable.

- Dans la zone de transition vitreuse, les molécules présentent une faible mobilité. Les comportements viscoélastiques, viscoplastiques, puis hyperélastiques deviennent progressivement prépondérants dans cette zone de transition. La chute rapide du module met en évidence ce passage d'un comportement vitreux à un comportement caoutchoutique. La température de transition T_α correspond à cet état transitoire, entre vitreux et caoutchoutique.
- Dans la zone caoutchoutique, le module de raideur est plus faible, et les déformations à rupture sont plus grandes. Le comportement est très fortement empreint d'hyperélasticité.

Concernant notre matériau, un essai réalisé en flexion 3 points, avec un balayage en température entre 20°C et 160°C, réalisé à raison de 2°C/min est décrit fig. 2.9. Cette analyse dynamique est faite sur un matériau sec prélevé directement sur plaque après moulage, conditionné avant expédition, dans des sacs hermétiques utilisés pour le transport et le stockage. La fréquence est de 1Hz, vitesse médiane de notre dispositif expérimental.

On observe une baisse rapide du module pendant la transition alpha, passant d'un module élastique de 3.7 GPa au niveau du plateau vitreux à un module de 0.5 GPa au niveau du plateau caoutchoutique. Cette transition prend place entre 40 et 90°C pour cet échantillon sec. Le module de perte est plus d'une décade plus faible que le module élastique. Le rapport de ces modules, exprimé par l'évolution de $\tan \delta$, nous donne une information sur la zone de transition α qui est proche de 78°C.

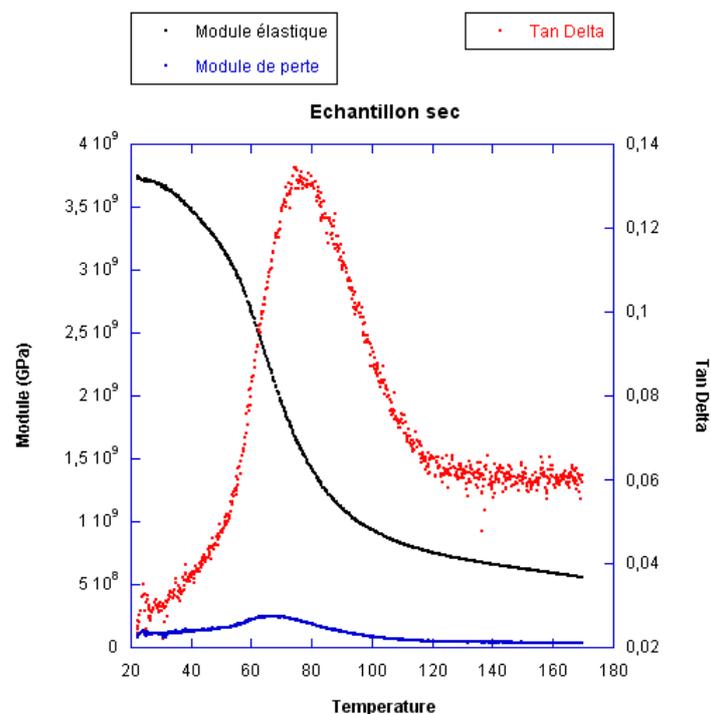


Figure 2.9 – DMA sur échantillon sec ($f=1Hz$)

La température n'est pas le seul paramètre influençant le comportement mécanique. La figure 2.10 présente l'évolution du module d'élasticité en fonction de la fréquence pour des températures comprises entre 20°C et 80°C . La plage de fréquence est comprise entre 0.1Hz et 100Hz . A chaque température, le module élastique augmente avec la fréquence. Pour la condition à 20°C , l'évolution est de l'ordre de 40%, passant de 2.3 GPa à 3.3 GPa. A 80°C , l'évolution n'est plus que de 15%. Cette sensibilité à la fréquence, ou à la vitesse de déformation, évolue avec la température, comme le montrent les évolutions intermédiaires de module avec la température. Plus la température est élevée, plus la dépendance à la vitesse est faible. On parle usuellement de dépendance vitesse / température, traitée par la suite avec le principe d'équivalence temps température [8].

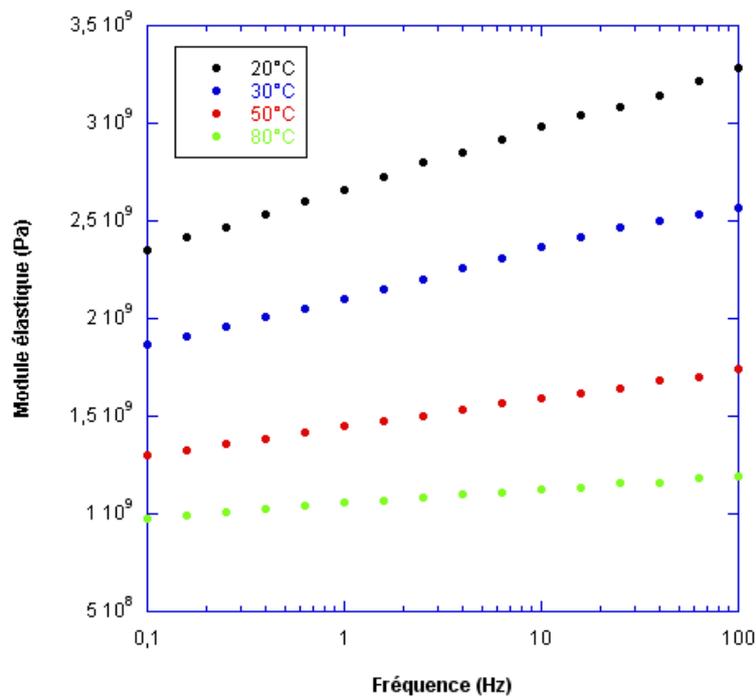


Figure 2.10 – Sensibilité à la fréquence du module élastique pour différentes vitesses

2.3.4 Principe d'équivalence temps / température

Sur la figure 2.10, on remarque que le module élastique est équivalent pour des conditions expérimentales différentes. Ici, à 20°C et 0.1Hz , le module est le même qu'à 30°C et 10Hz .

Un schéma de dépendance en fréquence et température est présenté sur la fig. 2.11, pour trois températures T_0 , T_1 , T_2 :

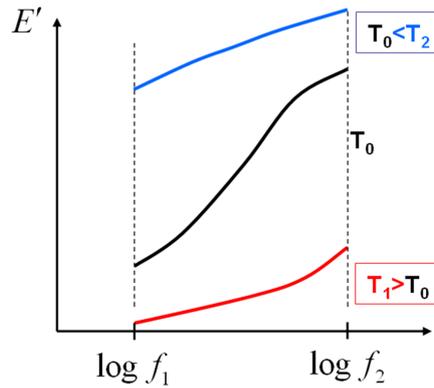


Figure 2.11 – Sensibilité à la fréquence du module élastique pour trois températures

On peut superposer ces trois courbes via des glissements horizontaux comme présenté sur le schéma de la fig. 2.12(a). Cela revient à changer la variable d'observation temporelle (vitesse ou fréquence). Dans le cas d'essais DMA avec balayage en fréquence, on applique un facteur multiplicateur a_T à cette fréquence. L'échelle de temps (ou de fréquence) est élargie par rapport à la fenêtre expérimentale originelle. Cette extension dépend de l'écart entre une température de référence choisie, et les températures extrêmes atteintes expérimentalement. En d'autres termes, le facteur d'élargissement est indépendant du choix de la température de référence, mais fonction de l'étendue de la plage de mesures de température. Les valeurs a_T sont supérieures à 1 pour des températures inférieures à la température de référence, et inférieures à 1 pour des températures supérieures à la température de référence (fig. 2.12(b)).

Après la détermination des différents facteurs de glissement en fonction de la température, nous disposons d'une courbe maîtresse (fig. 2.13) en vitesse équivalente à la température de référence. Cette représentation assure l'unicité de la grandeur caractérisée (module élastique, module de perte, facteur de perte) avec la fréquence ou la vitesse de sollicitation.

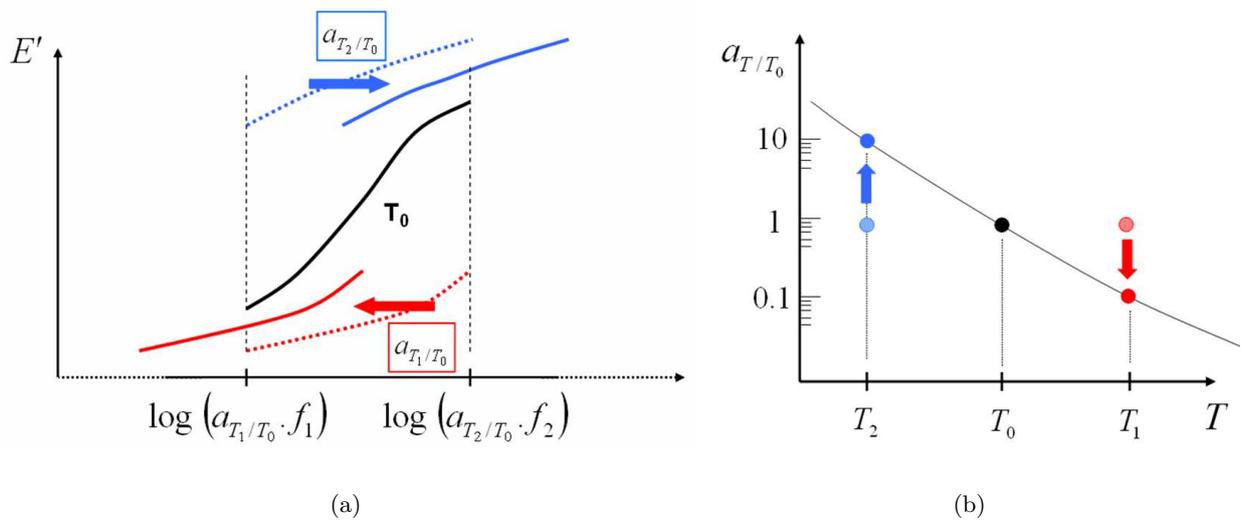


Figure 2.12 – Raisonnement en fréquence équivalente à une température de référence. (a) Décalage horizontal des courbes en fréquence équivalente à une température de référence. (b) Evolution du facteur de décalage a_{T/T_0} avec la température.

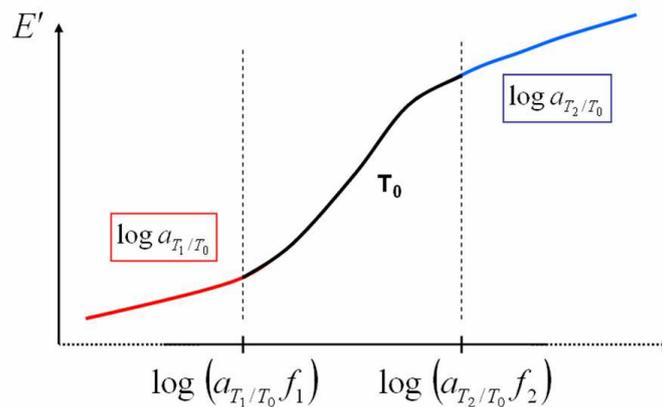


Figure 2.13 – Courbe maîtresse à la température de référence T_0

2.3.5 Loi d'évolution des facteurs de glissement

La fig. 2.14(b) représente les différents facteurs de glissement expérimentaux identifiés, tracés sur une échelle logarithmique, en fonction de la température. On utilise la loi WLF pour relier ces facteurs de glissement a_T aux différentes températures [9].

$$\log a_T(T) = -\frac{C_1(T - T_{ref})}{C_2 + (T - T_{ref})} \quad (2.8)$$

Ou encore :

$$a_T(T) = 10^{-\frac{C_1(T - T_{ref})}{C_2 + (T - T_{ref})}} \quad (2.9)$$

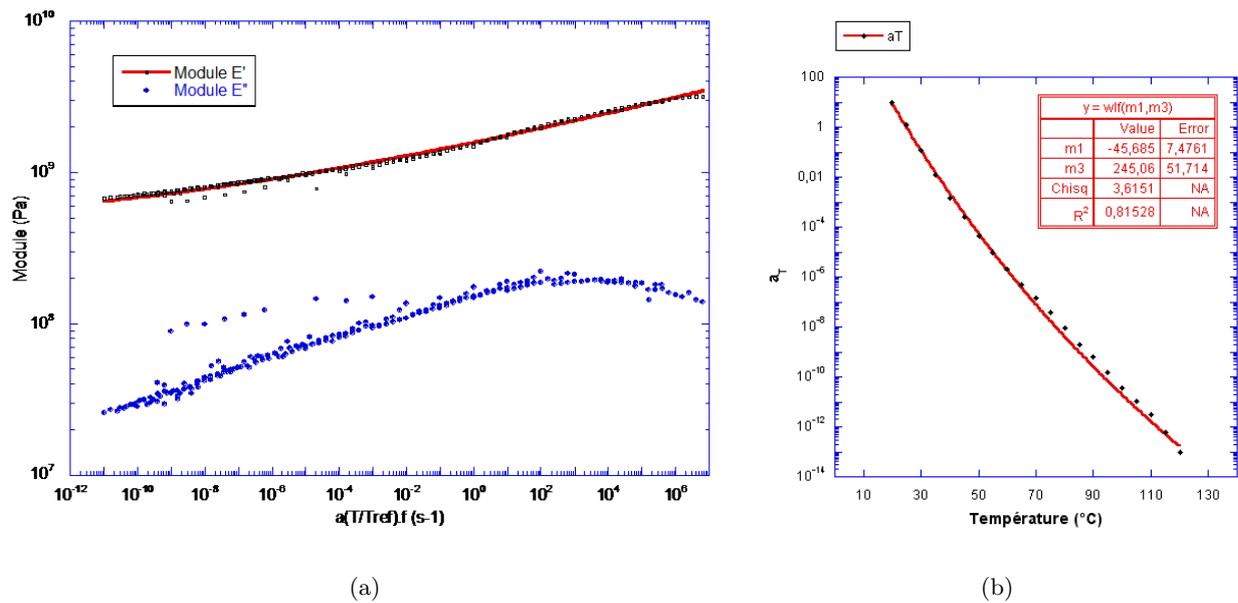


Figure 2.14 – Détermination des paramètres $C1$ et $C2$ de la loi WLF. (a) Courbe globale. (b) Courbe de corrélation des facteurs de décalage.

D'autres lois sont quelquefois utilisées pour décrire cette dépendance en température des coefficients de glissement :

- Loi d'Arrhénus [9]

$$a_T(T) = \exp\left(\frac{E}{R} \left(\frac{1}{T} - \frac{1}{T_0}\right)\right) \quad (2.10)$$

Avec E l'énergie d'activation et R la constante des gaz parfaits. Les températures sont exprimées en Kelvin.

- Loi exprimée en terme de volume libre

Soit le volume libre relatif v_f donné par :

$$\frac{v_f(T)}{v_0} = \frac{v(T) - v_0}{v_0} \quad (2.11)$$

Où v est le volume à la température T , v_0 le volume extrapolé à 0°K sans changement de phase.

Dans tous les cas, on introduit alors une nouvelle grandeur $a_T \dot{\epsilon}_{eq}$, la vitesse équivalente à une température de référence T_{ref} (ou fréquence équivalente $a_T f$). Dans ce manuscrit, cette vitesse sera notre fil conducteur, et sauf mention contraire, l'ensemble des données expérimentales et numériques seront exprimées en terme de vitesse équivalente à la température de référence.

2.4 Essais à réaliser / Objectifs expérimentaux

Le principe d'équivalence temps - température expose, pour une sollicitation mécanique donnée, qu'une augmentation de température est inversement équivalente à une augmentation de la vitesse de déformation.

Partant de ce constat, nous mettons en place un plan d'expérimentation le plus large possible. Sans parler pour le moment de type d'essais mécaniques ou de l'humidité relative, intéressons-nous aux conditions expérimentales réalisables au sein du laboratoire. Comme l'objectif de l'étude doctorale est la mise en place d'un modèle de comportement thermomécanique efficace sur une plage de conditions la plus large possible, nous allons étendre les conditions expérimentales en raisonnant sur la grandeur $a_T \dot{\epsilon}_{eq}$.

On suppose, pour le moment, que cette grandeur est caractéristique de l'essai. Les essais mécaniques présentés dans le chapitre 3 corroborent ces considérations théoriques.

Nous souhaitons caractériser notre matériau depuis l'état vitreux jusqu'à l'état caoutchoutique de la phase amorphe, soit sur notre courbe maîtresse de 1.10^{-6} à $1.10^4 s^{-1}$ à la température de référence.

Nous essaierons d'atteindre ces conditions en modifiant température et/ou vitesse en fonction du possible sur nos dispositifs. Nos dispositifs expérimentaux, en particulier nos extensomètres optiques, limitent la gamme de vitesses réelles entre 10^{-4} et $10 s^{-1}$. Les températures accessibles facilement sont, quant à elles, de -10 et 60°C .

Comme nous le justifierons plus loin, nous utiliserons le polyamide 6.6 saturé d'humidité, ce qui déplace sa transition α aux alentours de la température ambiante. L'analyse WLF (Figs. 2.14) nous a conduit aux paramètres suivants : $C1 = 45$ et $C2 = 245^\circ\text{K}$ pour une température de référence de 25°C .

La Fig. 2.15 présente un tableau des conditions expérimentales, choisies en fonction de $a_T \dot{\epsilon}_{eq}$, la vitesse équivalente à la température de référence pour ce matériau humide. La construction autorise, à la fois une exploration de tout le domaine, et la vérification de la pertinence de l'analyse en vitesses équivalentes à la température de référence, puisque chacune de celles-ci peut être atteinte avec plusieurs couples vitesse de déformation réelle et température réelles.

Vitesses de déformation accessibles		Vitesse équivalente à la température de référence (Tref=25°C)																					
		1,00E-06	3,00E-06	1,0E-05	3,0E-05	1,0E-04	3,0E-04	1,0E-03	3,0E-03	1,0E-02	3,0E-02	1,0E-01	3,0E-01	1,0E+00	3,0E+00	1,0E+01	3,0E+01	1,0E+02	3,0E+02	1,0E+03	3,0E+03	1,0E+04	
Température essais (°C)	-10																						
	-5																						
	0																						
	5																						
	10																						
	15																						
	20																						
	25																						
	30																						
	35																						
	40																						
45																							
50																							
55																							
60																							

Figure 2.15 – Gamme de vitesse de déformation $\dot{\epsilon}$ accessible expérimentalement pour atteindre une plage $a_T \dot{\epsilon}_{eq}$ de 1.10^{-6} à $1.10^4 s^{-1}$ entre -10 et 60°C. Pour chaque valeur de $a_T \dot{\epsilon}_{eq}$ on retrouve différents couples $\dot{\epsilon}/T$ révélateur de l'équivalence temps/température

CHAPITRE 3

COMPORTEMENT THERMOMÉCANIQUE DU POLYAMIDE 66

DANS ce chapitre, nous présentons le protocole expérimental nous permettant de caractériser le comportement thermomécanique de notre matériau d'étude. Lors des essais, nous observons une forte localisation de la déformation dans une zone utile, favorisée par la géométrie des éprouvettes. Nous utilisons différentes méthodes de mesure de ces déformations. La première est un suivi de marqueurs, par un système à quatre tâches, qui permet de suivre une moyenne de la déformation entre les tâches pendant l'essai. La deuxième méthode est le suivi d'un mouchetis aléatoire, puis une analyse par corrélation d'image en post traitements, qui renseigne sur le champ de déplacements.

Nous présentons les avantages et les inconvénients des deux méthodes, pour choisir la plus apte à nous fournir la meilleure qualité de mesure, suivant la gamme de mesure de déformation souhaitée. Un système de suivi de température est aussi utilisé afin d'avoir un historique de l'évolution de la température de surface pendant les sollicitations mécaniques. Nous verrons, dans l'analyse critique des résultats, l'importance de ce dernier système, sans lequel il est impossible d'expliquer le comportement observé.

Deux types d'essais mécaniques ont été réalisés pour construire une base expérimentale mettant en évidence les grandes lignes du comportement mécanique du polymère. Le premier est un essai de traction monotone et non monotone (charges, charges décharges, chargements cycliques, charges et décharges interrompues par des phases de relaxation). Le second est un essai de cisaillement cyclique de type Iosipescu, avec des chargements alternés de cission positive et cission négative. Le recours aux mesures non monotones, encore rares dans le domaine des polymères [10], se justifiant par la détermination des types de comportements mécaniques, la mise en évidence des processus d'endommagements, qui provoquent peut être les effets non isochores.

L'ensemble de ces essais nous permet, de plus, de valider notre approche de vitesse équivalente à une température de référence introduite dans les chapitres précédents.

Nous présentons finalement un bilan du comportement thermomécanique de notre matériau, nous fournissant le cadre à introduire dans le modèle décrit au chapitre 5.

3.1 Protocole d'essais mécanique et thermique

Afin de mettre en évidence la réponse mécanique propre au matériau, il est nécessaire, en amont, de réaliser des essais mécaniques. Pour cela, les mesures de déformations locales, soit par des systèmes de tâches [11], soit les méthodes de contrôles vidéométriques en vitesse de déformation [11], ainsi que les mesures de champs [10, 12, 13], ont démontré leur importance. En effet, l'utilisation de moyens de mesure au contact risque de perturber la mesure elle-même, et n'est pas adaptée aux gammes de déformations souhaitées, qui peuvent atteindre des allongements de deux dans certaines conditions de vitesse faible et de haute température. Les deux premières parties de ce chapitre présenteront les deux moyens de mesures de déformations employés dans notre cas. Dans la troisième partie, nous appliquons ces méthodes au matériau de l'étude, qui présente une forte localisation des déformations dans la zone utile, pour certaines vitesses de déformation et certaines températures. Le possible aspect non-isochore des déformations anélastiques des polymères [10, 11], et les effets de mise en oeuvre, toujours importants [14], nous conduisent à utiliser des techniques de mesures 3D, que nous justifierons dans une quatrième partie. La cinquième partie présente la technique employée pour la mesure de l'évolution de la température. Finalement, dans la dernière partie, nous justifierons le type d'asservissement en déplacement utilisé pour l'ensemble des essais mécaniques.

3.1.1 Suivi de déformations vidéométriques

Le principe de ce type de mesure consiste à suivre, en cours d'essai, à l'aide d'une caméra optique, les barycentres numériques de marqueurs disposés sur l'éprouvette (fig.3.1).

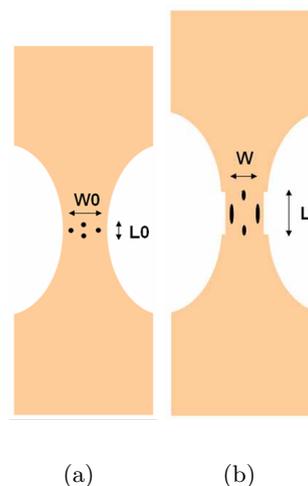


Figure 3.1 – Mesure VidéoTraction. (a) Echantillon de traction avec marquage 4 tâches. (b) Evolution du marquage en cours de déformation.

Nous utilisons le système VidéoTraction à 4 tâches développé par G'Sell et al [11]. Ce type de système permet d'imposer une vitesse de déformation constante entre les marqueurs en cours d'essais (fig. 3.2), dans une gamme limitée aux basses vitesses, soit entre $5 \cdot 10^{-4}$ et $5 \cdot 10^{-2} \text{ s}^{-1}$, du fait des temps de réponse du système.

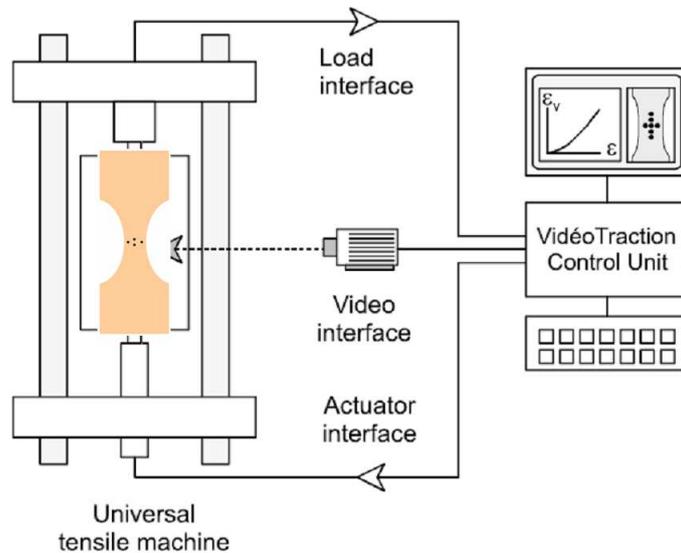


Figure 3.2 – Schéma de principe de la boucle de contrôle de déformation en cours d'essais [11]

3.1.2 Analyse d'image

La deuxième méthode de mesure de déformation repose sur le suivi d'un mouchetis aléatoire, déposé au niveau de la zone utile. Les mesures sont effectuées en post-traitement de l'essai mécanique, à l'aide d'un logiciel de corrélation d'images commercial Aramis®.

La qualité de ce type de mesure repose directement sur la qualité des images prises pendant l'essai. Notre protocole tient compte des points importants généralement reconnus :

- La finesse du dépôt de grain de peinture :

La peinture est déposée à l'aide de bombes de peinture aérosol commerciales, blanches et noires. De faibles pulvérisations circulaires, à environ 20 cm, sont nécessaires au niveau de la zone utile des éprouvettes. Une première couche de blanc est déposée, sans que la totalité de la zone ne soit recouverte. Une couche de noir est ensuite appliquée, en alternance avec la peinture blanche. Ceci réalisé autant de fois que nécessaire pour assurer le recouvrement complet. C'est la superposition de couches minces et disjointes qui assure le recouvrement complet de la zone. La fig. 3.3 présente le résultat final. Le dépôt successif de ces couches de peinture entraîne naturellement un grain à la surface de l'échantillon, et un toucher rugueux. Le dépôt de peinture ne doit pas être épais,

afin de sécher rapidement (entre chaque pulvérisation, soit une dizaine de secondes), ne pas couler pendant l'essai mécanique ni induire des artefacts à la mesure mécanique de déformation en surface de l'éprouvette.

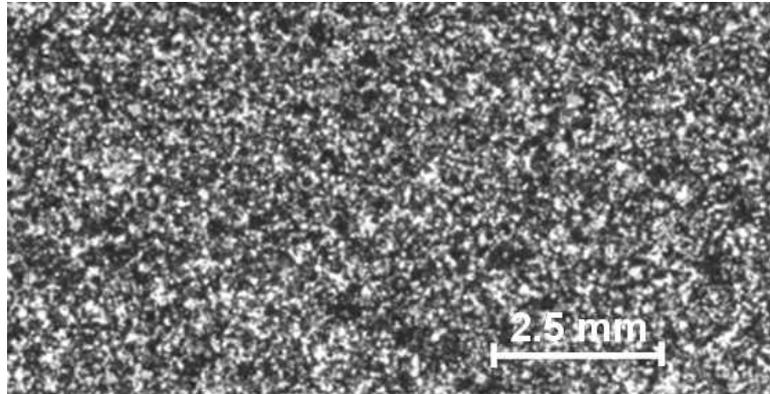


Figure 3.3 – Mouchetis aléatoire de niveau de gris avec une échelle de 2.5mm

- La qualité d'accroche de la peinture :

Selon le niveau de déformation atteint, certaines peintures se décolent de la surface de la zone utile (déformation supérieure à 0.5). Nous avons choisi d'utiliser des peintures hautes températures, pour leurs fortes adhésions sur notre polyamide. Travailler avec un mouchetis récent peut, aussi, éviter des problèmes d'écaillage de la peinture.

- La capacité de déformation de la peinture :

La fragmentation de la couche de peinture, pendant la déformation, est de toute évidence à éviter. Les peintures à base de Glycérol nous ont permis d'atteindre de hauts niveaux de déformation, sans endommagement apparent du mouchetis.

- L'éclairage de la scène :

L'un des points majeurs des techniques de mesure optique est l'éclairage de la zone utile. Nous travaillons à des vitesses d'échantillonnage de 30 images/secondes. A ces vitesses, la lumière naturelle n'est pas suffisante pour l'éclairage. Différentes méthodes d'éclairage sont usuellement utilisées, telles que les lampes halogènes, les néons ou encore les projecteurs de forte puissance. Les halogènes et les projecteurs fournissent une lumière puissante, entraînant des échauffements très importants du milieu ambiant. Ceci peut impacter les mesures d'évolution thermique du matériau, et est également désagréable pendant la manipulation. Les néons ne présentent pas cet inconvénient, mais ne sont pas adaptés à des éclairages directionnels. De plus, ils encombrant l'environnement de travail. Nous avons donc choisi d'utiliser des spots à base de LED. La lumière blanche fournie optimise les niveaux de gris, ne présente pas d'échauffement thermique et permet

de cibler la scène de mesure. Trois spots sont suffisants pour garantir un éclairage optimal des zones de mesures.

- La mise au point :

Il est indispensable de ne pas négliger le temps consacré à la mise au point. L'objectif doit être perpendiculaire au sens de sollicitation mécanique, placé en face de la zone de mesure afin de ne pas introduire de déformation optique de l'image.

- L'objectif optique utilisé :

La déformation du matériau peut entraîner des déplacements hors plan occasionnant la perte de la mise au point. Nous réduisons donc l'ouverture du diaphragme, et utilisons un objectif muni d'un zoom 70mm pour s'assurer une zone de circulation optimale autour des éprouvettes.

L'analyse d'image est ensuite réalisée à l'aide du logiciel industriel Aramis®. Le principe consiste à comparer les images digitales, et à calculer les déplacements et déformations d'une région d'intérêt par rapport à une image initiale. Cela donne une mesure de champ de déformation local. Durant l'analyse, le logiciel compare les déformations de ces zones d'intérêt image par image, en décomposant l'image en sous-images rectangulaires de petites dimensions ([13, 15]). On parle de facettes, dont les dimensions sont de l'ordre de 20x20 pixels. La fig.3.4(a) présente l'image d'une éprouvette installée entre les mors de traction. On distingue la région d'intérêt dans l'encadrement rectangulaire vert, et trois facettes de référence rectangulaire rouge.

La première image est l'image de référence, composée des facettes de référence, et les autres sont les images déformées. Un recouvrement de plusieurs pixels entre chaque facette contiguë est assuré afin d'affiner le maillage formé par le centre de chaque facette. Une corrélation numérique par transformées de Fourier permet de déterminer le déplacement moyen de chaque facette, indépendamment les unes des autres. Un algorithme de corrélation sub-pixel est utilisé dans ce logiciel industriel pour optimiser la précision de la méthode de corrélation. On observe, sur la fig. 3.4(b), l'éprouvette déformée. On superpose en couleur le champ de déformation et les trois facettes initiales présentant des déformations en fonction de leurs positions dans la zone utile. La localisation de la déformation apparaît au centre de la zone utile.

Pour juger, en amont des essais, de l'efficacité du logiciel, différents tests de mouvement de corps rigides (de déplacement à vitesse imposée sans déformation) sont réalisés. Les résultats des corrélations nous permettent de vérifier les capacités du logiciel et de valider l'ensemble du protocole (dépôt de

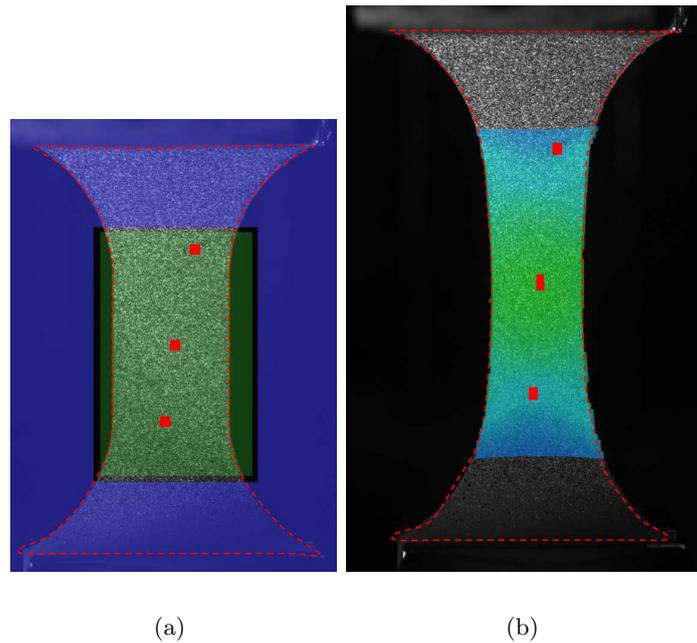


Figure 3.4 – Technique de corrélation d’image (contours de l’éprouvette en pointillés) : (a) Image initiale avec trois facettes de référence. (b) Image déformée avec champ des déformations principales juxtaposées et facettes déformées.

peinture, éclairage de la scène et traitement des images).

Notre précision sur les mesures de déformations est estimée à 10^{-5} tenant compte de la résolution des caméras utilisées (1600x1200 pixels, codage 8 bits).

3.1.3 Validation des mesures de déformations

La corrélation d’images met en évidence un gradient de déformation dans la zone utile de l’éprouvette (Fig. 3.5), évidente à partir d’un certain niveau de déformation. Cette localisation intervient dans une zone d’espace plus petite que l’écart entre les tâches du système vidéométrique (longueur de jauge de l’extensomètre). Cet effet peut induire jusqu’à une différence d’un facteur deux entre les déformations mesurées par le contrôle vidéométrique et les mesures locales (fig. 3.6).

Si le matériau ne présente pas de localisation de déformation, les mesures restent identiques. Dans notre cas, en traction, à partir d’une déformation de 0.2 et selon les conditions de vitesse et température, une localisation de la déformation apparaît. Cela conduit à un décalage entre les mesures moyennes par VidéoTraction® et les mesures locales avec Aramis®. La précision apportée par les mesures de champ de déformation justifie donc la lourdeur expérimentale supplémentaire occasionnée par le système de corrélation d’images.

Ce choix a pourtant un impact sur la méthode d’asservissement employée. Sans ajustement de notre

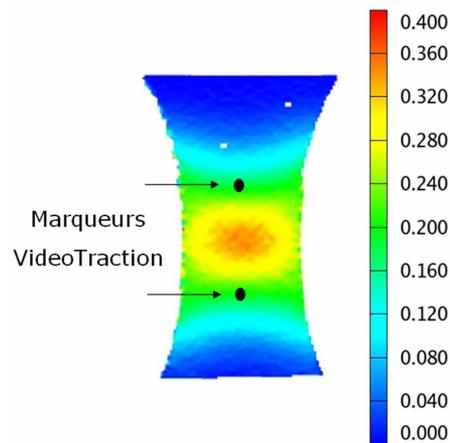


Figure 3.5 – Position des marqueurs VidéoTraction après déformation. Légende : déformations logarithmiques principales dans le sens de traction

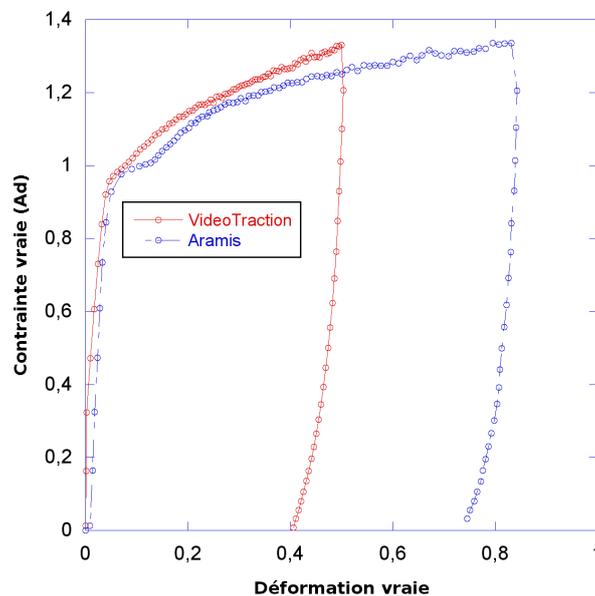


Figure 3.6 – Comparatif courbe contrainte déformation selon la méthode de mesure VidéoTraction et Aramis®. Temperature 20°C, vitesse de déformation réelle $1.10^{-2} s^{-1}$

protocole, nous perdrons la possibilité de pilotage en vitesse de déformation, puisque les corrélations d'images sont réalisées après l'essai. Comme, compte tenu des temps de calculs, il serait très complexe expérimentalement d'assurer un pilotage direct à partir de ces analyses, un calibrage des essais est proposé dans la partie 3.1.6 pour contrôler, malgré tout, les vitesses de déformation dans la zone utile.

3.1.4 Mesures 3D

Pour filmer l'évolution des déformations sur plusieurs faces de l'éprouvette dans les essais de traction, nous avons utilisé différents systèmes optique ou matériel.

Le premier est un système de prisme, qui renvoie l'image de la face latérale sur le même plan que la face avant. Il est donc possible de suivre avec un seul dispositif de capture d'images les déformations

dans les trois directions principales.

Le deuxième est un système matériel à deux caméras synchronisées (BiCaméras), développé lors de l'étude. Cela nous permet de filmer les éprouvettes sur deux angles différents, ou plus simplement de filmer les faces avant et latérales de manière synchronisée. Après corrélation, nous obtenons les trois déformations principales. L'usage de deux caméras permet de s'affranchir des problèmes d'échelle inhérent à la géométrie des échantillons. En effet, la face avant est de largeur 10 mm, tandis que la face latérale est de largeur 3 mm (cf. fig.3.15). Afin d'optimiser la résolution sur les deux faces, nous focalisons la caméra de la face transverse sur la zone de localisation des déformations. La taille réelle du champ de corrélation est réduite par rapport à celle obtenue sur la face avant. La fig.3.7 illustre la différence d'échelles entre les deux images, avec comme référence le rectangle rouge ayant la même dimension réelle pour les deux captures face avant et latérale. Nous validons les mesures en confrontant les mesures des déformations longitudinales faces avant et transverse, qui doivent être similaires. Une analyse est présentée dans la partie 3.2.1.2.

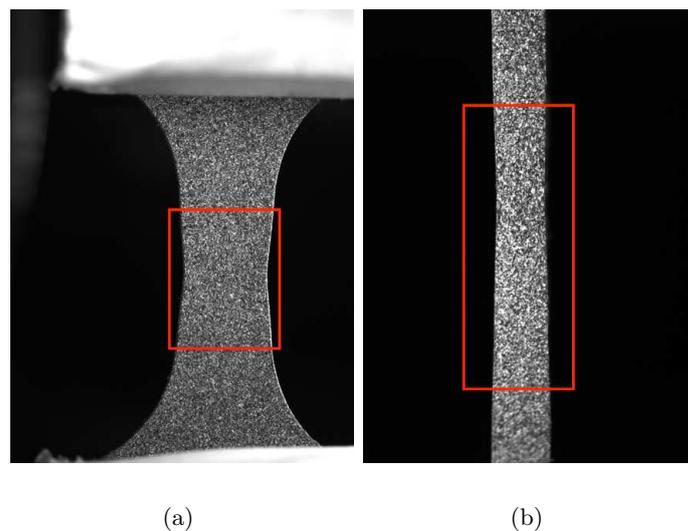


Figure 3.7 – Images obtenues avec le système BiCaméra. Le rectangle représente l'échelle entre les deux images. (a) Face avant. (b) Face latérale.

Pour résumer, le protocole de mesure utilisé pour les essais présentés ici est le suivant :

- Essais à température ambiante

Nous utilisons le système BiCaméras pour chacun des essais.

- Essais en température

Les essais en étuve ne permettent pas l'utilisation des deux caméras directement, du fait de l'exiguïté de la fenêtre d'accès aux échantillons. Nous utilisons alors le prisme en tant que renvoi d'angle, pour filmer les deux faces. Pour profiter de la pleine résolution des deux caméras, l'une

est focalisée sur la face avant, et l'autre est focalisée sur l'image de la face transverse donnée par le prisme. Nous avons alors la possibilité de travailler dans le même plan, mais en conservant une corrélation sur les deux faces indépendantes.

3.1.5 Mesure de température

Nous utilisons un pyromètre infrarouge pour les mesures de température. Un étalonnage, dans une étuve, est effectué entre 20 et 50°C. Un tube noir, convergent entre l'objectif du pyromètre et l'éprouvette, est utilisé pour isoler la scène thermique et réaliser les mesures thermiques sur la zone utile. Le pyromètre utilisé est du type infrarouge polychromatique MAURER KTR 2100, dont la bande

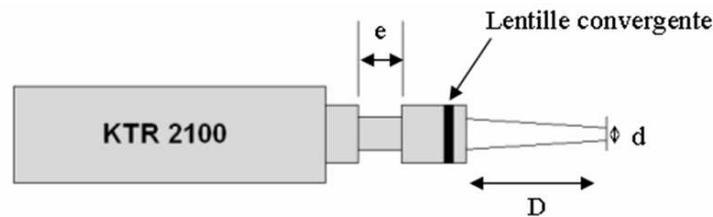


Figure 3.8 – Schéma du pyromètre infrarouge

spectrale est comprise entre 8 et 14 μm . La gamme de température mesurable est comprise entre 0 et 200°C. La fréquence d'échantillonnage maximale est de 200 Hz . Il est possible de déplacer la lentille convergente du pyromètre (fig. 3.1), afin de focaliser la zone de mesure. Lors des essais, la distance entre le pyromètre et la zone de mesure est de 30 cm . Cette distance D a été choisie de telle sorte que la zone mesurée par le pyromètre soit un disque de diamètre $d = 4mm$. Il s'agit du diamètre de mesure minimum, et donc de la distance focale minimale. Cette dimension est par ailleurs suffisamment petite pour assurer une mesure dans une zone "homogène en déformation".

Le pyromètre absorbe le rayonnement provenant du matériau et délivre une tension proportionnelle au rayonnement reçu. Le signal électrique, délivré par le détecteur en fonction du rayonnement, s'écrit :

$$S_i = S_i^0 + K_1 P(T) = S_i^0 + K \left[\int_0^\infty n(\lambda) L_\lambda(T, \lambda) d\lambda \right] \quad (3.1)$$

avec :

S_i^0 : tension d'offset

K : constante d'appareillage

λ : longueur d'onde

$P(T)$: énergie reçue par rayonnement sur le détecteur

$n(\lambda)$: rendement du détecteur en fonction de la longueur d'onde

$L_\lambda(T, \lambda)$: luminance monochromatique

En supposant que $P(T)$ est proportionnelle à T , on peut écrire que :

$$T = K'(S_i - S_i^0) = AS_i + B \quad (3.2)$$

Où A et B sont des grandeurs qui dépendent du matériau qui rayonne. On suppose que l'émissivité et la luminance sont constantes par rapport à la température et à la longueur d'onde. Les grandeurs A et B sont donc des constantes.

Elles sont déterminées par étalonnage expérimental. Un thermocouple est collé sur une face du matériau, placé lui-même dans une étuve dont la température est régulée électroniquement. Comme la fenêtre de l'étuve est opaque aux infrarouges, nous réalisons des mesures ponctuelles de la tension délivrée par le pyromètre, pointé sur le matériau, en ouvrant cette fenêtre rapidement. Cette opération est répétée pour dix valeurs de température entre 20 et 50°C. La tension est ensuite reliée à la température donnée par le thermocouple selon l'expression 3.2. On obtient les valeurs de paramètres suivantes :

$$A = 20.66$$

$$B = 0.37$$

L'opération d'étalonnage étant proche des conditions expérimentales nous espérons prendre en compte les artefacts propres à la technique et les mesures de température seront une bonne estimation de la température moyenne dans la zone d'observation (12 mm^2). Le pyromètre est déplacé en cours d'essai pour suivre le mouvement de la zone la plus déformée de l'éprouvette.

Un second dispositif a été utilisé ponctuellement, consistant en une caméra thermique de bande spectrale comprise entre 3 et 5 μm . La caméra est du type FLIR TITANIUM 560 InSb. Le dispositif nous a permis d'observer quantitativement le champ de température pendant les essais et de valider notre zone de mesure par pyrométrie. Certaines données sont présentées dans ce manuscrit fig. 3.42(c).

3.1.6 Asservissement en vitesse de traverse

Pour ce qui est du pilotage des essais de traction, plusieurs choix techniques s'offrent à nous, tel que l'asservissement à l'aide de VidéoTraction® (contrôle de la vitesse de déformation), le contrôle en force ou le contrôle en vitesse de traverse.

En parallèle, les essais à vitesse de déformation contrôlée sont riches d'information dans l'étape de caractérisation du type de comportement du matériau. Ceci donne un intérêt particulier au système Vidéotraction®. Malheureusement, nous l'avons vu, il n'assure pas toujours une bonne capture des déformations localisées. A contrario, les mesures de champ de déformations, qui assurent cette capture, sont réalisées en post-traitement. Etant donné leur lourdeur, elles ne peuvent pas être utilisées pour un pilotage en direct de la vitesse de déformation. Nous combinons ces deux pilotages dans notre protocole, pour tenter de conserver les avantages de chacun.

Nous avons extrait les vitesses de traverses instantanées, conduisant à une vitesse de déformation moyenne entre tâches constante. Une face de l'éprouvette étant dédiée au suivi des déformations via VidéoTraction®, la seconde dédiée au suivi des déformations par corrélation d'images. Ces profils de vitesses non monotones, présentés dans les figs.3.9, servent ensuite d'abaques pour configurer les essais. C'est-à-dire que nos essais sont pilotés en vitesse de traverse non constante, et que la séquence de vitesse est celle que le système VidéoTraction aura déterminé pour assurer une vitesse moyenne entre tâches constantes.

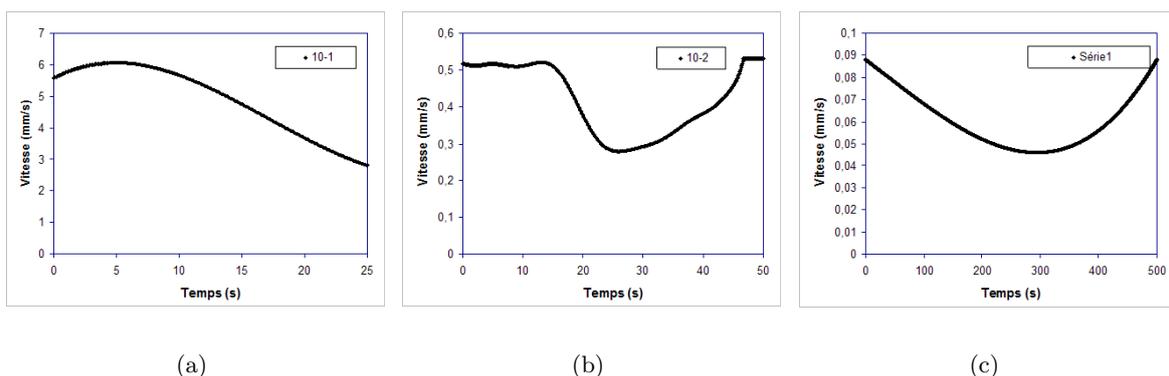


Figure 3.9 – Abaques des vitesses de traverses imposées selon la vitesse de déformation visée : (a) 10^{-1} . (b) 10^{-2} . (c) 10^{-3} .

Cette démarche est validée, a posteriori, en visualisant l'évolution des déformations en fonction du temps par corrélation d'images, et donc la vitesse de déformation (figure 3.10).

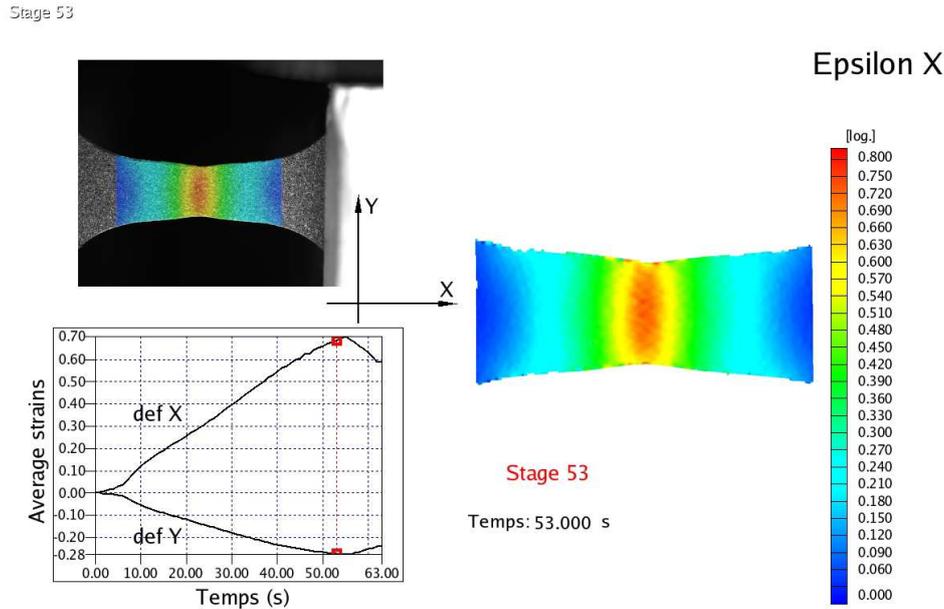


Figure 3.10 – Résultats d'un asservissement en vitesse de traverse sur l'évolution des déformations

3.1.7 Prélèvement et pré-conditionnement

Conformément à notre étude préliminaire (chapitre 2), les éprouvettes sont toutes prélevées en zone centrale des plaques (deuxième tiers) et perpendiculairement au sens de l'écoulement (Fig.2.2). Elles ne sont pas "re-surfacées", c'est-à-dire qu'elles englobent toute l'épaisseur des plaques, soit 3 mm.

Les angles de coupe sont polis avec du papier de verre fin, afin de minimiser les micro-fractures pouvant induire une localisation de la déformation, et conduire à des artefacts de mesure pendant les essais mécaniques.

Les polyamides sont connus pour leur caractère hydrophile et le pré-conditionnement fait partie du protocole expérimental.

Dans notre cas, la reprise d'eau est illustrée par l'évolution de la masse de différents échantillons, soumis aux conditions environnementales ambiantes. L'ensemble de ces spécimens est initialement prélevé dans les plaques injectées, conservées dans les sacs hermétiques de l'expéditeur. On considère donc un taux d'hygrométrie nul dans ces plaques au moment des prélèvements. Les échantillons prélevés sont de la même géométrie que celle utilisée pour les essais mécaniques. Nous contrôlons régulièrement leur poids sur une balance de précision. Afin de s'affranchir des éventuelles variations d'étalonnage de la balance, une masselotte en métal est également pesée pour servir de masse de référence. La fig.3.11 présente la variation massique de la moyenne des mesures, en fonction du temps d'exposition aux conditions environnementales. Dès le début, la cinétique de reprise en eau est rapide, avec une

augmentation linéaire de 0.4% de la masse en 20 jours.

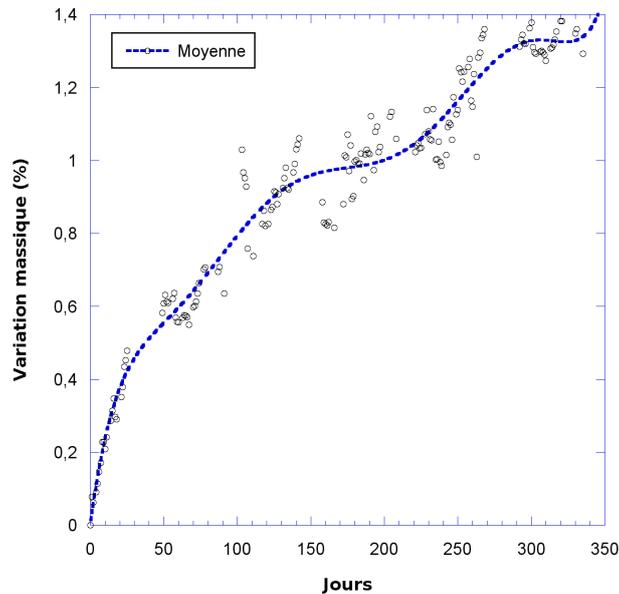


Figure 3.11 – Evolution massique moyenne d’un panel d’échantillons de références (12) en fonction du temps d’exposition aux conditions ambiantes

L’effet de l’eau sur le comportement mécanique du polyamide est bien connu ([16],[17]). La présence d’eau et de liaisons hydrogène entraîne une plastification de la phase amorphe, et donc une variation des températures de transition α (Fig.3.14). L’incidence de la sensibilité de la phase cristalline à l’humidité reste faible (ou nulle) sur le comportement macroscopique global.

Expérimentalement, on retrouve une différence de comportement apparent importante, à condition technologique équivalente, entre un échantillon sec et un échantillon après reprise en eau progressive (fig. 3.12). A température ambiante, le seuil de non-linéarité est deux fois plus important pour le matériau sec. Le comportement, dans son ensemble, est plus rigide et plus fragile en fin de chargement (Fig.3.13).

Ces différences ne sont pas gênantes en elles-mêmes. Par contre, les échantillons secs représentent deux difficultés expérimentales :

- Contrôler un faible taux d’humidité, durant des essais longs réalisés avec un protocole aussi lourd, est délicat compte tenu de la cinétique de reprise en eau (Fig.3.11). De fait, force est de constater que l’utilisation d’échantillons secs (ou supposés tels) introduit une source de dispersion expérimentale assez forte.
- A température ambiante, cœur de notre identification, le polyamide sec est clairement moins ” ductile ” que le polyamide humide. De ce fait, ces essais sont plus délicats et moins précis.

Afin de s’affranchir de ces difficultés, nous avons décidé de travailler sur des échantillons après

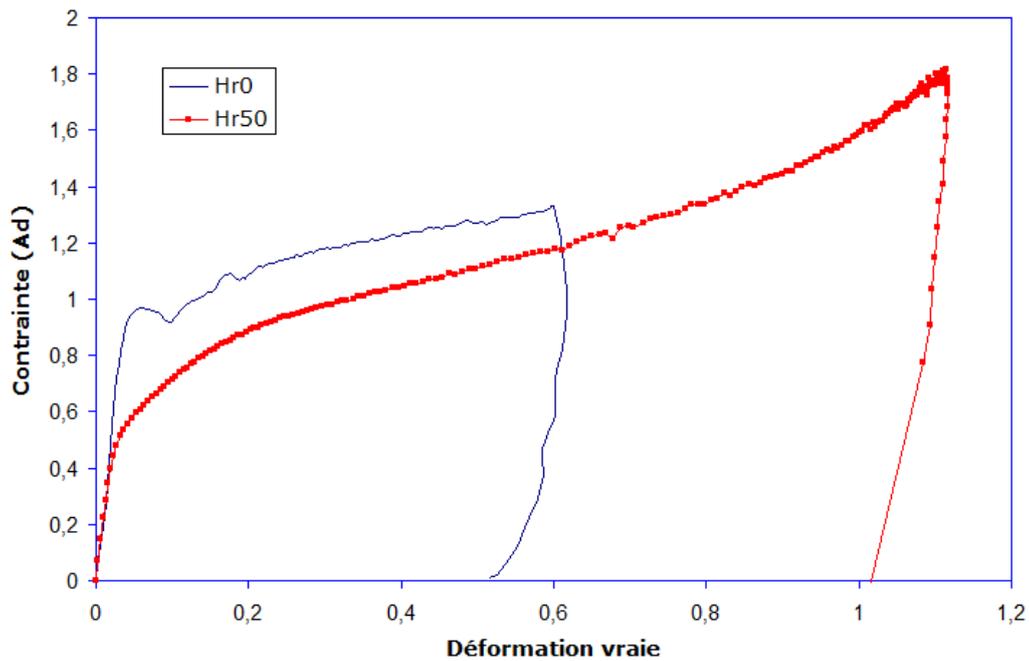


Figure 3.12 – Comparatif des comportements sec (Hr0) et humide (Hr50) à 21°C et vitesse de déformation réelle de 10^{-3} s^{-1}

application d'un protocole de reprise en eau rapide. Les échantillons sont conduits à saturation après une immersion de deux semaines dans l'eau, puis retour à l'équilibre pendant deux semaines, sans conditionnement particulier.

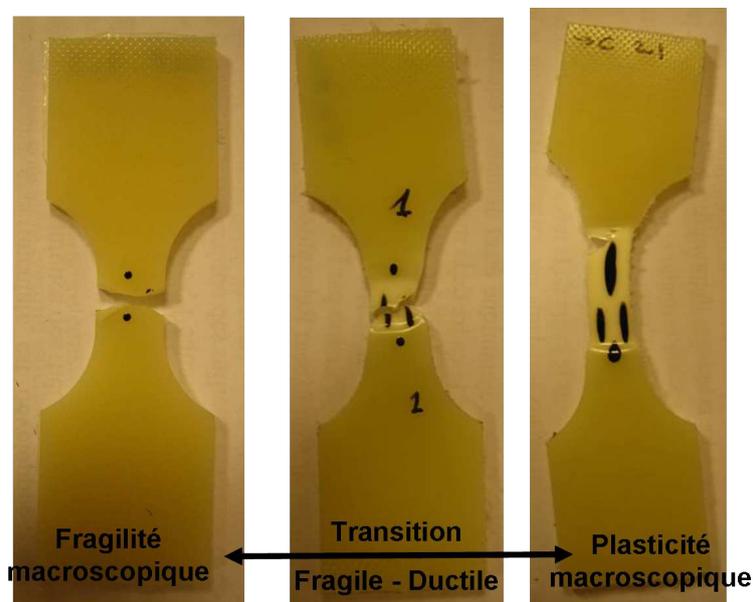


Figure 3.13 – Faciès de rupture selon les taux d'hygrométrie : à gauche échantillon sec, à droite échantillon humide. Température 22°C et vitesse de déformation réelle 10^{-3} s^{-1}

Les mesures DMA réalisées après ce protocole de reprise en eau rapide, sont présentées figure 3.14. La température de transition α est alors identifiée à 25°C. On note également une baisse du module

élastique, en accord avec les observations de la figure 3.12.

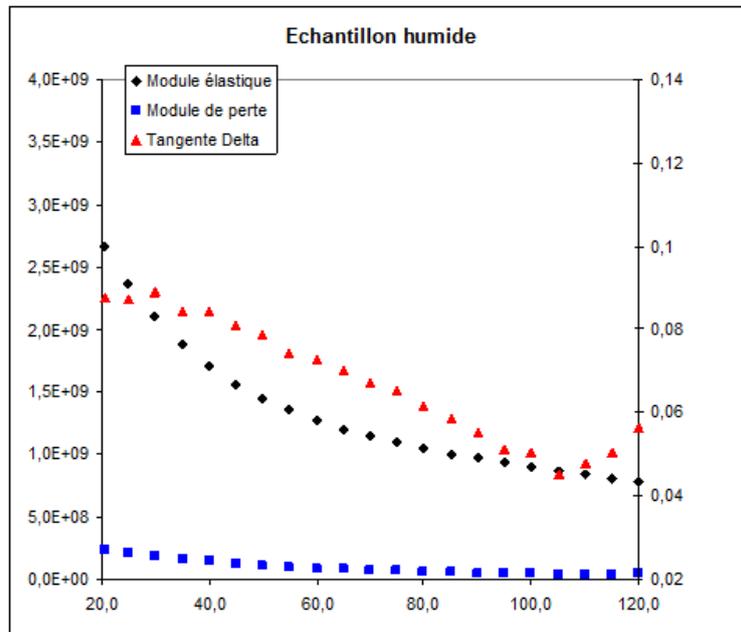


Figure 3.14 – DMA sur échantillon humide ($f=1Hz$)

Les essais seront considérés comme réalisés sur un matériau identique, et à taux d’humidité constant, lorsque la masse des échantillons n’évolue plus. Ce choix est conduit également après réflexion sur l’état du matériau en conditions industrielles. Globalement, la base de donnée expérimentale utilisée pour l’identification de comportement correspond à un matériau stabilisé en eau, ayant repris 1.4% en masse d’eau.

3.1.8 Conclusion

Les essais de traction uniaxiaux, à température ambiante, sont les seuls où nous pouvons utiliser l’ensemble des raffinements expérimentaux. Ils seront donc la base de nos réflexions sur le cadre du modèle de comportement.

Les champs de déformations déterminés par corrélation d’images sont connus sur les faces avant et latérales. Ils permettent de poser les hypothèses de travail, tels que l’admissibilité du chargement en traction simple, le degré d’anisotropie du matériau ou encore l’écart à l’incompressibilité. Ces hypothèses nous permettent, par la suite, d’exploiter nos essais mécaniques et de simplifier le protocole expérimental, et donc de limiter la lourdeur expérimentale des mesures, dans le cas d’essais mécaniques en étuve.

Précisons enfin, que, dans toute la suite du document, les contraintes seront présentées adimensionnalisées, sur une échelle d’unité unique mais arbitraire, pour répondre aux exigences de confidentialité.

3.2 Protocole de chargement, Traction uniaxiale

Le chargement non monotone en traction simple permet de mettre en évidence le comportement mécanique du matériau, dans notre gamme expérimentale.

La géométrie d'éprouvette est choisie (Fig. 3.15) pour définir une zone utile où la déformation est concentrée, tout en minimisant les effets triaxiaux initiaux, qui résulteraient de rayons de courbures trop faibles.

Le sens de prélèvement est choisi arbitrairement perpendiculaire à la direction d'injection, et les éprouvettes sont prélevées dans la zone centrale des plaques injectées, schématisé figure 3.16, suivant la sensibilité à la zone de prélèvement (chapitre 2.3.2).

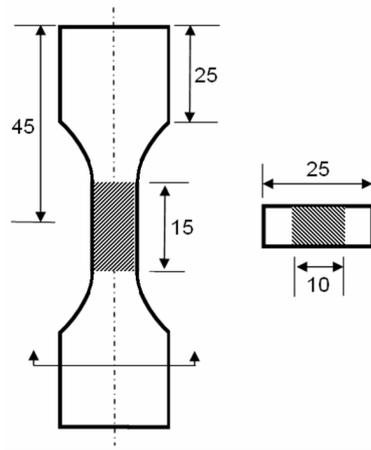


Figure 3.15 – Schéma des échantillons de traction, zone utile grisée

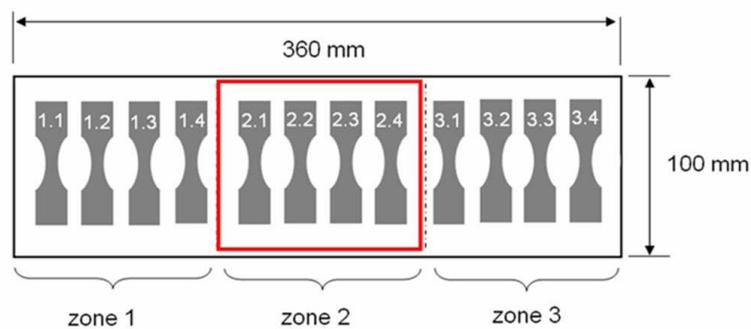


Figure 3.16 – Zones de prélèvement des échantillons : (1) entrée de plaque. (2) milieu de plaque. (3) fin de plaque.

3.2.1 Analyse critique des essais

3.2.1.1 Condition de chargement

Avec l'analyse des champs de déformation dans l'échantillon, nous allons partiellement vérifier les conditions de traction simple que l'on cherche à obtenir. L'évolution des champs de déformations longitudinales, ϵ_{xx} selon le niveau de déformation moyen atteint au centre de l'éprouvette, est illustrée figure 3.17 et 3.18 sur la base d'un essai réalisé à 25°C et avec une vitesse de déformation réelle de 10^{-3} s^{-1} . Par convention, on parle de direction transverse pour la direction transverse au sens de sollicitation, et de direction longitudinale pour la direction colinéaire au sens de traction. On introduit deux sections de références. Une section transverse qui est la largeur (direction y) de l'éprouvette et une section longitudinale (direction x), passant par l'axe de symétrie de la largeur de l'éprouvette, centrée sur la section transverse. Visuellement, nous obtenons des repères en croix, fig. 3.17(b)

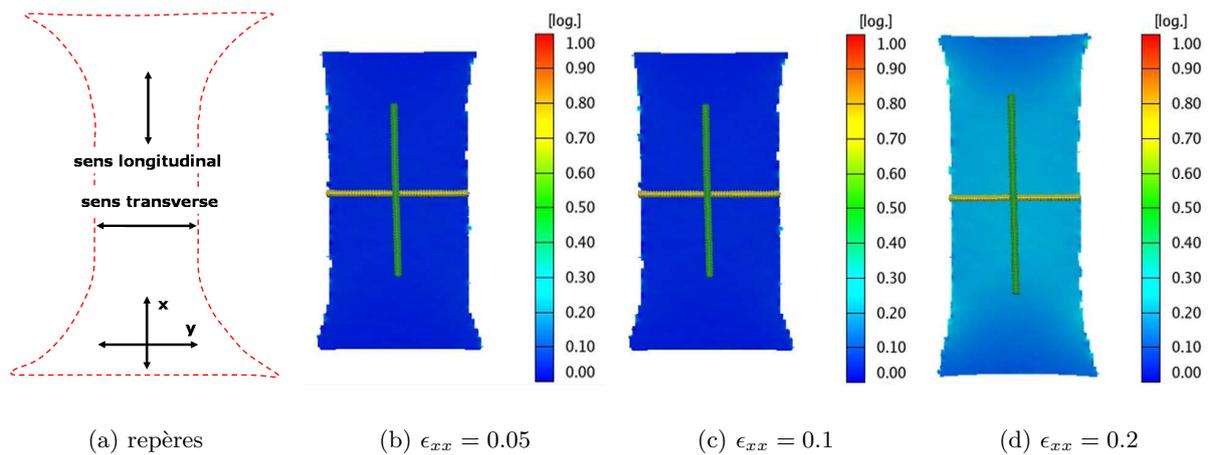


Figure 3.17 – Résultats de corrélation d'images en fonction du niveau de déformation moyen atteint au milieu de l'éprouvette.

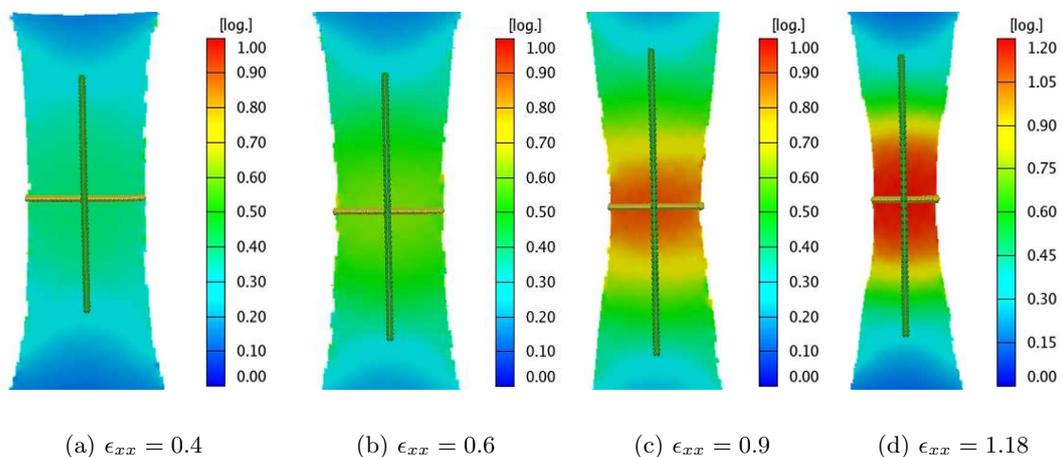


Figure 3.18 – Résultats de corrélation d'images pour de grands niveaux de déformations

On voit apparaître, progressivement, des déformations dans l'ensemble de la zone utile, entre les congés de raccordement. La répartition des déformations est homogène, jusqu'à un niveau de déformation ϵ_{xx} de 0.2.

A partir d'une déformation $\epsilon_{xx} = 0.3$, une localisation apparaît au milieu de cette zone, conduisant à un fort gradient. C'est dans la zone la plus sollicitée que l'on définit la section transverse. Cette localisation est visible sur les champs de déformations (figures 3.18(b) à 3.18(d)).

Un autre moyen de se rendre compte de la localisation des déformations est de suivre l'évolution des déformations dans les sections de référence. Les figures 3.19(b) et 3.19(d) présentent respectivement l'évolution des déformations ϵ_{xx} et ϵ_{yy} dans la section longitudinale.

Les déformations axiales dans la section transverse, là où les déformations sont maximales, sont représentées sur les figures 3.19(a) et 3.19(c). Le rétrécissement de section est de l'ordre de 40%, à un niveau de déformation de 1,2. La section de la zone utile passant de 10mm de largeur à 6mm. La répartition des déformations ϵ_{xx} est homogène dans la section transverse, quel que soit le niveau atteint. Quelques effets de bords sont visibles, illustrés par la fig. 3.20, pour une déformation de 0,6. Certains éléments disparaissent au cours de la corrélation, dus à la dégradation du mouchetis sur les bords. D'autres éléments présentent des concentrations de déformations fictives, dues aux erreurs de corrélation sur les bords.

Pour s'affranchir de ces effets de bords lors des calculs, on déterminera, par la suite, l'ensemble des grandeurs d'études mécaniques, comme une moyenne de chacune de ces grandeurs au niveau de la zone de localisation des déformations, en excluant les extrémités. Les grandeurs caractéristiques de l'essai sont donc déterminées à partir de la moyenne de ces grandeurs, dans un domaine de quelques éléments de part et d'autre de la ligne transverse, en excluant les éléments près du bord, pour limiter les erreurs numériques.

Le caractère homogène des déformations ϵ_{yy} est, par contre, plus discutable à partir des déformations proches de 1. Les hypothèses de planéité des sections sont, peut-être, très fortes, et des effets de structure apparaissent. Ces effets restent toutefois faibles dans notre gamme d'analyse.

L'homogénéité des déformations transverses est donc, malgré tout, démontrée et l'essai de traction simple est validé. Partant de cette constatation, les données de corrélation nous donnent accès aux trois déformations principales, $\epsilon_1 = \epsilon_{xx}$, $\epsilon_2 = \epsilon_{yy}$ et $\epsilon_3 = \epsilon_{zz}$.

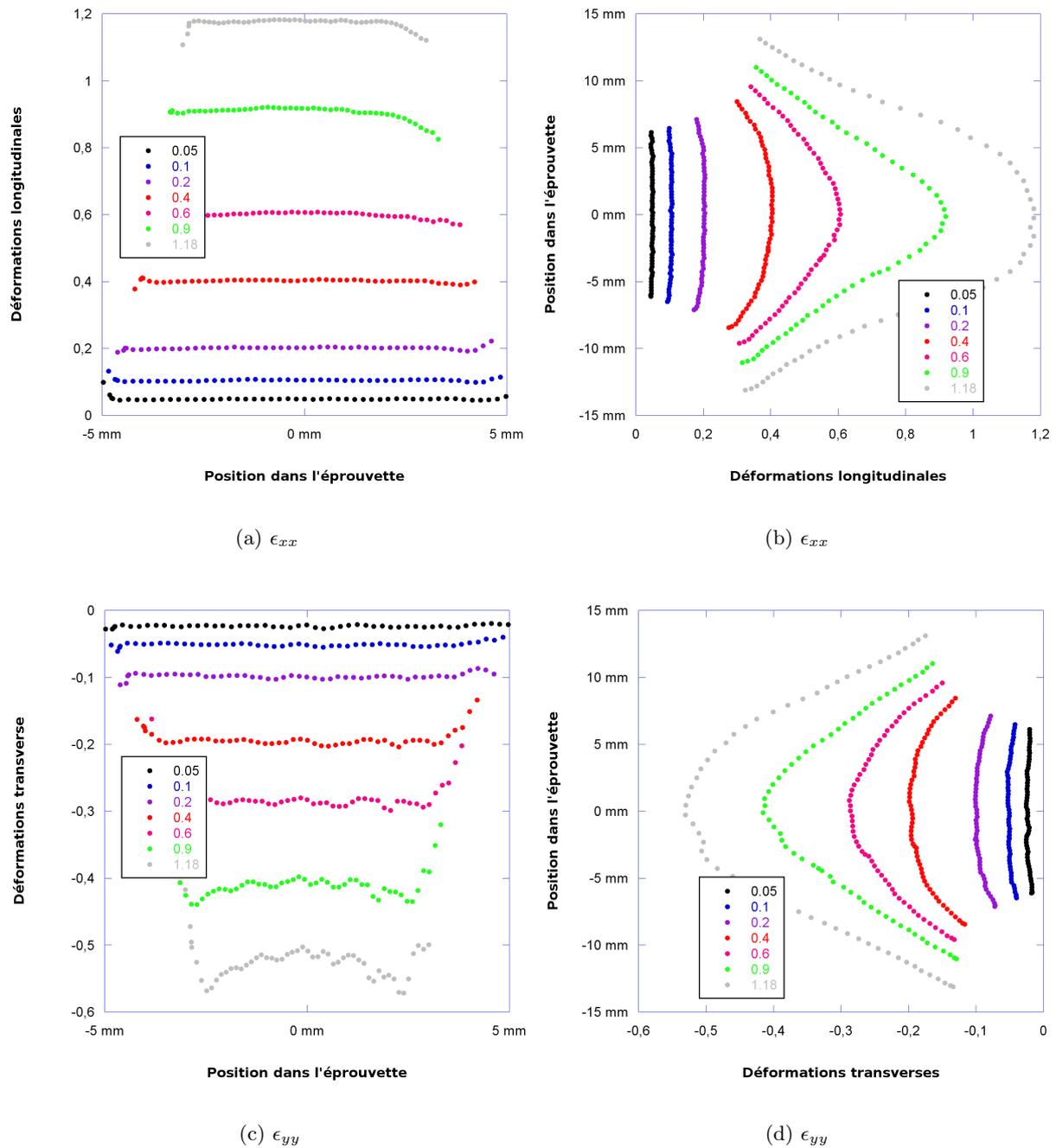


Figure 3.19 – Déformations ϵ_{xx} et ϵ_{yy} dans : à gauche dans la section transverse, à droite dans la section longitudinale.

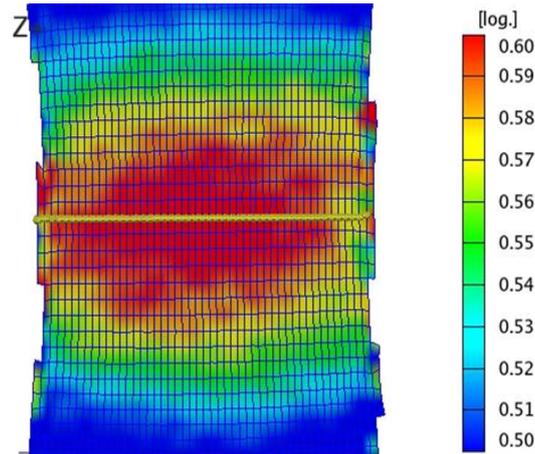


Figure 3.20 – Agrandissement de la zone utile pour une déformation de 0.6 avec superposition de la grille des déformées.

3.2.1.2 Axisymétrie

Sous les hypothèses de traction simple, nous allons étudier l’impact de l’hypothèse d’axisymétrie sur les résultats mécaniques. Cette étude est conduite pour des échantillons avec et sans conditionnement en eau. L’expression générale de la contrainte vraie, donnée par l’analyse des déformations principales dans les trois directions, est de la forme :

$$\sigma_{2cam} = \frac{F}{S_0 \cdot \exp(\epsilon_2 + \epsilon_3)} \quad (3.3)$$

Où S_0 est la section initiale et F est la force appliquée.

Si on suppose que les déformations sont invariantes par rotation autour de l’axe de traction, on fait une hypothèse d’axisymétrie. Soit $\epsilon_2 = \epsilon_3$. L’expression de la contrainte est alors :

$$\sigma_{iso} = \frac{F}{S_0 \cdot \exp(2 \cdot \epsilon_2)} \quad (3.4)$$

Nous présentons les résultats obtenus dans le cas complet et le cas isotrope transverse pour un matériau sec (fig. 3.21) et après reprise en eau rapide (fig. 3.22). Y sont réunis, les évolutions des déformations principales en fonction du temps et celles des contraintes définies par les équations 3.3 et 3.4, en fonction de la déformation de traction simple.

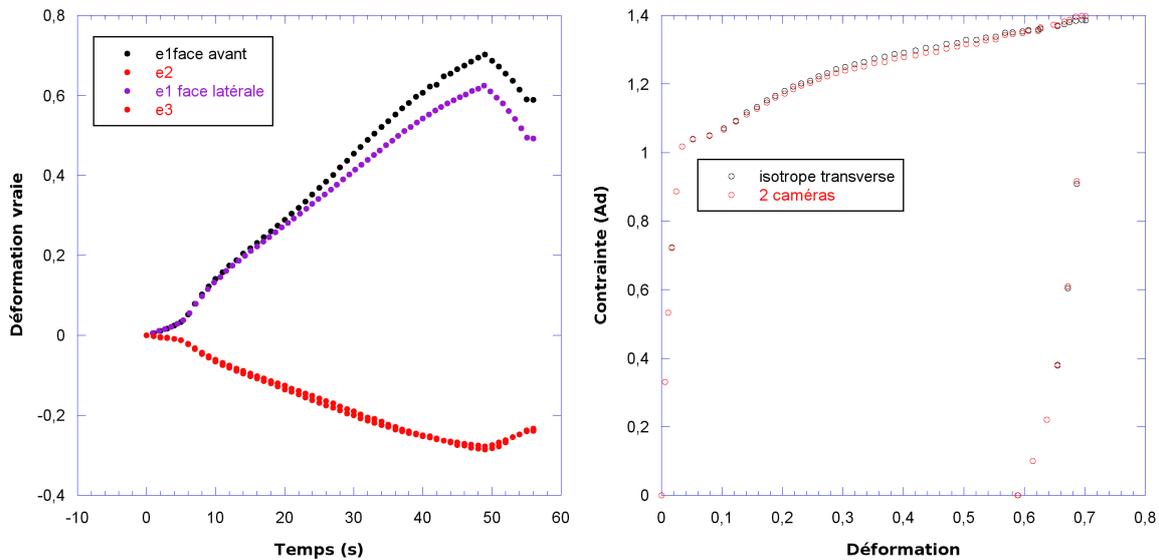
Les déformations axiales, ϵ_1 , mesurées sur la face avant et celles mesurées sur la face latérale présentent un décalage significatif dans le cas d’échantillons secs. Cela peut s’expliquer par une zone de striction très profonde et étroite, ce qui induit une imprécision sur la zone de mesure de la face latérale. La déformation mesurée n’est alors pas la déformation maximale ressentie par le matériau.

A contrario, la correspondance est excellente, dans les cas d’essais sur échantillons humides à cœur,

pour notre étude.

Pour les déformations transverses, ϵ_2 et ϵ_3 , la correspondance est très bonne dans tous les cas. Nous avons visuellement la superposition des deux courbes d'évolution en fonction du temps. Les déformations sont donc similaires dans les directions transverses de la face avant et de la face latérale.

De ce fait, les courbes contrainte vraie déformation vraie (fig. 3.21(b) et 3.22(b)) déterminées avec et sans l'hypothèse d'axisymétrie présentent les mêmes caractéristiques. Les courbes se superposent parfaitement dans les deux conditions d'hygrométrie, jusqu'à des niveaux de déformation important.



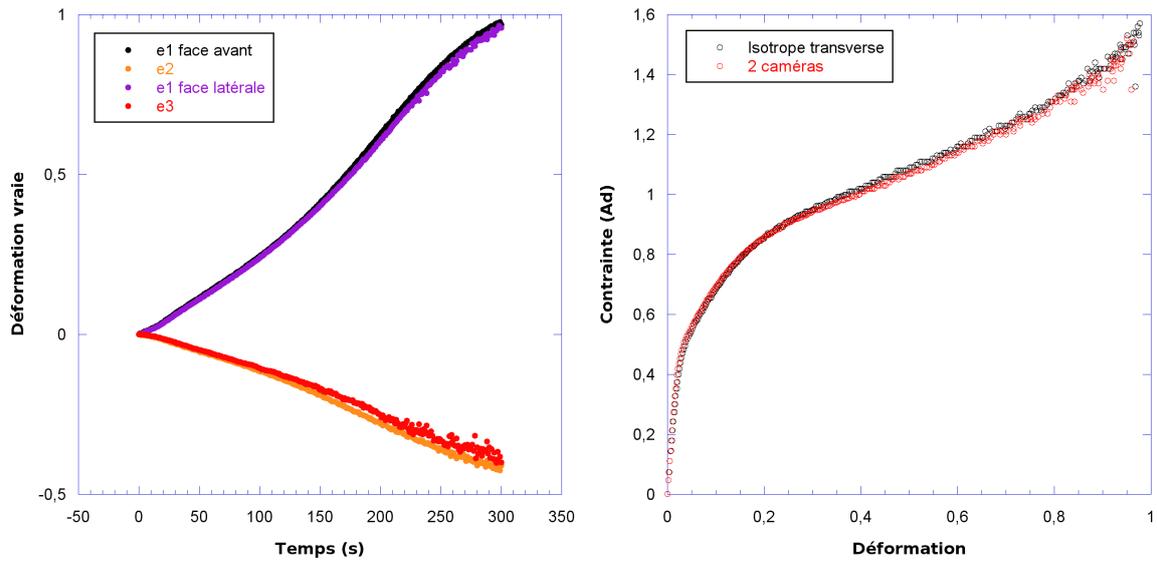
(a) Déformations principales en fonction du temps des faces avant et latérale

(b) Courbe contrainte déformation déterminée sans hypothèses, et sous les hypothèses d'isotropie transverse

Figure 3.21 – Résultats pour un matériau sec, paramètres essai : $1.10^{-2} s^{-1}$ à $25^{\circ}C$

Les hypothèses d'isotropie transverse sont donc validées pour les différentes conditions d'hygrométrie.

La base expérimentale étant construite à plusieurs vitesses et températures de déformation, ces vérifications ont aussi été menées en température, grâce au dispositif avec prisme de renvoi d'angle avec deux caméras. Celui ci n'est d'ailleurs utilisé qu'occasionnellement à cet effet, nos conclusions autorisant de limiter la lourdeur du protocole expérimental.



(a) Déformations principales en fonction du temps des faces avant et latérale

(b) Courbe contrainte déformation déterminée sans hypothèses, et sous les hypothèses d'isotropie transverse

Figure 3.22 – Résultats pour un matériau humide, paramètres essai : $2 \cdot 10^{-3} \text{ s}^{-1}$ à 25°C

3.2.1.3 Déformations volumiques

La connaissance des trois déformations principales nous donne l'évolution de l'écart à l'équilibre, en fonction du niveau de déformation. La variation volumique, ou écart à l'équilibre, est définie par :

$$\frac{DV}{V_0} = \exp(\epsilon_1 + \epsilon_2 + \epsilon_3) - 1 \quad (3.5)$$

avec :

V_0 : Volume initial

$DV = V - V_0$: Variation de volume

ϵ_i ($i = 1 : 3$) : Déformations dans les directions principales

Nous disposons d'une base expérimentale étendue en vitesse de déformation. La Fig. 3.23 présente un bilan de l'écart à l'incompressibilité sur trois décades de vitesse pour le matériau humide.

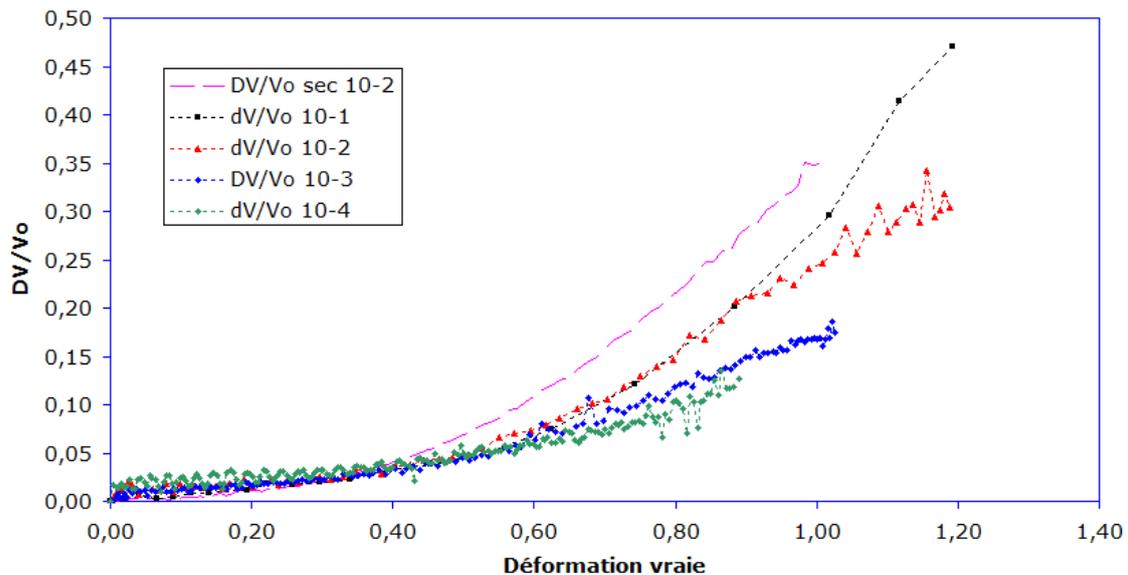


Figure 3.23 – Ecart à l'équilibre en fonction de la vitesse de déformation, température 25°C

La compressibilité du matériau présente une forte sensibilité à la vitesse de déformation. Pour une déformation vraie de 1, l'écart est de 15% à 10^{-3} s^{-1} et passe à 30% pour une vitesse de 10^{-2} s^{-1} . Cette sensibilité se dégage néanmoins vers les fortes déformations, et reste faible avant une déformation vraie de 0,6.

Une plus forte variation de 35% est observée dans le cas d'un échantillon sec. Peut-être les processus de cavitation deviennent-ils plus prononcés dans ce cas, et reste faibles sur un matériau après reprise en eau. Ce point méritera d'être approfondi à l'avenir.

L'évolution de la variation de volume ne peut pas être directement mise en relation avec la forme de la courbe contrainte déformation. Concernant la contrainte, le passage du seuil de non-proportionnalité est situé vers une déformation de 0,2, or l'évolution rapide de la variation volumique se produit plus tard (fig. 3.23). En d'autres termes, la variation volumique n'est pas directement discernable sur les courbes contrainte déformation.

Toutefois, comparée à d'autres valeurs [10], la variation volumique de notre matériau est faible. Dans notre modélisation thermomécanique, nous considérerons donc un matériau incompressible, afin de simplifier les écritures. En effet, introduire cet effet a posteriori, ne demandera pas de remise en cause profonde de la démarche.

L'aspect fortement dépendant en température sera préférentiellement étudié.

3.2.1.4 Bilan

Nos essais de traction sont donc sains. Les hypothèses de dépouillement sont validées.

Par précaution, les grandeurs caractéristiques, issues de la corrélation d'images, sont déterminées sur un domaine de quelques éléments, de part et d'autre d'une ligne médiane, où les déformations sont maximales. Les éléments de bord sont éliminés pour limiter les effets d'erreurs numériques.

L'hypothèse d'axisymétrie est validée.

L'hypothèse d'incompressibilité est, quant à elle, admise, étant posé qu'elle sera d'autant plus fautive que nous nous rapprocherons d'un comportement vitreux pour la phase amorphe.

3.2.2 Comportement thermomécanique global

Dans cette partie, nous présentons les résultats globaux des essais de traction simple non monotone, sur échantillons humides.

3.2.2.1 Coexistence viscoélasticité et viscoplasticité

Les deux premières courbes, figures 3.24 et 3.25, présentent l'évolution des contraintes pour différents niveaux de déformation, à deux vitesses de déformation. Notons, tout d'abord, une excellente reproductibilité d'un échantillon à l'autre.

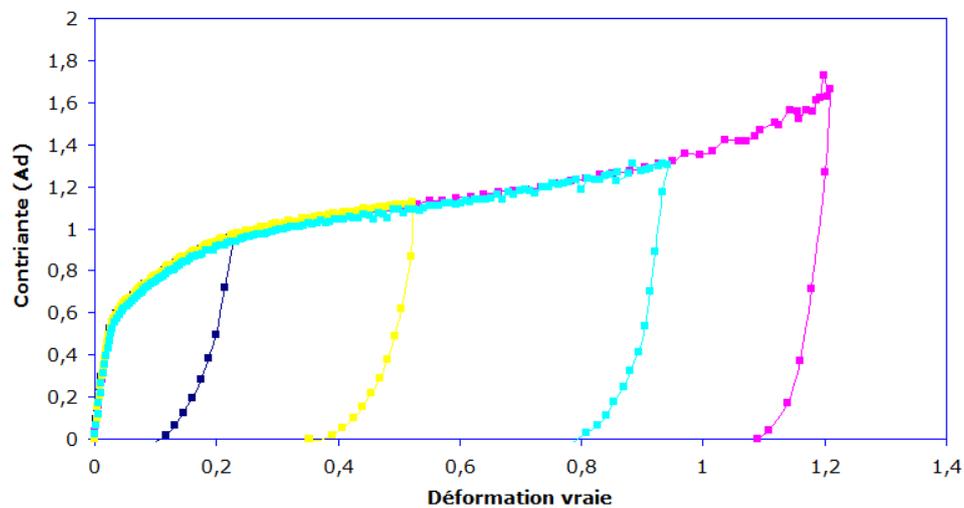


Figure 3.24 – Courbes contrainte déformation pour différents niveaux de chargement, vitesse de déformation 10^{-2} s^{-1} , température 25°C

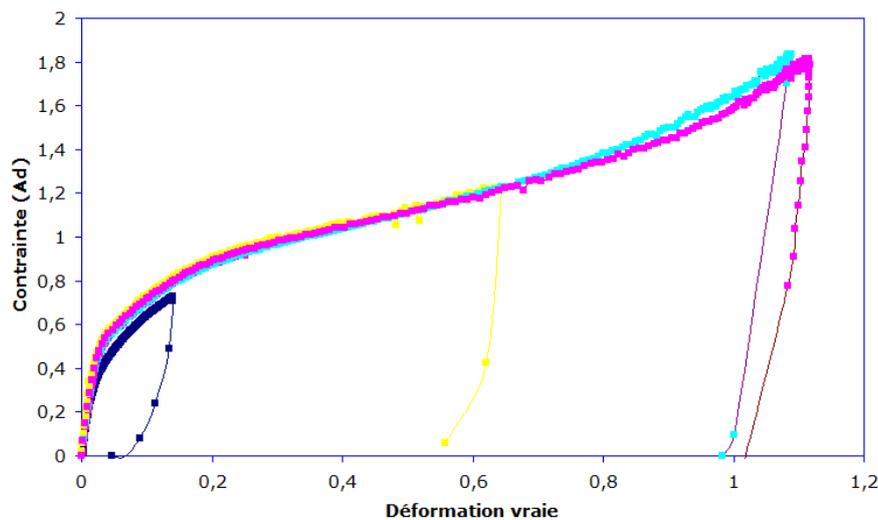


Figure 3.25 – Courbes contrainte déformation pour différents niveaux de chargement, vitesse de déformation 10^{-3} s^{-1} , température 25°C

Différents domaines de comportement apparaissent. Dans un premier domaine, que nous nomme-

rons par habitude, viscoélastique, nous observons un comportement raisonnablement linéaire, jusqu'à une contrainte de 0,5 et ensuite non-linéaire jusqu'à une contrainte de 1. Ce domaine est limité aux déformations inférieures à 0,2 et présente un caractère anélastique. Les décharges, à ce niveau de chargement, présentent toutefois une forte part réversible. Ensuite, apparaît un domaine où un caractère viscoplastique (du cristal par exemple) et hyperélastique de la phase amorphe coexistent. Un caractère durcissant est particulièrement marqué à partir des déformations de 0,8. Les décharges présentent une forte part irréversible, symptomatique de processus d'origine plastique, ou viscoélastique aux temps longs.

Cette séparation entre un caractère viscoélastique d'une part et viscoplastique d'autre part, et l'attribution des processus à une phase ou à l'autre est simpliste. L'existence d'un seuil unique, à partir duquel se déclencheraient certains processus, n'est pas clairement prouvé pour les polymères semi-cristallins.

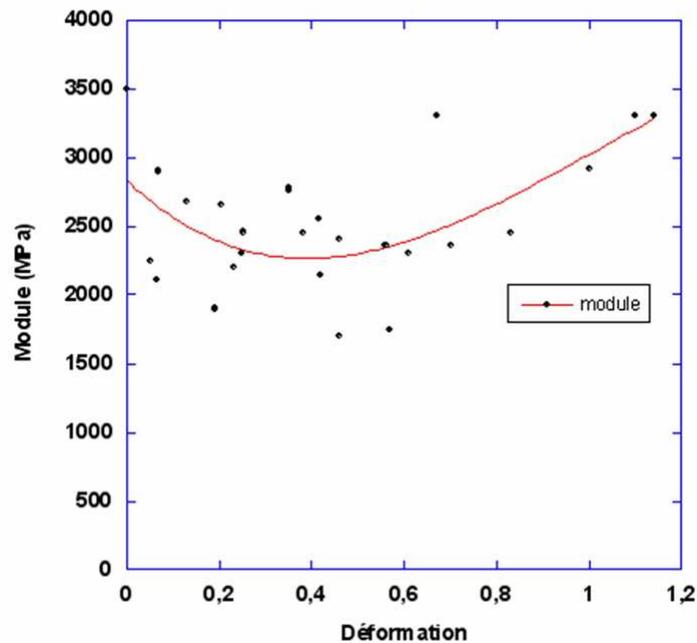


Figure 3.26 – Evolution du module selon le niveau de chargement, module pris à la décharge

La coexistence des processus propres à chaque phase, du fait des interactions fortes entre elles, introduit les deux écoulements simultanément. Quelques essais de diffraction des rayons X montrent, dans notre cas, une modification de la phase cristalline dès les premiers niveaux de déformation.

Le module à la décharge (Fig. 3.26) décroît de 3500 MPa à 2200 MPa pour une déformation de 0,4, significatif d'un endommagement au sens de Chaboche [18]. Passé ce niveau de déformation, le raisonnement en endommagement effectif n'est plus possible, puisque le module augmente. Sans doute faisons-nous face à une compétition endommagement et durcissement hyperélastique.

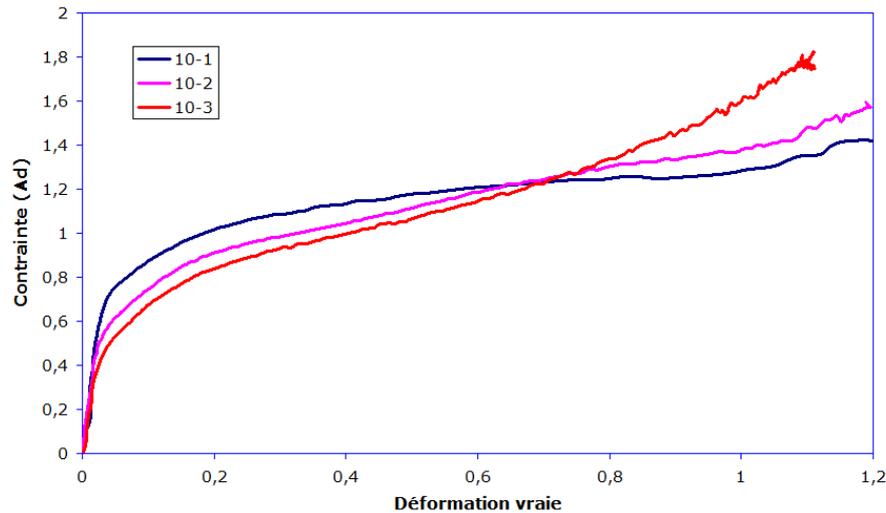
En tout état de cause, cette évolution de module ne peut pas être mise en parallèle, et donc expliquée, par l'écart à la compressibilité (Fig. 3.23).

Nous présentons essentiellement des essais où la décharge a été réalisée à la même vitesse que celle utilisée lors du chargement. Toutefois quelques essais de décharges rapides ont été réalisés où il est clair que le module de déchargement ainsi que la déformation irréversible augmentent avec cette vitesse.

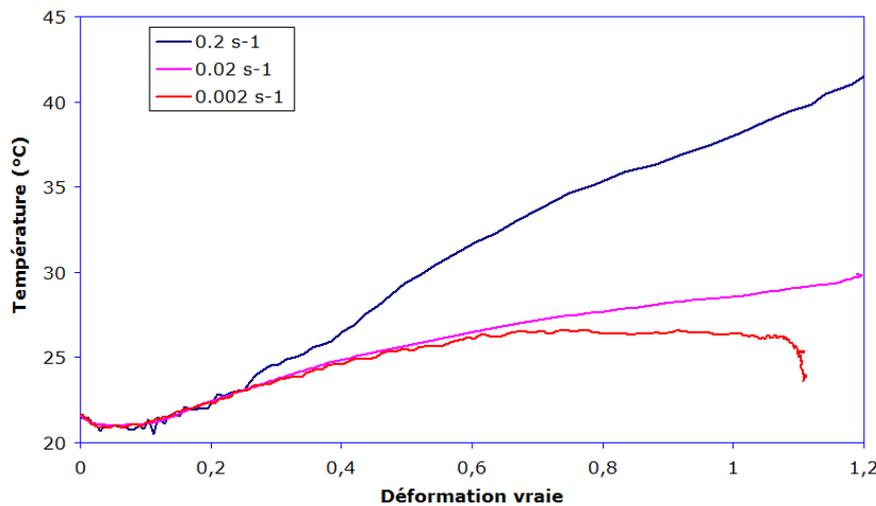
Retenons qu'à l'évidence le matériau combine des comportements qui font imaginer des processus viscoélastiques, viscoplastiques ainsi que écrouissage et endommagement.

3.2.2.2 Couplages thermomécaniques fort

La superposition des courbes de contrainte pour trois vitesses de déformation, présentée fig. 3.27(a) démontre la sensibilité à la vitesse de déformation du comportement. Si les effets sont conformes aux attentes sur les modules et le seuil de non-proportionnalité, une certaine incohérence semble apparaître à forte déformation (au delà de 0,7 de déformation), où l'essai le plus rapide devient le moins rigide.



(a)



(b)

Figure 3.27 – Evolution de : (a) contraintes. (b) température. selon la vitesse de déformation

Ce fait peut s'expliquer en observant l'évolution thermique sur la fig. 3.27(b). Après une phase de refroidissement thermo-élastique, la température augmente avec les effets dissipatifs. La variation de température est de +3°C à 10⁻³ s⁻¹ pour atteindre +20°C à 10⁻¹ s⁻¹! Cette température est

mesurée en surface, et est donc encore plus importante au cœur de l'échantillon. Si on fait le lien avec les données DMA, où la transition α a été observée à 25°C, on comprend qu'une modification de la température, telle que mesurée par le pyromètre, induit le passage d'un comportement vitreux à caoutchoutique pendant l'essai mécanique.

Une autre explication peut venir de l'exploitation des résultats expérimentaux. Les contraintes vraies sont déterminées en fonction de la force ramenée à la section instantanée. Pour un matériau incompressible, cette méthode est exacte. Dans le cas où des effets de cavitations non intrinsèques au matériau peuvent apparaître, il conviendrait de reprendre le dépouillement. La contrainte vraie serait alors définie par la contrainte incompressible pondérée par la variation de volume. L'état de compressibilité instantané du matériau serait à prendre en compte pour l'exploitation des résultats expérimentaux.

La contribution thermique est malgré tout la plus probable, et quoiqu'il en soit, le comportement mécanique est fortement dépendant de la température. La prise en compte du couplage fort thermomécanique apparaît comme indispensable pour notre matériau.

3.2.2.3 Validation de l'approche en vitesse équivalente

En utilisant le tableau 2.15, nous avons effectué les essais mécaniques sur l'ensemble des conditions expérimentales réalisables. La fig. 3.28 présente l'ensemble des conditions en vitesse de déformation et température retenues. Nous avons une base expérimentale couvrant les températures entre -5°C et $+60^{\circ}\text{C}$, et les vitesses de déformation entre $2 \cdot 10^{-4}$ et 2.4 s^{-1} .

Ces 46 conditions vitesse/température, nous conduisent à une gamme de vitesse équivalente à la température de référence (25°C dans notre cas) de 13 décades. L'ensemble du comportement, de la zone vitreuse à la zone caoutchoutique, est testé, avec une redondance des valeurs $a_T \dot{\epsilon}_{eq}$ (fig. 3.29) par différents couples $\dot{\epsilon}/T$.

Si notre postulat, quant à la représentativité de la vitesse équivalente est justifié, les comportements observés doivent être identiques pour ces couples, malgré les conditions expérimentales différentes.

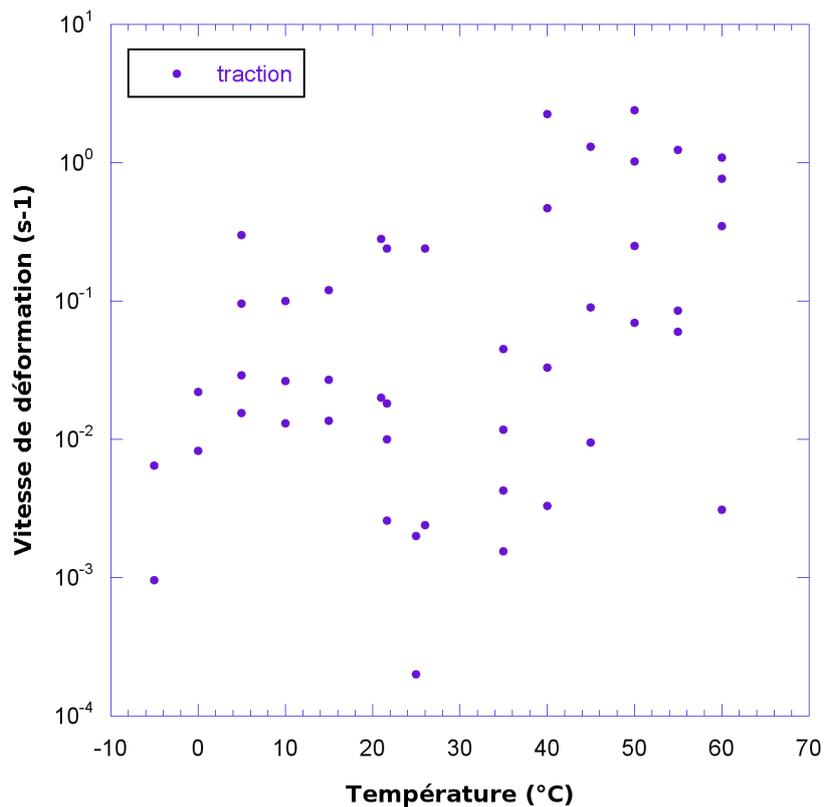


Figure 3.28 – Ensemble des conditions expérimentales en vitesse de déformation selon la température

Les fig. 3.30 et fig. 3.31 illustrent ce fait pour différents couples $\dot{\epsilon}/T$, conduisant aux vitesses équivalentes $a_T \dot{\epsilon}_{eq} = 1 \cdot 10^{-5}$ et $a_T \dot{\epsilon}_{eq} = 1 \cdot 10^1$.

On remarque qu'à vitesse équivalente identique, le comportement est similaire pour différents couples vitesse/température qui pourtant s'étalent de 35 à 55°C d'une part, et de 10 à 25°C d'autre part. Les plages de vitesse de déformation étant comprise entre 10^{-3} et 1 s^{-1} . Notre raisonnement en

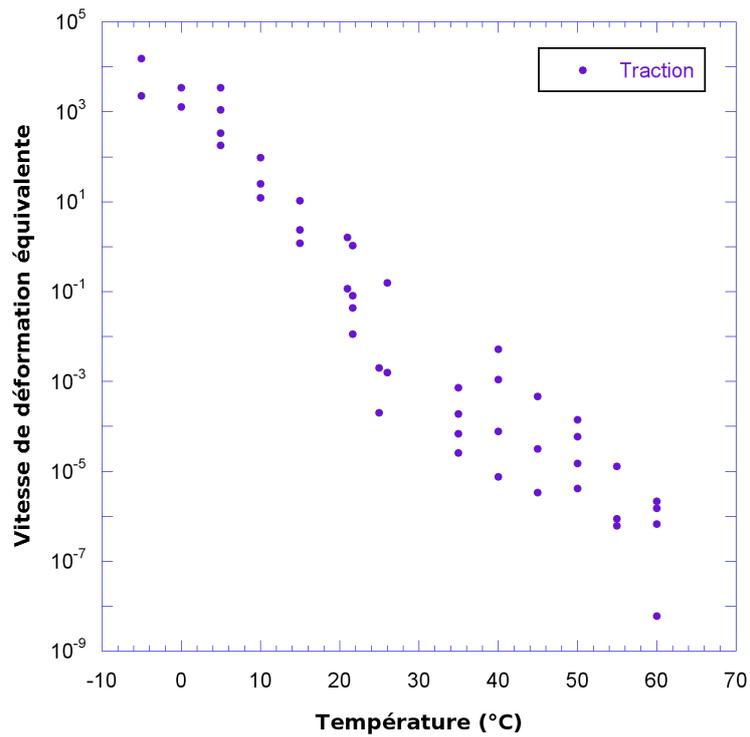


Figure 3.29 – Ensemble des vitesses équivalentes $a_T \dot{\epsilon}_{eq}$ obtenues selon la température expérimentale

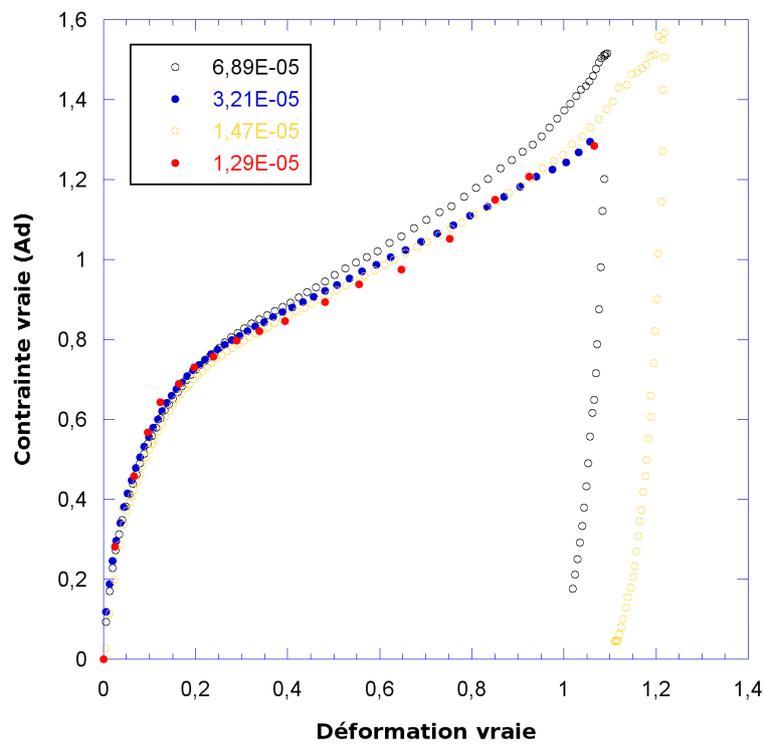


Figure 3.30 – Courbes contrainte déformation pour différents couple vitesse/température à la vitesse équivalente 10^{-5}

vitesse équivalente à une température de référence est donc validé.

La figure 3.32 produit la courbe enveloppe de l'ensemble des essais mécaniques réalisés. Les courbes

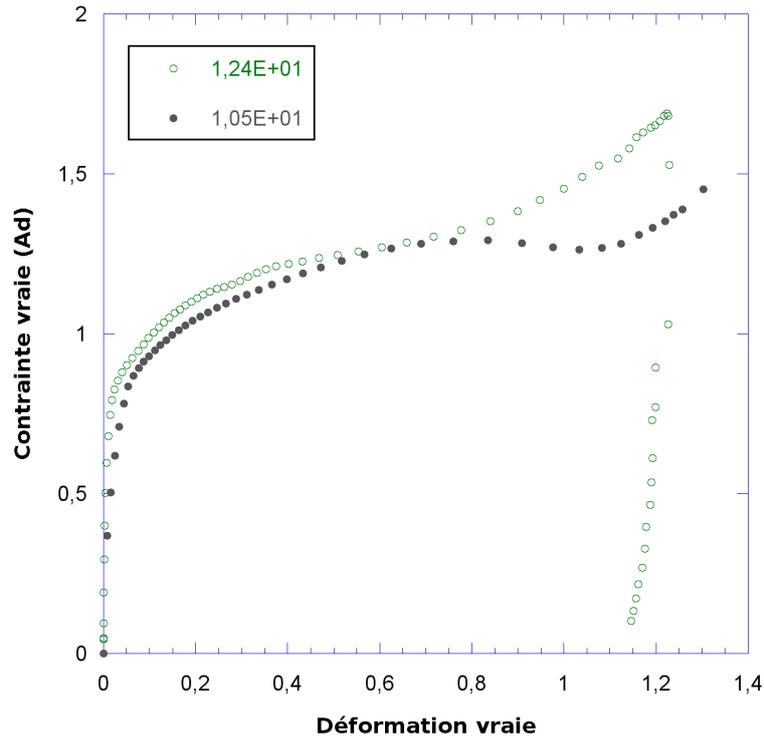


Figure 3.31 – Courbes contrainte déformation pour différents couple vitesse/température à la vitesse équivalente 10^1

contraintes vraie déformation vraie pour différentes conditions sont présentées en fonction de la vitesse équivalente à la température de référence.

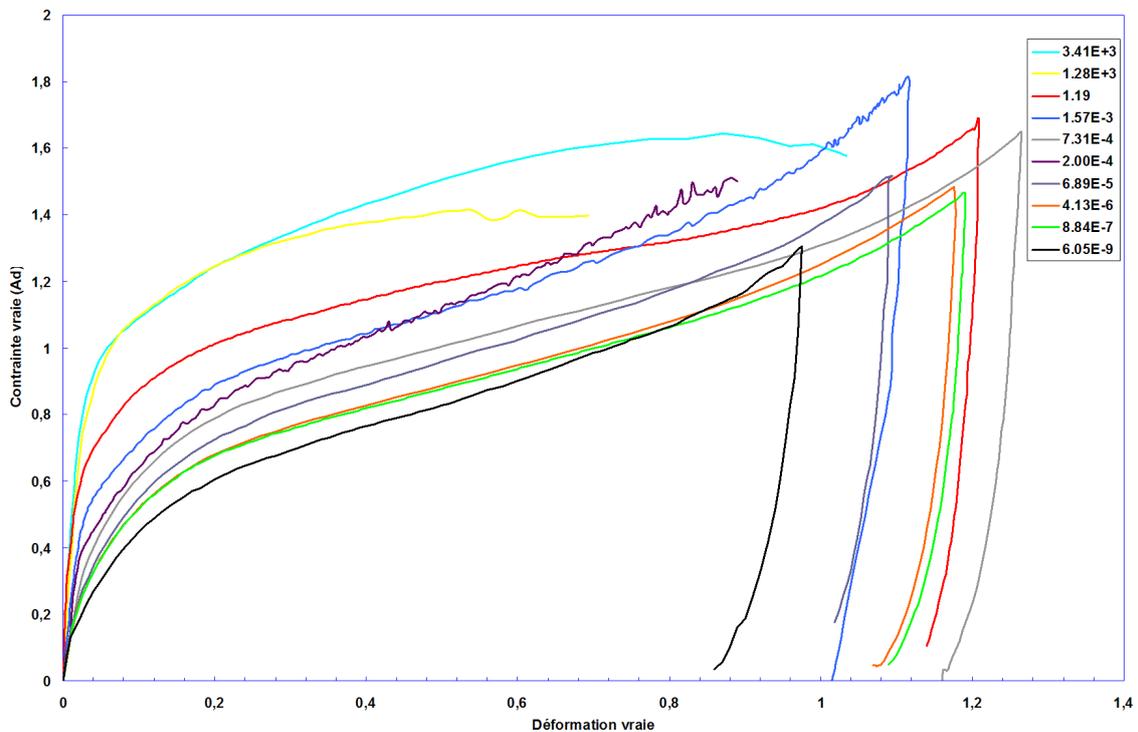


Figure 3.32 – Courbes enveloppe de la base expérimentale obtenue en traction non monotone exprimée en fonction de la vitesse équivalente à la température de référence.

Dans les premiers niveaux de déformation, jusqu'à une déformation de 0,2, l'organisation relative des courbes est fonction de la vitesse $a_T \dot{\epsilon}_{eq}$. La sensibilité à la vitesse sur le module initial est d'un facteur 4 entre $6,05 \cdot 10^{-9}$ et $3,41 \cdot 10^3 \text{ s}^{-1}$. On retrouve ensuite cette sensibilité à la vitesse par l'augmentation monotone du seuil de non-proportionnalité d'un facteur 2.

Après cette phase d'évolution naturelle en fonction de la vitesse équivalente, la pente d'évolution de la contrainte, après le seuil de non-proportionnalité, varie très fortement selon les conditions expérimentales, sans corrélation évidente avec la vitesse ou la température de l'essai. L'origine de ce phénomène est dans des processus de dissipation en jeu lors des déformations, mis en évidence par l'évolution de la température précédemment.

3.2.3 Chargements cycliques

Afin d'étudier la réponse à des sollicitations complexes, nous réalisons des chargements cycliques de charge décharge. Ces essais ont été réalisés à température ambiante pour deux vitesses de déformations, 1.10^{-3} et $1.10^{-4} s^{-1}$. Le système VidéoTraction est utilisé pour contrôler l'asservissement en vitesse de déformation constante. Nous restons à des niveaux de déformations tels que le matériau ne présente pas de localisation de la déformation dans la zone utile. Le suivi des déformations est assuré par un marquage 7 taches. Ce type de marquage permet de prédire l'amorce de localisation entre les 5 taches verticales.

Nous mettons en évidence un comportement fortement anélastique, avec l'apparition de boucle d'hystérésis large dès les faibles niveaux de déformation. Une analyse " classique " des courbes de charge-décharge nous amèneraient à imaginer un écrouissage combiné isotrope et cinématique.

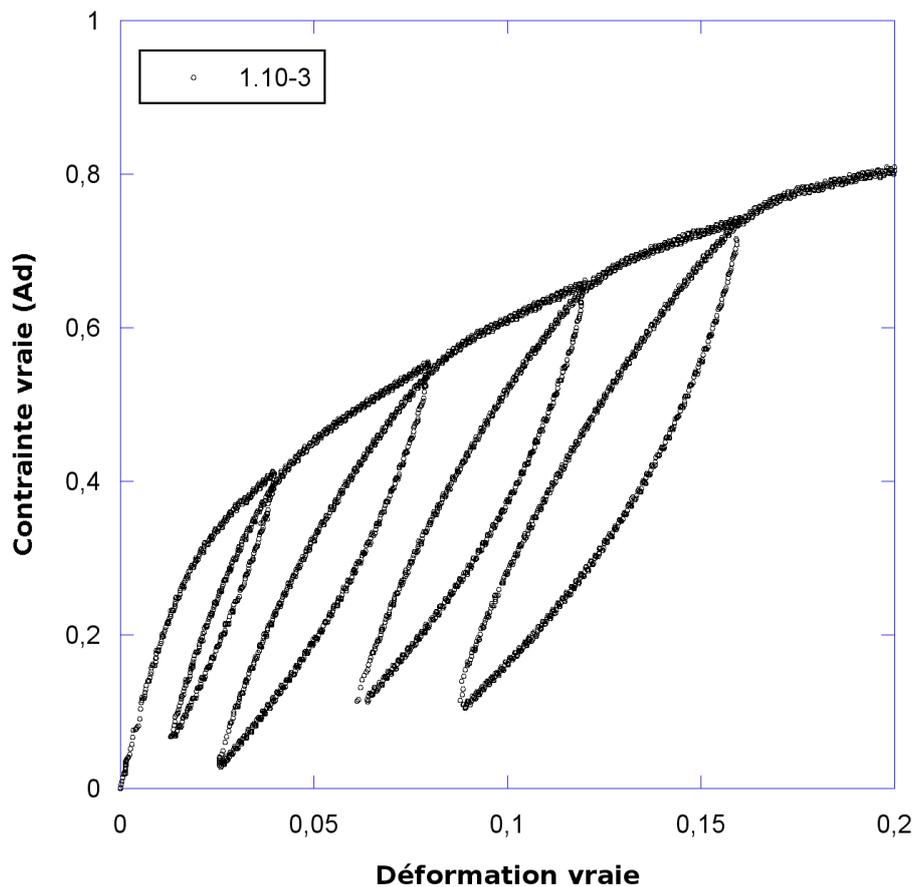


Figure 3.33 – Courbe contrainte déformation pour une sollicitation cyclique à $1.10^{-3} s^{-1}$ et $25.5^{\circ}C$

Un second type d'essais complexe réalisé est un cycle de charge décharge interrompu par des relaxations intermédiaires (figs. 3.35 à 3.38. Le niveau de déformation maximale atteint est du même ordre que les essais cycliques, pour des vitesses de déformation imposées constantes identiques.

On constate que notre matériau est le siège de processus viscoélastiques qui introduisent une

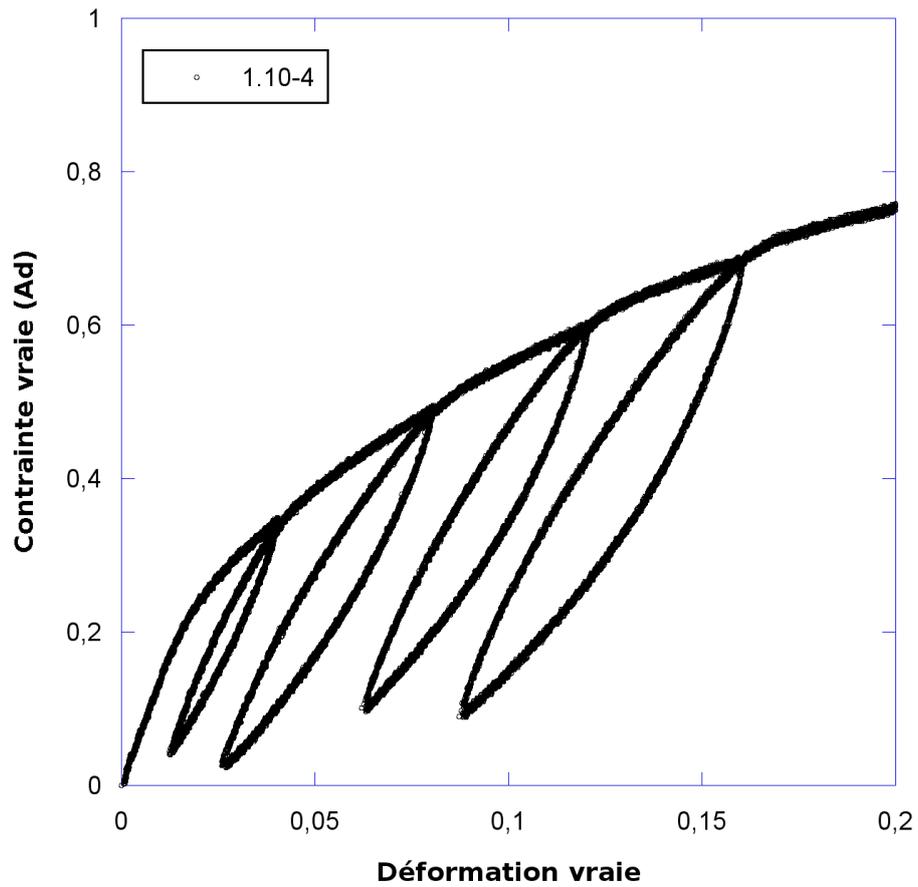


Figure 3.34 – Courbe contrainte déformation pour une sollicitation cyclique à 1.10^{-4} s^{-1} et 26°C

relaxation mais que nous ne pouvons identifier d'état à l'équilibre.

L'existence d'un hystérèse limite conduit à admettre que les processus mis en jeu doivent être de nature viscoélastiques et viscoplastiques.

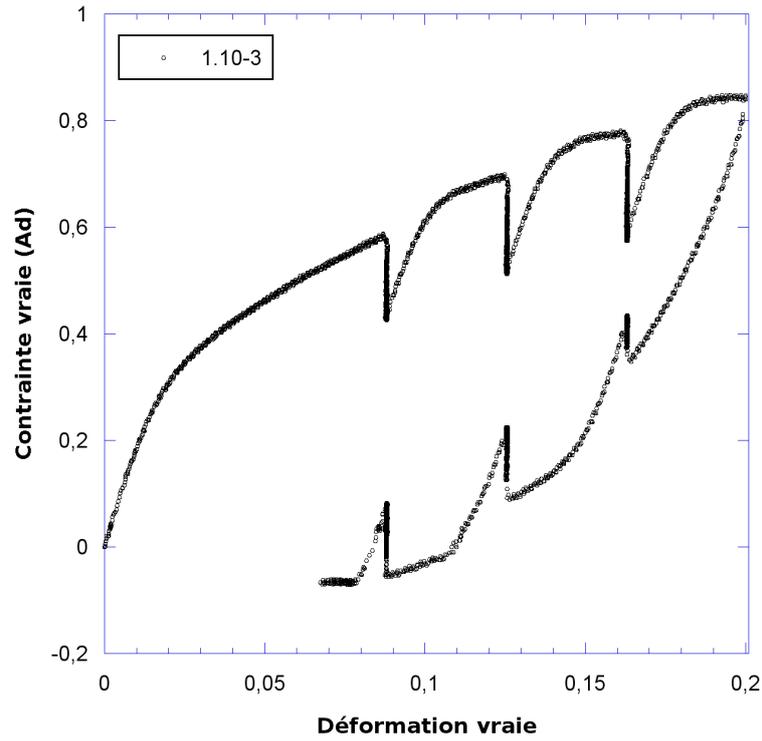


Figure 3.35 – Courbe contrainte déformation pour une charge décharge interrompue par des relaxations intermédiaires. $1.10^{-3} s^{-1}$ et $25^{\circ}C$

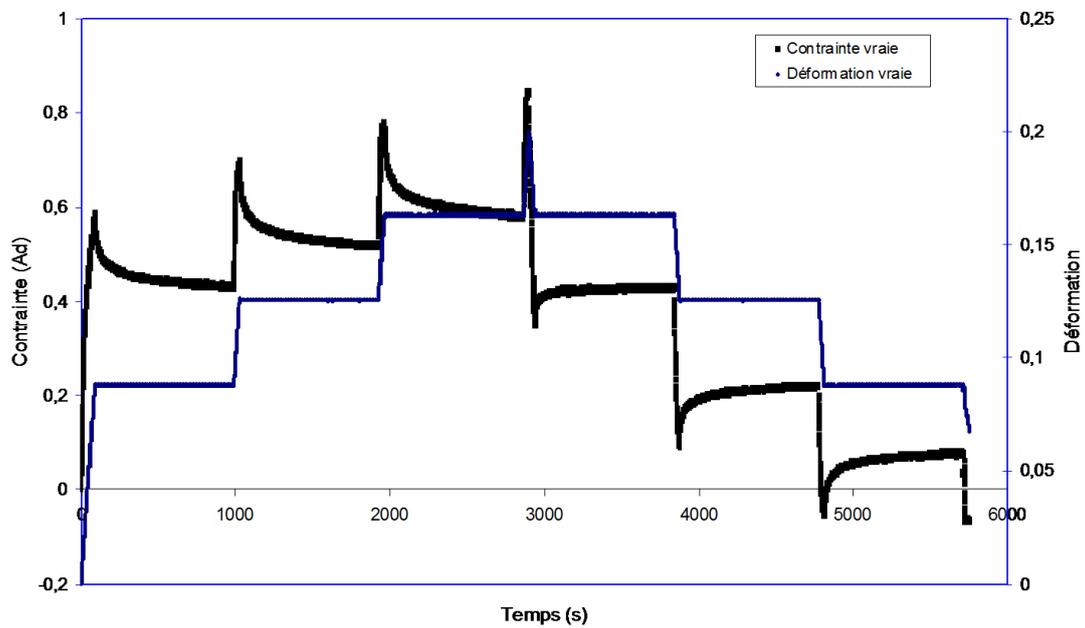


Figure 3.36 – Courbes contrainte et déformation, en fonction du temps, pour une charge décharge interrompue par des relaxations intermédiaires. $1.10^{-3} s^{-1}$ et $25^{\circ}C$

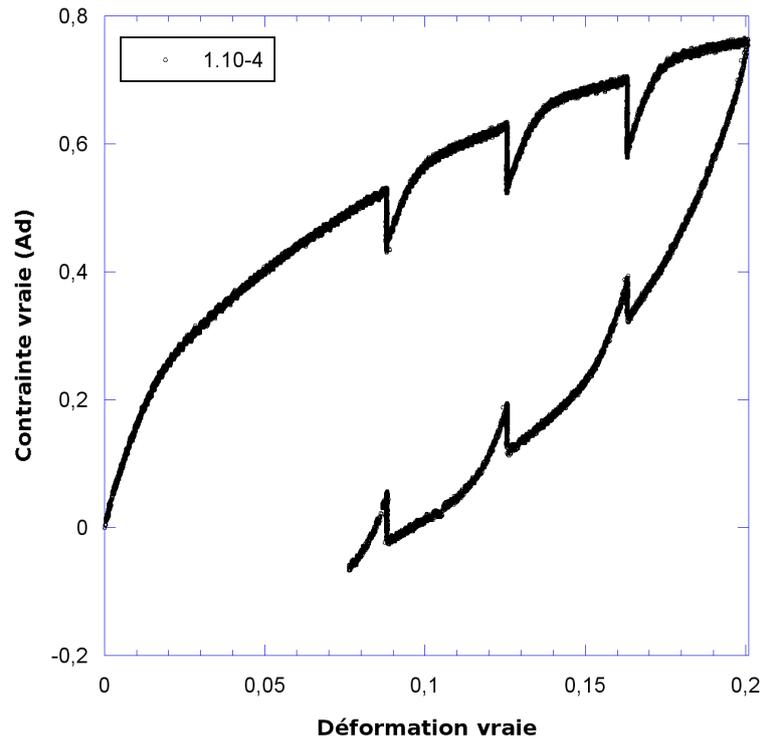


Figure 3.37 – Courbe contrainte déformation pour une charge décharge interrompue par des relaxations intermédiaires. $1.10^{-4} s^{-1}$ et $26^{\circ}C$

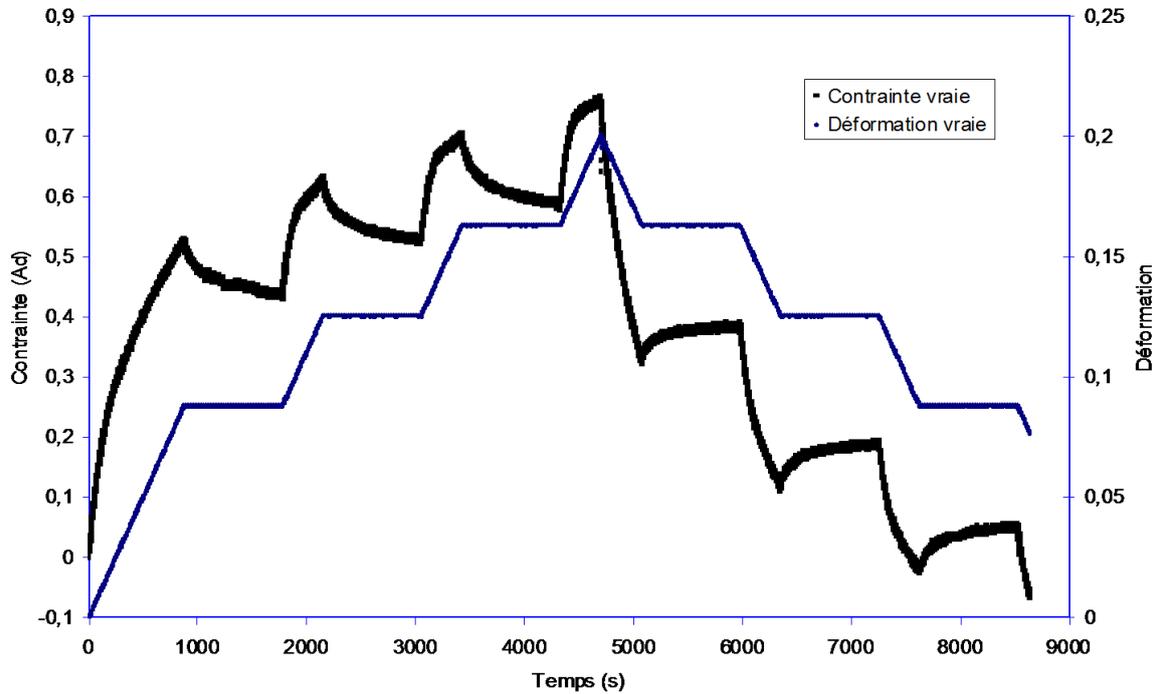


Figure 3.38 – Courbes contrainte et déformation, en fonction du temps, pour une charge décharge interrompue par des relaxations intermédiaires. $1.10^{-4} s^{-1}$ et $26^{\circ}C$

3.3 Cisaillement simple

Cette partie porte sur les essais mécaniques de type cisaillement simple mis en oeuvre. Nous présentons tout d'abord la démarche de sélection d'un essai de type Iosipescu [10, 19, 20], puis le protocole expérimental et finalement les méthodes de mesures mécaniques et thermiques mises en oeuvre.

3.3.1 Système de cisaillement simple type Iosipescu

Deux principaux dispositifs mécaniques permettent d'imposer une sollicitation proche du cisaillement simple à un échantillon. Le premier consiste à travailler sur deux ligaments simultanément (Fig. 3.39). L'essai est référencé sous la norme "ASTM D 4255/D 4255M". On vient appliquer un déplacement au centre de l'échantillon, qui est maintenu à chacune de ses extrémités par un mors fixe. Ce montage nécessite la préparation de trois séries de trous, dans les échantillons, pour éviter le glissement pendant les essais, mais qui peuvent induire une concentration de contraintes.

Le deuxième système permet de ne solliciter qu'un seul ligament de matière. On parle couramment d'essais Iosipescu, norme "ASTM D 5379". Le choix du dispositif d'essais s'est porté sur ce système pour deux raisons. Bien que dissymétrique, le montage n'entraîne ni une incertitude sur la répartition des efforts entre les deux ligaments, ni la nécessité d'une préparation complexe des échantillons. D'autre part, ce système avait été adapté aux machines d'essais du laboratoire, dans une précédente étude, avec succès [10], et donc directement utilisable.

La fig.3.40(a) présente le principe du montage. Le premier mors est accroché sur le bâti de la machine de traction. Le second est mobile sur un axe vertical. Le déplacement du mors mobile induit alors un déplacement vertical entre les deux mors, et le ligament entre les deux est soumis à une sollicitation de cisaillement. Nous avons modifié le montage en permettant la fixation du mors mobile sur la traverse de la machine d'essai. Cela annule le poids du montage sur l'éprouvette tout au long de l'essai et permet de réaliser des sollicitations cycliques en cisaillement négative et positive. La fig.3.40(b) est une photo du montage en situation, avec la présence du système d'attache sur le haut du mors mobile. Finalement, afin de bloquer à la fois les glissements de l'éprouvette dans les mors et les déplacements hors plan, deux plaques sont apposées de part et d'autre de la zone de localisation (fig.3.40(c)). L'entraxe entre les deux mors est réglable afin d'optimiser la largeur du ligament. Cette largeur optimale est définie après analyse d'essais préliminaires réalisés pour différentes valeurs.

Le protocole de prélèvement des échantillons est similaire à celui employé pour les échantillons de traction. L'usinage d'une réduction de section de forme triangulaire est préparé pour contrôler

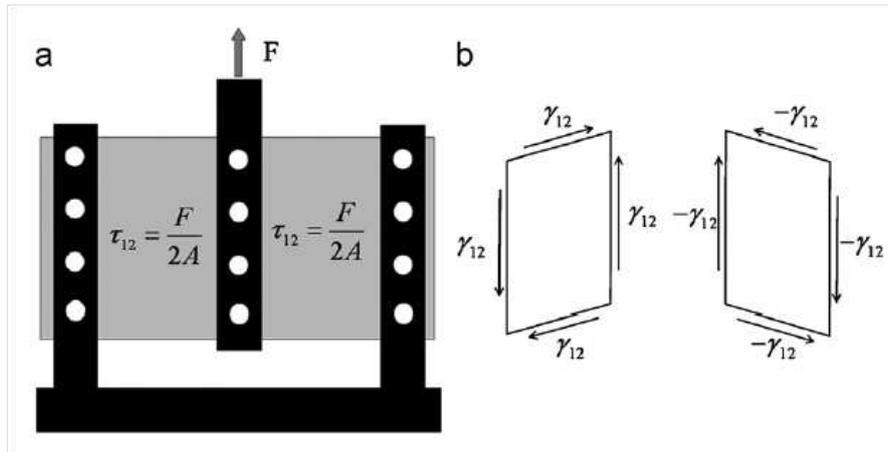
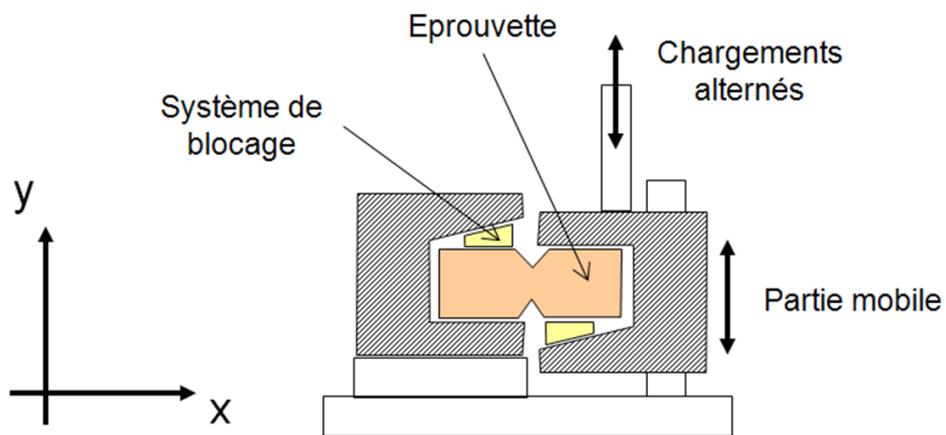


Figure 3.39 – Schéma de principe du système de cisaillement en H [19]



(a)



(b)

(c)

Figure 3.40 – Système Iosipescu : (a) Schéma de principe et repère d'origine. (b) Système in-situ, ouvert. (c) Système in-situ, fermé par les plaques empêchant les mouvements hors plan.

l'emplacement des déformations dans ce ligament ainsi créé (Fig. 3.41). Ce sont la forme, l'angle et la profondeur de cette entaille qui contrôlent la propreté de la sollicitation. Une étude bibliographique [10, 12, 19, 20, 21, 22] conduit à choisir une entaille de géométrie triangulaire, avec un angle de 90° . Ceci nous permet de nous assurer des conditions de cisaillement simple acceptables, vérifiées à l'aide de la corrélation d'images sur mouchetis aléatoire.

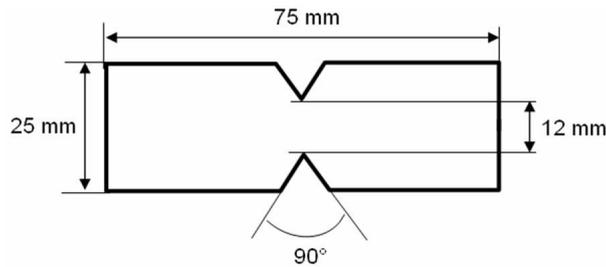


Figure 3.41 – Géométrie des échantillons de cisaillement simple

3.3.2 Mesures mécaniques et thermiques

A cause du montage, il nous est impossible de suivre les faces latérales, celles-ci étant cachées par les mors et les pièces de fixations. Seule la face avant peut donc être suivie en continu pendant l'essai. Nous avons donc une seule caméra dédiée au suivi du mouchetis pendant les sollicitations mécaniques. Les essais sont conduits à température ambiante.

Nous travaillons à vitesse de traverse constante, entre 0.1 and 8 mm/s . Dans ces conditions expérimentales, la vitesse de déformation réelle obtenue est comprise entre 3.10^{-3} et $4.10^{-1} s^{-1}$. Notons que la vitesse de traverse constante conduit également à une vitesse de déformation constante, dans ces conditions expérimentales.

Le pyromètre infrarouge, qui mesure l'évolution de la température à la surface de la zone d'étude en cours d'essai, est fixe par rapport au bâti de la machine d'essais. Il ne suit pas les mouvements du mors mobile, et donc du ligament, ce qui pourrait introduire une erreur.

Une série de mesures, réalisées conjointement avec une caméra thermique, permettent de s'assurer du contraire. Nous présentons deux captures d'images, la première à l'instant initial (Fig. 3.42(a)) et la seconde à la fin du cycle de chargement (Fig. 3.42(b)). Le cercle, au centre du ligament, représente la zone de mesure du pyromètre. On voit la localisation de l'échauffement important dans la zone du ligament, à l'aplomb des bords d'entaille. Cette augmentation de température reste localisée, sans propagation dans le reste de l'échantillon. Le suivi de ces sources de chaleur est possible en fonction du champ de déformation, via la corrélation d'images. La Fig. 3.42(c) présente une comparaison du champ

de déformation et de la cartographie thermique. Au centre, on voit la répartition des déformations principales au niveau du ligament, homogènes sur la hauteur, avec une forte augmentation de la température. Hors de cette zone de cisaillement, les déformations sont faibles, tout comme l'évolution de la température.

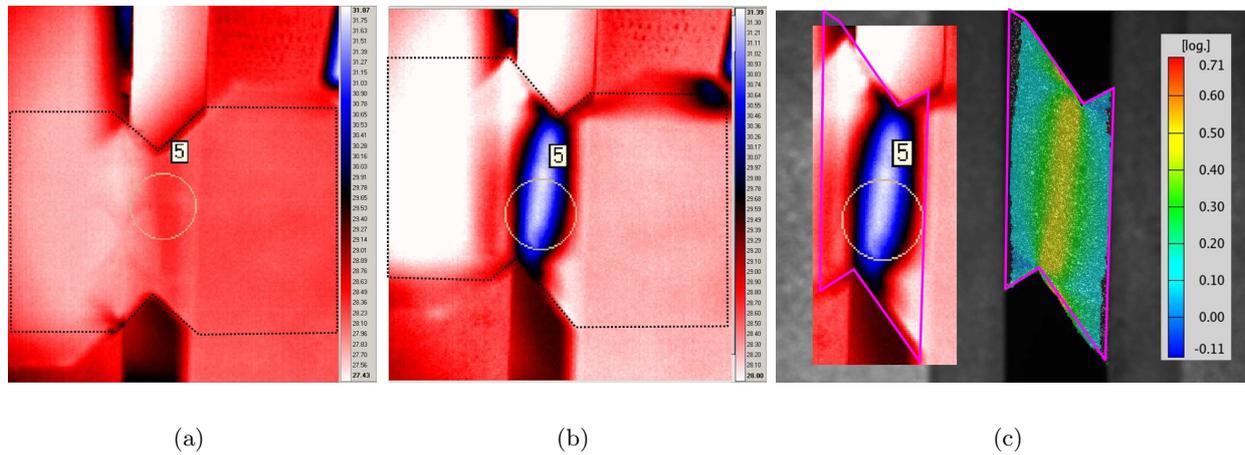


Figure 3.42 – Données thermiques. (a) Image thermique initiale - Zone circulaire équivalente au pyromètre. (b) Image thermique en fin de charge (1mm/s). (c) Image thermique et déformations principales en fin de charge (1mm/s).

La figure 3.43 présente l'évolution de la température donnée par la caméra thermique.

Notre mesure thermique par pyromètre est donc entachée d'une erreur et moyenne plusieurs zones. Elle reste toutefois proche de la réalité et permet d'estimer les échauffements. Une utilisation plus systématique de moyens de mesure de champ serait toutefois nécessaire à une étude plus précise à l'avenir.

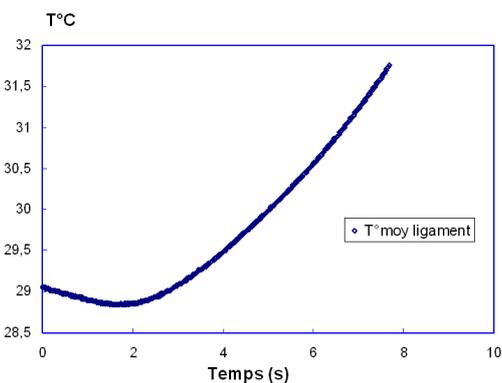


Figure 3.43 – Evolution de la température sur la zone utile donnée par la caméra thermique

3.3.3 Résultats

3.3.3.1 Validation des hypothèses de glissement simple

Le champ de déformation est obtenu par les techniques de corrélation d'images telles que présentées plus haut. Nous allons analyser les résultats afin de discuter des conditions expérimentales et de valider nos conditions de glissement simple en charge et décharge.

Tout d'abord, suivons l'évolution des déplacements transverses Y sur un plan de l'éprouvette, dans la zone utile (Fig.3.44). La ligne de référence est représentée sur chacune des figures en encart en haut, à gauche. On prend comme position de référence le bord gauche de la zone utile. La position 3mm dans le ligament correspond à la zone de localisation des déformations, elles sont localisées entre les deux entailles de 90°.

Au cours des premiers niveaux de sollicitation, les déplacements sont uniformes sur l'ensemble de la largeur du ligament, puis une localisation apparaît dans la zone de l'entaille. A la vue du gradient des déplacements, c'est au centre du ligament que la vitesse de déplacement doit être la plus importante.

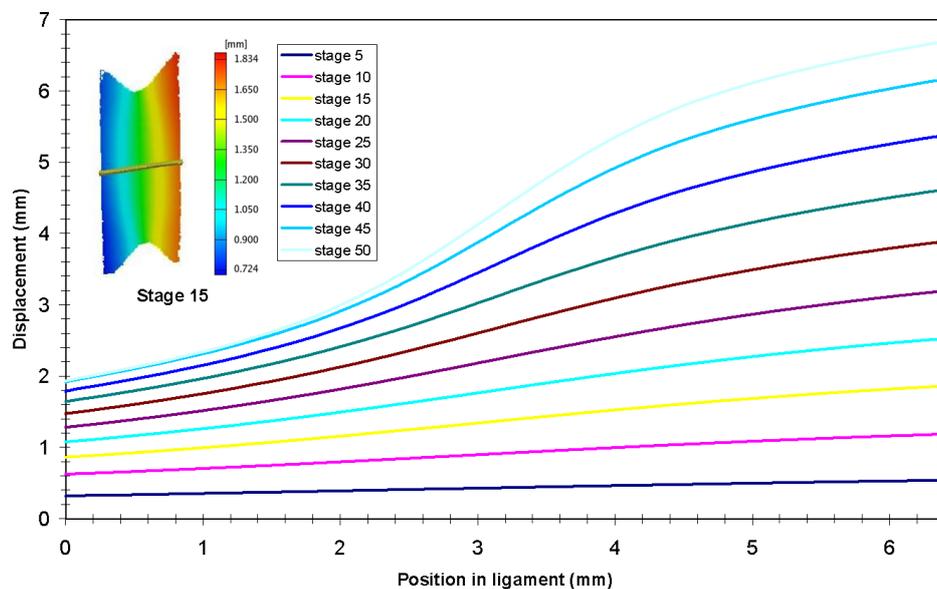
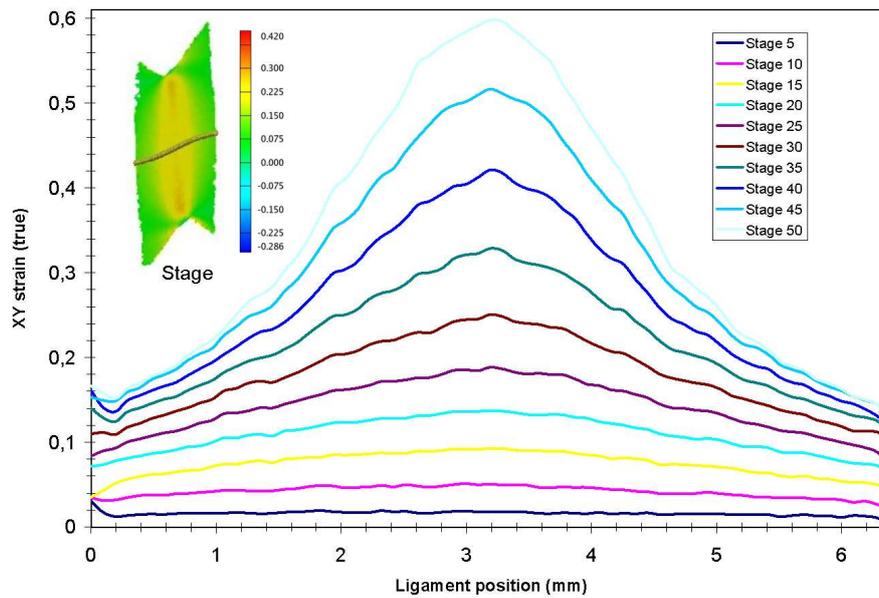
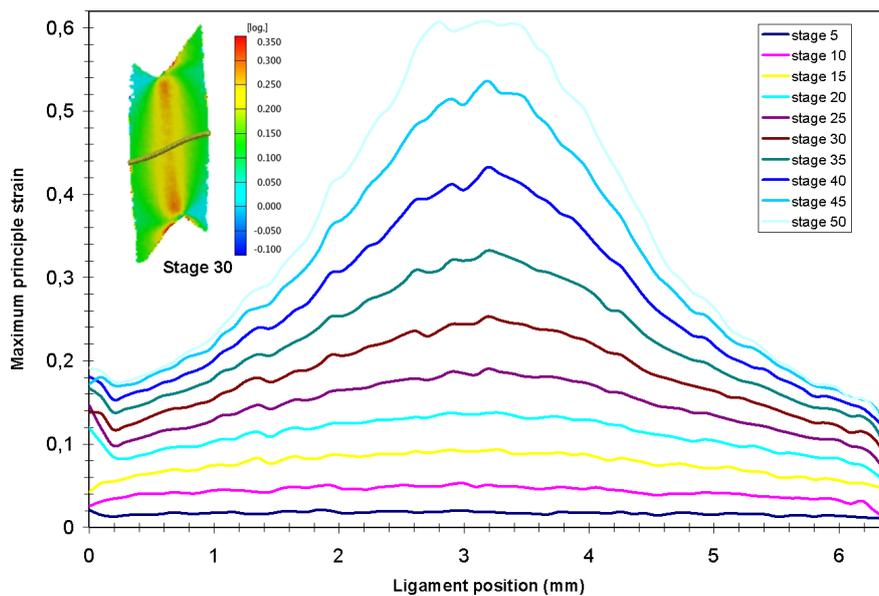


Figure 3.44 – Evolution des déplacement Y en fonction de la position dans le ligament (en phase de chargement)
Conditions : $1.10^{-3} s^{-1}$ et $25^{\circ}C$

Les fig.3.45(a) et 3.45(b) présentent l'évolution des déformations de cisaillement et de la déformation principale maximale dans le ligament. On voit apparaître une forte localisation des déformations dans la zone située entre les entailles, bien que l'ensemble de l'échantillon subisse une déformation. Nous n'avons bien évidemment pas les conditions de cisaillement simple sur tout l'échantillon, mais nous allons étudier l'état local des sollicitations dans le ligaments, afin de discuter de ces conditions. En



(a)



(b)

Figure 3.45 – Evolution de : (a) déformation XY. (b) déformations principales. en fonction de la position dans le ligament (en phase de chargement)

effet, grâce à la corrélation d'images, nous avons simplement besoin de localiser une zone préférentielle de cisaillement simple pour valider nos essais. Seule la zone d'intérêt serait alors utilisée pour l'exploitation de nos essais mécaniques.

La fig.3.46(a) présente l'angle de cisaillement, à la fin du chargement positif. Pour aider à la compréhension, nous représentons en pointillés les contours des éprouvettes. La valeur de l'angle de

cisaillement est hétérogène dans la largeur, et est comprise entre 10 et 50°. Nous avons un angle maximum de cisaillement dans la zone d'entaille. On peut considérer une répartition homogène de cet angle dans la hauteur, excepté sur les bords de l'entaille.

Nous faisons les mêmes remarques sur les déformations principales maximales (Fig. 3.46(b)) : une concentration des déformations sur une zone limitée en largeur, dans toute la hauteur du ligament entre les entailles.

La Fig. 3.46(c) nous donne la cartographie des déformations longitudinales, dans le sens YY. On observe une concentration des déformations en pointe d'entaille, d'environ 0,2 à déformation maximale. Hors de ces zones de concentration, les déformations sont quasi nulles. La Fig. 3.46(d) présente la cartographie des déformations transverses, dans le sens XX. On observe également une concentration des déformations en pointe d'entaille du même ordre que la figure précédente, environ 0,2. Entre les entailles, dans la zone d'intérêt, on observe une déformation homogène, non nulle, d'environ 0,1, pour un cisaillement de 0,6.

La cartographie peut aussi être réalisée en phase de cisaillement négative. La Fig 3.47(a) présente un angle de cisaillement homogène dans la zone utile, puis une forte hétérogénéité dans le sens transverse. Entre les zones d'entaille, l'angle est de 30° et devient rapidement nul vers les extrémités de l'éprouvette. Egalement, on retrouve une concentration des déformations principales (fig. 3.47(b)), l'existence de déformations longitudinales nulles hors pointe d'entaille (fig. 3.47(c)), et de faible elongation due aux déformations transverses (fig. 3.47(d)), est observée.

Nous mettons donc en évidence la possible coexistence de cisaillement et de traction dans nos essais. On ne peut pas totalement exclure des artefacts liés à des mouvements hors plan si le matériau était le siège de cavitations qui induiraient un gonflement du ligament. Ce gonflement n'a toutefois pas été mis en évidence et reste peu probable compte tenu de l'ensemble de nos observations en traction.

Pour conclure, l'existence de déformations transverse et longitudinale non nulles implique une sollicitation qui n'est pas rigoureusement du glissement simple. Par contre, les faibles niveaux de déformation transverse par rapport aux déformations de cisaillement, et l'absence de déformations longitudinales, hormis aux bords d'entaille, nous permet d'accepter les hypothèses de glissement simple, dans la zone d'intérêt, localisée entre les entailles.

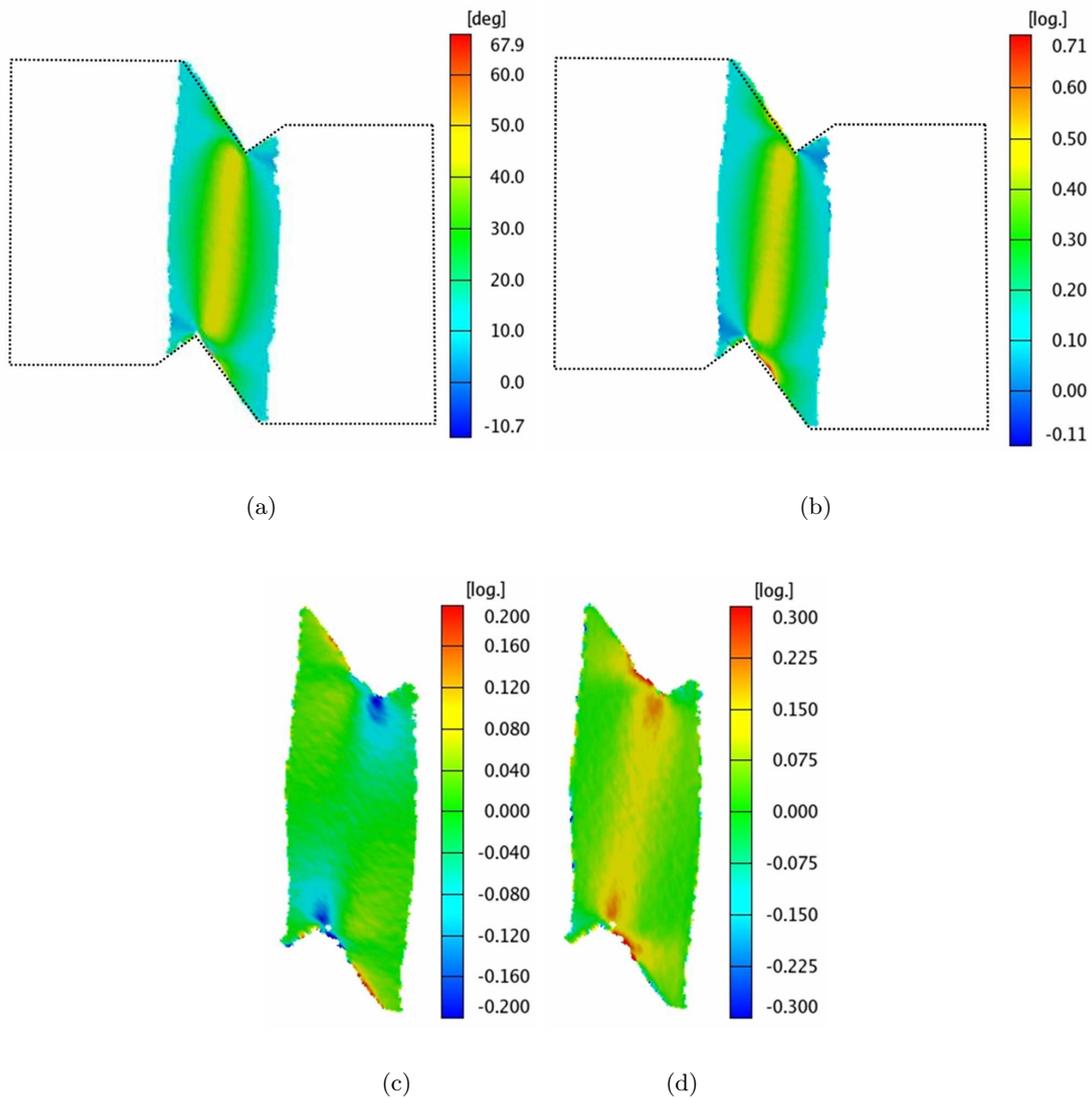


Figure 3.46 – Cartographie des déformations (1mm/s) pour : (a) Angle de cisaillement. (b) Déformations principales. (c) Déformations longitudinales YY. (d) Déformations transverses XX.

3.3.3.2 Sensibilité à la vitesse de déformation équivalente

La réponse mécanique est déterminée dans la zone de localisation, en prenant la moyenne de la déformation dans le ligament, bords exclus, avec l'hypothèse d'effets dynamiques nuls sur la force et homogénéité de la déformation dans l'épaisseur. On exprime, alors, directement la contrainte σ_{xy} de cisaillement simple selon la géométrie de l'essai :

$$\sigma_{xy} = \frac{F}{AB.h}$$

Avec AB la longueur du ligament cisailé et h l'épaisseur de l'échantillon.

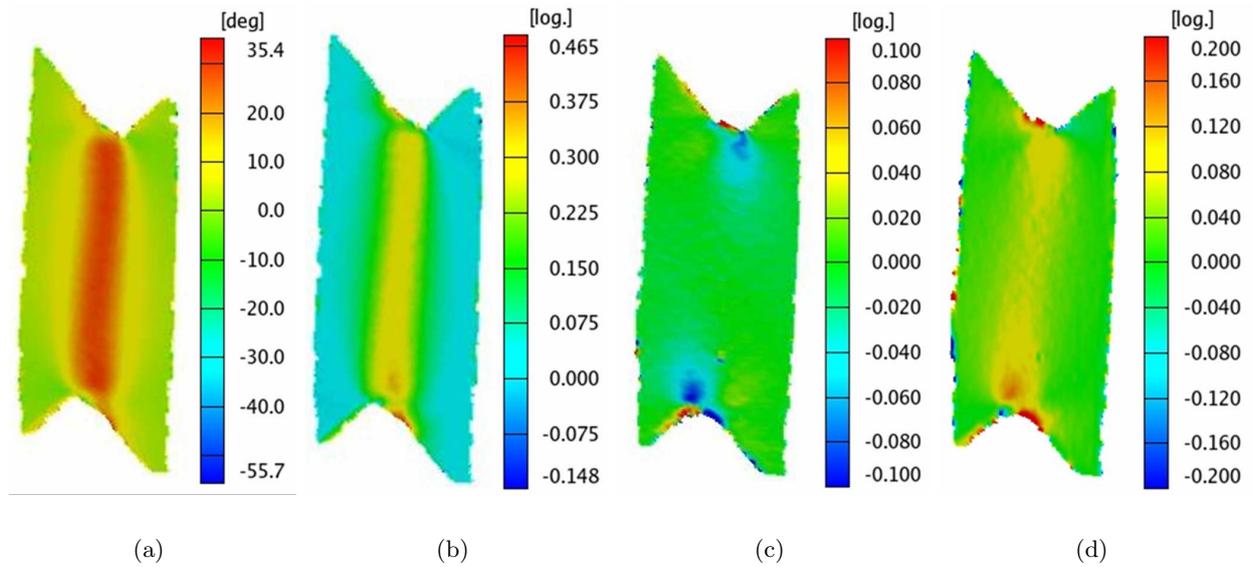


Figure 3.47 – Cartographie en décharge (1mm/s) : (a) Angle de cisaillement. (b) Déformations principales. (c) Déformations longitudinales. (d) Déformations transverses.

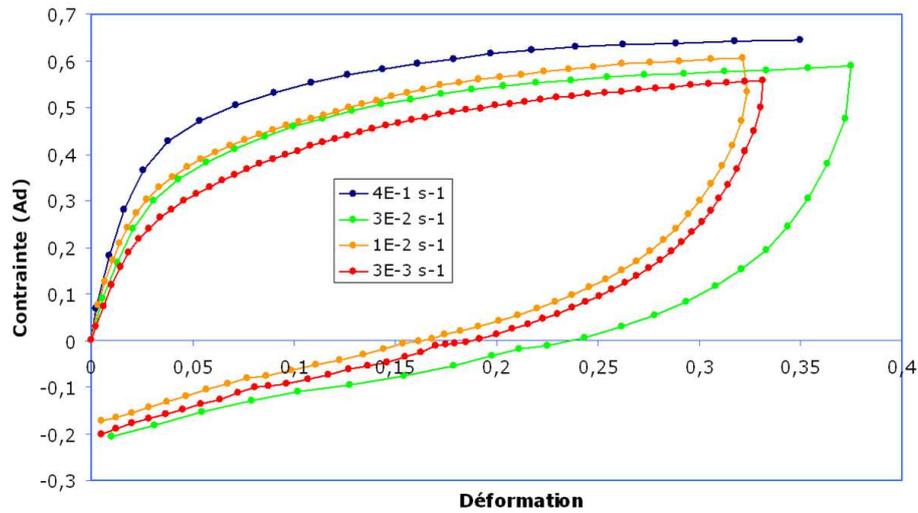
L'évolution de la contrainte de cisaillement, en fonction de la déformation moyenne pour quatre vitesses de déformation, entre $3.10^{-3} s^{-1}$ et $4.10^{-1} s^{-1}$, est présentée sur la Fig. 3.48(a). Les valeurs en contraintes sont normalisées en fonction d'une contrainte σ_0 . Nous présentons l'évolution de la température Fig. 3.48(b).

On retrouve une forte sensibilité à la vitesse sur le module de cisaillement, d'un facteur 2 pour deux décades de vitesse (tableau 3.51). Le même ordre de grandeur est présent sur la limite de non-proportionnalité.

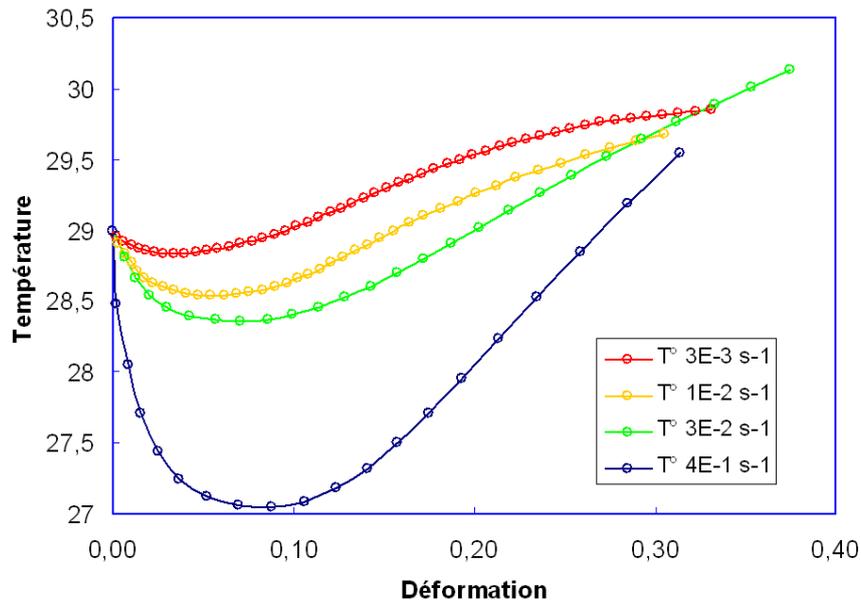
Afin de rendre compte globalement de la sensibilité à la vitesse équivalente, nous proposons, comme pour les essais de traction, d'identifier un seuil fictif (Fig. 3.49). Ce seuil empirique est la valeur en contrainte du point positionné à l'intersection des tangentes à l'origine, et de la courbe d'écroutissage en grandes déformations. On trace ensuite ce seuil en fonction de $a_T \dot{\epsilon}_{eq}$ dans la figure 3.50. On observe très facilement une sensibilité logarithmique en fonction de la vitesse équivalente à la température de référence. Notons que, comme l'ensemble des essais ont été réalisés à la même température, cette remarque est également valable si on raisonne plus couramment en vitesse de déformation.

A ce niveau nous postulons que l'analyse en vitesse équivalente reste valide en cisaillement.

L'ensemble des grandeurs sont résumées dans le tableau récapitulatif suivant (3.51) :



(a)



(b)

Figure 3.48 – Résultats en cisaillement simple : (a) Sensibilité à la vitesse de déformation $\dot{\epsilon}$. (b) Evolution de la température en charge selon $\dot{\epsilon}$

3.3.3.3 Comportement mécanique

Nous avons mis en évidence la forte dépendance à la vitesse de déformation du module de cisaillement. Egalement, l'utilisation d'un seuil fictif, nous fournit une sensibilité du matériau sur une large gamme de niveau de déformation. Mécaniquement, cela se traduit par deux gammes de comportement :

Pour les faibles vitesses de déformation, $3 \cdot 10^{-3} \text{ s}^{-1}$ et $1 \cdot 10^{-2} \text{ s}^{-1}$, les courbes d'érouissage sont similaires, avec seulement un décalage dû au niveau du seuil de non-proportionnalité. Pour les vi-

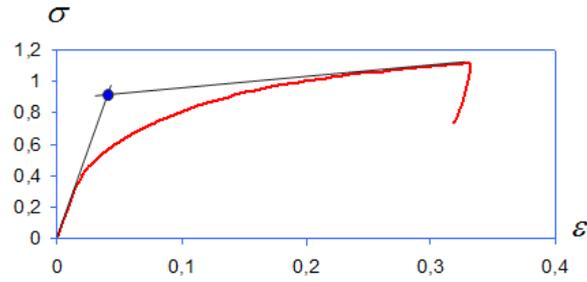
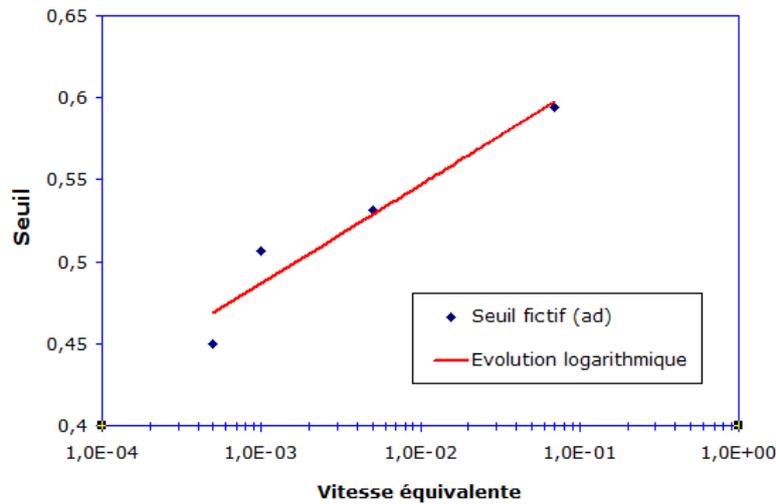


Figure 3.49 – Construction du seuil fictif

Figure 3.50 – Evolution du seuil fictif en fonction de $a_T \dot{\epsilon}_{eq}$

$\dot{\epsilon}$ (s^{-1})	Module de cisaillement (Ad)	Seuil apparent(Ad)	$a_T \dot{\epsilon}$	Seuil fictif (Ad)
3.10^{-3}	1.08	0.21	5.10^{-4}	0.45
1.10^{-2}	1.26	0.23	1.10^{-3}	0.51
3.10^{-2}	1.48	0.26	5.10^{-3}	0.53
4.10^{-1}	2.4	0.42	7.10^{-2}	0.59

Figure 3.51 – Récapitulatif des données expérimentales, en valeurs adimensionnées

tesses plus importantes, on voit apparaître une diminution progressive de la pente d'érouissage avec l'augmentation de la vitesse. Ce phénomène représente les effets d'adoucissement thermique.

L'ajout de l'analyse thermique est donc aussi indispensable, dans le cas du cisaillement, à la détermination du comportement mécanique.

A la décharge, on voit apparaître une forte composante irréversible des déformations. Pour une déformation de 0,3, la part d'anélasticité est de 50%.

3.3.3.4 Evolution thermique

Le pyromètre infrarouge, focalisé sur la zone utile, nous donne l'évolution de la température en fonction de la vitesse de déformation (Fig. 3.48(b)). On observe, tout d'abord, un refroidissement thermo-élastique, fonction de $\dot{\epsilon}$. Ensuite, les processus dissipatifs deviennent majoritaires, et nous avons une phase de réchauffement.

Deux évolutions du profil d'échauffement apparaissent : Pour les deux vitesses les plus faibles, un différentiel entre la température minimale et maximale limité à 2°, avec une saturation de l'échauffement, malgré l'augmentation de la déformation. Le second profil, pour les vitesses les plus rapides, présente, après le refroidissement élastique, une augmentation continue de la température en surface sensible à la vitesse de déformation.

La mesure de température est surfacique. Il y a donc un retard entre la température mesurée et la température à cœur, diffusant dans l'épaisseur du ligament avant d'être observable. En prenant en compte cette inertie thermique, on fait le lien avec l'évolution des pentes d'écrouissage (Fig. 3.48(a)). L'énergie dissipée sous forme de chaleur est d'autant plus importante que la vitesse de déformation équivalente est grande. La différence de profil peut s'expliquer par cette inertie thermique.

3.3.4 Conclusion

Nous avons mis en oeuvre un essai mécanique de glissement simple, type Iosipescu, non monotone, avec une instrumentation et un protocole original, nécessaires pour obtenir une meilleure précision et qualité dans nos résultats.

3.4 Bilan général comportement thermomécanique

Que ce soit en traction ou en cisaillement, nous pouvons tirer les grandes lignes du comportement matériau dans un cadre usuel.

Le comportement de notre polymère est clairement marqué de phénomènes anélastiques. Ceux-ci, d'origine viscoélastique (mis en évidence par les relaxations) ou plastiques (potentiel du fait de la non-réversibilité géométrique et de l'existence d'une hystérèse limite fig. 3.35 et 3.37), induisent un certain niveau de non-réversibilité, une évidente sensibilité à la vitesse de chargement et l'existence de phénomènes dissipatifs.

Ces derniers phénomènes, combinés aux propriétés thermiques du matériau et à sa sensibilité à la température proche de la transition vitreuse, rendent la prise en compte des couplages thermomécaniques forts indispensables.

Le comportement est non-linéaire. Il fait coexister durcissement structural et endommagement (au sens de Lemaître et Chaboche [18]), dès les faibles déformations.

Si nous interprétons les cycles fig.3.33 et 3.34 en terme d'écrouissage, nous concluons que celui-ci combine vraisemblablement une part isotrope et une part cinématique.

Le comportement n'est pas rigoureusement isochore. L'écart à l'incompressibilité dépend de la vitesse et de la température, semblant s'atténuer proche de l'état caoutchoutique.

Par contre, l'hypothèse d'isotropie transverse est acceptable, la vitesse équivalente à la température de référence est un bon marqueur des conditions de sollicitation, et l'écart à l'incompressibilité est faible.

Malgré ces dernières simplifications, le tableau que nous dressons est complexe et si nous devons développer une loi suivant les voies classiques, nous ferions apparaître de nombreux paramètres.

Nous allons tester la pertinence d'une autre voie, utilisant une approche développée au CEMEF dans le cas de polymères amorphes, qui est basée sur une modification d'un modèle hyperélastique, pour introduire une source d'anélasticité. Ce modèle est plutôt de nature visco-hyperélastique, et utilise la vitesse équivalente à la température de référence comme paramètres de contrôle. S'il a donné de bons résultats dans sa limite 1D sur les polymères amorphes [article J Appl. Polym. Sci], il n'a pas été testé dans sa forme générale, et n'a jamais été utilisé sur un polymère semi-cristallin.

CHAPITRE 4

ETAT DE L'ART SUR LA MODÉLISATION DU COMPORTEMENT THERMOMÉCANIQUE DES POLYMÈRES

CETTE partie est un état de l'art des approches employées pour la modélisation du comportement des polymères ayant retenu notre attention.

Nous présentons, en amont, le formalisme thermodynamique qui permet de poser un cadre consistant à chacune de ces approches. L'utilisation de variables internes est le moyen de poser une description formelle des processus en jeu, en respectant les lois d'équilibre, de conservation de la masse, de l'énergie et les principes de la thermodynamique.

Nous distinguons, dans la suite, deux types d'approches classées selon le niveau de description des phénomènes physiques impliqués.

Un premier, de type phénoménologique, où les auteurs s'attachent surtout à reproduire au mieux les courbes contraintes déformations, sans forcément rechercher de sens physique précis aux paramètres mis en évidence. Nous discutons ici les approches viscoélastique, viscoplastique puis hyperélastique appliquées aux polymères.

L'autre type d'approche, statistique, s'attache à introduire une origine physique à l'évolution des contraintes dans le matériau en apportant une vision plus "moléculaire" aux processus en jeu lors des déformations. L'aspect thermique peut également être introduit dans ces modélisations statistiques.

4.1 Introduction

La zone de transition vitreuse de la partie amorphe des polymères semi-cristallins, qui nous intéresse ici, est le siège de fortes sensibilités couplées aux vitesses et températures de sollicitation. Il conviendra donc de proposer le moyen de modéliser cette visco-élasticité thermodépendente.

Comme déjà signalé, le modèle choisi est plutôt de nature visco-hyperélastique, et utilise la vitesse équivalente à la température de référence comme paramètres de contrôle. Il n'a pas été testé dans sa forme générale, et n'a jamais été utilisé sur un polymère semi-cristallin. Avant de le présenter, nous allons le replacer dans le contexte des autres modèles existants.

Nous avons vérifié au chapitre 2 que l'évolution du comportement viscoélastique linéaire de notre matériau peut se faire par le paramétrage d'un modèle avec la vitesse équivalente à la température de référence $a_T \dot{\epsilon}_{eq}$.

Ce type de réflexions, où deux grandeurs peuvent être reliées par une seule observable, a déjà été mené, par exemple par Laméthe [23] entre la température et l'adhésion dans le cas de thermoplastiques semi-cristallins, ou par Miri et al [16] pour relier vitesse et taux d'humidité dans un PA 6.

En ce qui concerne le comportement des polymères solides, d'autres études ont démontré la faisabilité d'une extension aux grandes déformations pour les polymères amorphes dans leur gamme de thermoformage ou de soufflage. Citons les cas du polystyrène choc (HIPS) [5, 24], du PET [6, 25, 26] ou encore du PMMA [27], où il apparaît que la vitesse équivalente à la température de référence telle qu'estimée en DMA serait un bon paramètre pour un modèle de comportement.

Toutefois, cette extension aux grandes déformations nécessite encore la mise en place de modèles généraux et rigoureux. Un certain nombre d'études présente déjà les implications formelles (mécaniques et mathématiques) représentées par le comportement viscoélastique et/ou viscoplastique ([28],[29],[30],[31]) rencontré dans cette gamme de sollicitations, sur lesquelles nous pourrions nous appuyer pour les formulations en grandes déformations, dans un cadre thermodynamique formel.

Une analyse complète devrait, malgré tout, aller au-delà des aspects formels ou d'une réflexion sur la transition α de la partie amorphe. Les processus mis en jeu dans la partie cristalline introduisent

leurs effets propres. Ainsi, Pawlak et al [32] suggèrent-ils, sur la base d'analyses réalisées par AFM, SAXS (Fig. 4.1), DSC et de mesures de densité (Tableau 4.I), que la phase cristalline intervient très tôt dans la déformation, avec des processus variables (Fig. 4.2) : cavitation (craquelure ou autre), bande de cisaillement, activation de systèmes de glissement, texturation du cristal, désenchevêtrement de l'amorphe.

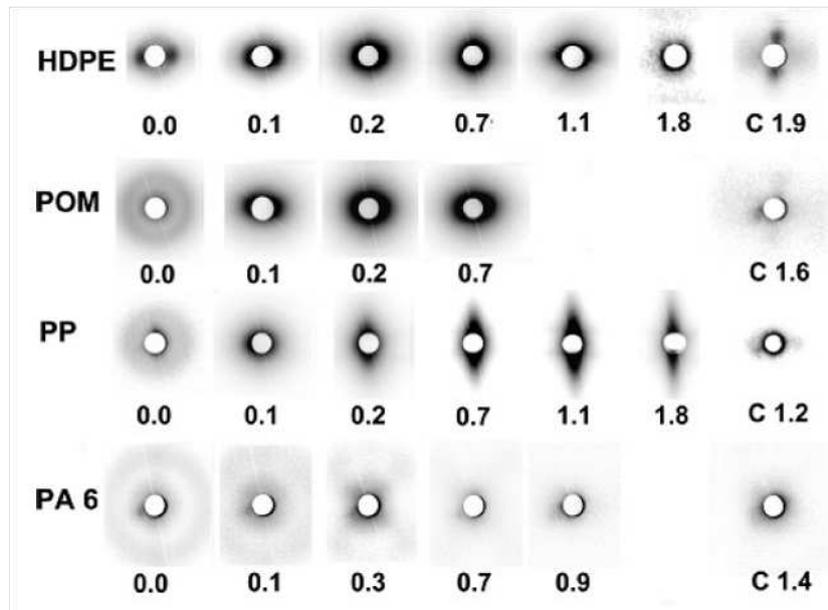


Figure 4.1 – Résultats de SAXS 2-D pour les échantillons sains et déformés en traction et compression (C). Le sens de traction et la direction de déformation en compression sont horizontales [32]

Table 3. Density Changes in Tested Materials

polymer	initial density [g/cm ³]	true strain in drawing	density after tensile test [g/cm ³]	true strain in channel die compression	density after compression [g/cm ³]
POM	1.407	0.8	1.361	1.7	1.402
PA6	1.143	0.9	1.136	1.4	1.137
PP	0.909	1.8	0.861	1.2	0.895
HDPE	0.957	1.9	0.872	2.0	0.949
EOC	0.905	1.7	0.910	1.4	0.905
LDPE Lupolen 1840D	0.917	0.7	0.918	1.6	0.916
LDPE Lupolen 2420H	0.921	1.0	0.922	2.0	0.922
LDPE Malen E	0.921	0.8	0.922	1.5	0.920

Table 4. Thermal Properties of Oriented Samples Studied by DSC

	enthalpy of melting [J/g]			temperature of melting [°C]		
	initial	stretched	compressed	initial	stretched	compressed
POM	166.4	166.6	167.2	165.9	166.7	167.0
PA6	67.2	71.0	67.9	222.6	223.5	223.0
PP	100.6	105.5	85.2	164.2	164.7	165.4
HDPE	194.6	199.2	189.9	134.9	137.8	137.5
EOC	90.1	93.8	96.5	99.7	99.8	99.8
LDPE Lupolen 1840D	110.0	116.6	109.0	108.8	109.4	109.6
LDPE Lupolen 2420H	122.8	123.4	126.1	112.4	113.4	112.8
LDPE Malen E	126.9	122.6	129.6	111.2	112.4	113.5

Tableau 4.I – En haut : variation de densité pour différents polymères en traction et compression. En bas : variation des propriétés thermiques obtenues par DSC.[32]

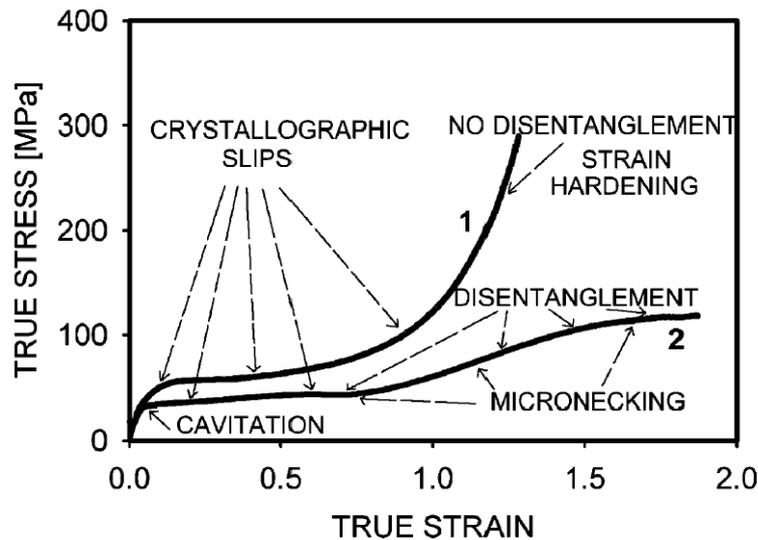


Figure 4.2 – Mécanismes associés aux déformations plastiques sur l'exemple d'un polypropylène. Courbe 1 : compression et courbe 2 : traction.[32]

A cela, s'ajoutent les effets thermiques dus aux dissipations mécaniques ([33, 34, 35, 36]) qui peuvent induire un comportement composite entre le centre des éprouvettes qui s'échauffent et les parois où les échanges thermiques sont facilités. Outre la perte de l'homogénéité thermique, on peut, dans certains cas, craindre des modifications de microstructure selon l'évolution de la température.

Dans cette étude, nous ne souhaitons pas modéliser l'ensemble des mécanismes dans une approche micro-mécanique. Nous nous arrêterons sur des approches macroscopiques physiquement basées, mais qui ne s'appuient pas sur une description complète de la microstructure. Par contre, nous souhaitons un formalisme général et applicable dans une modélisation 3D. Nous souhaitons aussi réduire le nombre de paramètres rhéologiques, et adopterons une démarche progressive où le modèle ne sera enrichi que si cela est nécessaire.

Il ressort de cette problématique trois points dont on étudiera comment ils sont traités dans la bibliographie :

- Comment le comportement mécanique d'un polymère semi-cristallin dans la zone de transition α est-il modélisé ?
- Comment les effets thermiques, et plus généralement, comment le couplage thermomécanique faible et fort, sont-ils pris en compte dans les formalismes ?
- Comment les processus physiques mécaniques et thermiques mis en jeu sont-ils pris en compte dans un formalisme thermodynamique couplé ?

Cette revue bibliographique est décomposée en trois parties.

Une première partie introduit le concept de formalisme thermodynamique dans le cadre des grandes transformations, qui sera notre cadre de travail. Le cas particulier des petites déformations est détaillé dans [18].

Puis nous avons deux parties détaillant différentes approches de modélisation issue de la bibliographie qui peuvent s'intégrer dans ce cadre. Une première catégorie présente des approches phénoménologiques. La deuxième catégorie présente les approches s'appuyant partiellement ou totalement sur les outils de la statistique de chaîne qui nous apparaissent prometteurs.

4.2 Thermodynamique en grandes transformations

L'utilisation du formalisme de la thermodynamique des processus irréversibles s'avère un compromis couramment employé, même si non exclusif, en mécanique des milieux continus.

Appliqué à la description du comportement des matériaux, il offre un cadre à la fois rigoureux et ouvert à la prise en compte des phénomènes physiques. Ce formalisme respecte les lois d'équilibres, de conservation de la masse et de l'énergie, ainsi que le second principe de la thermodynamique. Nous en rappelons ici les grandes lignes.

4.2.1 Énoncés fondamentaux de la thermodynamique

4.2.1.1 Premier principe de la thermodynamique

La conservation de l'énergie, dans un domaine \mathcal{D} (initialement \mathcal{D}_0), à l'instant t , de frontière $\partial\mathcal{D}$ (initialement $\partial\mathcal{D}_0$) intérieur au milieu matériel \mathcal{S} étudié, exprimant la possibilité de transformation d'énergie mécanique en chaleur, est donnée par l'équation suivante :

$$\frac{d}{dt} \int_{\mathcal{D}} \rho e \, dV = \int_{\mathcal{D}} \boldsymbol{\sigma} : \mathbb{D} \, dV + \int_{\mathcal{D}} r \, dV - \int_{\mathcal{D}} \operatorname{div} \vec{q} \, dV \quad \forall \mathcal{D} \quad (4.1)$$

Avec : ρ la masse volumique, e l'énergie, $\boldsymbol{\sigma}$ le tenseur de contrainte, \mathbb{D} le tenseur du taux de déformation, r les sources de chaleur extérieures et \vec{q} le flux de chaleur.

Cette équation de conservation se ramène localement à l'expression suivante, qui est le premier principe de la thermodynamique, dans le cas d'une transformation en grandes déformations :

$$\rho \frac{de}{dt} = \boldsymbol{\sigma} : \mathbb{D} + r - \operatorname{div} \vec{q} \quad (4.2)$$

4.2.1.2 Second principe de la thermodynamique

Le second principe introduit les notions de température, d'entropie s et permet de faire la distinction entre transformations réversibles et irréversibles. Il postule que la production d'entropie s dans un domaine \mathcal{D} est toujours supérieure ou égale au taux de chaleur reçu divisé par la température du domaine \mathcal{D} , soit l'expression suivante du second principe de la thermodynamique :

$$\int_{\mathcal{D}} \left(\rho \frac{ds}{dt} + \operatorname{div} \frac{\vec{q}}{T} - \frac{r}{T} \right) dV \geq 0 \quad (4.3)$$

Localement, le second principe prend la forme de l'inégalité suivante, exprimant le taux de pro-

duction irréversible d'entropie s :

$$\rho \frac{ds}{dt} + \text{div} \frac{\vec{q}}{T} - \frac{r}{T} \geq 0 \quad (4.4)$$

4.2.1.3 Inégalité de Clausius-Duhem

L'inégalité fondamentale de Clausius-Duhem contient le premier principe (eq. 4.2) et le second principe (eq. 4.4) de la thermodynamique, et prend la forme suivante après simplification :

$$\exists \phi \geq 0 \text{ tel que : } \phi = \rho \left(T \frac{ds}{dt} - \frac{de}{dt} \right) + \boldsymbol{\sigma} : \mathbb{D} - \vec{q} \cdot \frac{\overrightarrow{\text{grad}} T}{T} \geq 0 \quad (4.5)$$

Avec ϕ la dissipation totale.

En introduisant l'énergie libre spécifique $\Psi = e - Ts$, on a finalement l'expression de l'inégalité de Clausius-Duhem en grandes déformations :

$$\phi = \boldsymbol{\sigma} : \mathbb{D} - \rho \left(\frac{d\Psi}{dt} + s \frac{dT}{dt} \right) - \vec{q} \cdot \frac{\overrightarrow{\text{grad}} T}{T} \geq 0 \quad (4.6)$$

On appelle ϕ la dissipation totale, qui se décompose en une dissipation intrinsèque ϕ_{int} et une dissipation thermique ϕ_{th} :

$$\phi_{int} = \boldsymbol{\sigma} : \mathbb{D} - \rho \left(\frac{d\Psi}{dt} + s \frac{dT}{dt} \right) \geq 0 \quad (4.7)$$

$$\phi_{th} = -\vec{q} \cdot \frac{\overrightarrow{\text{grad}} T}{T} \geq 0 \quad (4.8)$$

Dans la suite, l'évolution de l'état thermodynamique de notre milieu sera admissible, si et seulement si, à chaque instant de l'évolution, l'inégalité de Clausius-Duhem $\phi_{int} + \phi_{th} = \phi \geq 0$ reste satisfaite.

4.2.2 Energie libre

On a introduit précédemment l'énergie libre spécifique Ψ . Pour tenir compte des dilatations du corps \mathcal{S} et afin de faciliter les calculs, il est couramment introduit la densité volumique d'énergie libre lagrangienne w , définie par :

$$w = \rho_0 \Psi = J \rho \Psi \quad (4.9)$$

Avec $J = \frac{\rho}{\rho_0}$.

La dérivée de l'énergie libre peut s'écrire alors sous la relation suivante :

$$\rho \frac{d\Psi}{dt} = \frac{1}{J} \rho_0 \dot{\Psi} = \frac{1}{J} \dot{w} \quad (4.10)$$

Et l'éq. 4.10 dans 4.7 donne l'expression générale suivante de la dissipation intrinsèque :

$$\phi_{int} = \boldsymbol{\sigma} : \mathbb{D} - \frac{1}{J} \left(\dot{w} + \rho_0 s \dot{T} \right) \geq 0 \quad (4.11)$$

4.2.3 Invariants de déformation

L'énergie doit dépendre de l'état du système et tout naturellement de sa déformation. Le problème se pose du choix d'un descripteur pour celle-ci. On cherche à se placer dans les conditions où la réponse du matériau est invariante par tout changement de référentiel lié à la matière. L'énergie libre devient alors fonction des invariants du tenseur des déformations.

En posant x le mouvement d'une particule dans l'espace, avec \mathbf{X} le vecteur direction et t le temps :

$$x = x(\mathbf{X}, t) \quad (4.12)$$

Le gradient de déformation \mathbf{F} est donné sous la forme suivante [37] :

$$\mathbf{F} = \frac{\partial x}{\partial \mathbf{X}} \quad (4.13)$$

De nombreuses mesures de déformations existent. Les plus couramment utilisées sont :

- Le tenseur de Cauchy-Green droit relatif exprimé dans la configuration initiale :

$$\mathbb{C} = \mathbf{F}^T \mathbf{F} \quad (4.14)$$

- Le tenseur de Cauchy-Green gauche relatif exprimé dans la configuration actuelle :

$$\mathbb{B} = \mathbf{F} \mathbf{F}^T \quad (4.15)$$

L'identité de Cayley-Hamilton traduit le fait que tout tenseur d'ordre deux est solution de son poly-

nôme caractéristique. Ses coefficients sont les invariants de ce tenseur, soit :

$$-\mathbb{C}^3 + I_1\mathbb{C}^2 - I_2\mathbb{C} + I_3 = 0 \quad (4.16)$$

Où :

$$I_1 = \text{tr}(\mathbb{C}) = \text{tr}(\mathbb{B}) \quad (4.17)$$

$$I_2 = \frac{1}{2} (I_1^2 - \text{tr}(\mathbb{C}^2)) = \frac{1}{2} (I_1^2 - \text{tr}(\mathbb{B}^2)) \quad (4.18)$$

$$I_3 = \det(\mathbb{C}) = \det(\mathbb{B}) \quad (4.19)$$

Les dérivées de ces invariants, en fonction de la déformation sont :

$$\frac{\partial I_1}{\partial \mathbb{C}} = \mathbb{I} \quad (4.20)$$

$$\frac{\partial I_2}{\partial \mathbb{C}} = I_1\mathbb{I} - \mathbb{C} \quad (4.21)$$

$$\frac{\partial I_3}{\partial \mathbb{C}} = I_3\mathbb{C}^{-1} \quad (4.22)$$

Avec \mathbb{I} le tenseur identité.

Les tenseurs de déformation \mathbb{C} et \mathbb{B} sont diagonalisables sous la forme du carré du tenseur des allongements principaux, $\lambda_i, i = 1, 3$. Invariants et grandeurs principales sont reliées par :

$$I_1 = \lambda_1^2 + \lambda_2^2 + \lambda_3^2 \quad (4.23)$$

$$I_2 = \lambda_1^2\lambda_2^2 + \lambda_2^2\lambda_3^2 + \lambda_3^2\lambda_1^2 \quad (4.24)$$

$$I_3 = \lambda_1^2\lambda_2^2\lambda_3^2 \quad (4.25)$$

4.2.4 Expression du taux de déformation

Le gradient de la vitesse de déformation, v , est usuellement exprimé [37] sous forme tensorielle par :

$$\mathbf{l} = \frac{\partial v(\mathbf{X}, t)}{\partial \mathbf{X}} \quad (4.26)$$

L'écriture suivante de la dérivée du gradient de transformation 4.13 introduit la notion de gradient spatial :

$$\dot{\mathbf{F}} = \frac{\partial v}{\partial \mathbf{X}} = \frac{\partial v}{\partial x} \frac{\partial x}{\partial \mathbf{X}} = \mathbf{l}\mathbf{F} \quad (4.27)$$

L'expression du gradient spatial prend la forme suivante :

$$\boldsymbol{l} = \dot{\boldsymbol{F}} \boldsymbol{F}^{-1} \quad (4.28)$$

Le taux de déformation est alors défini par [37] :

$$\mathbb{D} = \frac{1}{2} (\boldsymbol{l} + \boldsymbol{l}^T) \quad (4.29)$$

4.2.5 Cas particulier de la décomposition des déformations

Dans le cadre d'un modèle de comportement visco-hyperélastique, une décomposition multiplicative usuelle de la déformation est utilisée, en une part élastique, instantanée, indicée e , et une part anélastique, dépendante explicitement du temps, indicée v :

$$\boldsymbol{F} = \boldsymbol{F}_e \boldsymbol{F}_v \quad (4.30)$$

L'expression du gradient spatial de vitesse introduit eq. 4.28 prend la forme suivante avec la décomposition multiplicative de la déformation :

$$\boldsymbol{l} = \overline{\dot{\boldsymbol{F}}_e \boldsymbol{F}_v} (\boldsymbol{F}_e \boldsymbol{F}_v)^{-1} \quad (4.31)$$

Avec :

$$\overline{\dot{\boldsymbol{F}}_e \boldsymbol{F}_v} = \dot{\boldsymbol{F}}_e \boldsymbol{F}_v + \boldsymbol{F}_e \dot{\boldsymbol{F}}_v \quad (4.32)$$

$$(\boldsymbol{F}_e \boldsymbol{F}_v)^{-1} = \boldsymbol{F}_v^{-1} \boldsymbol{F}_e^{-1} \quad (4.33)$$

Soit l'expression du gradient spatial :

$$\boldsymbol{l} = \left(\dot{\boldsymbol{F}}_e \boldsymbol{F}_v + \boldsymbol{F}_e \dot{\boldsymbol{F}}_v \right) (\boldsymbol{F}_v^{-1} \boldsymbol{F}_e^{-1}) \quad (4.34)$$

$$= \dot{\boldsymbol{F}}_e \boldsymbol{F}_e^{-1} + \boldsymbol{F}_e \dot{\boldsymbol{F}}_v \boldsymbol{F}_v^{-1} \boldsymbol{F}_e^{-1} \quad (4.35)$$

$$\boldsymbol{l} = \boldsymbol{l}_e + \boldsymbol{F}_e \boldsymbol{l}_v \boldsymbol{F}_e^{-1} \quad (4.36)$$

Suivant la définition du taux de déformation donné par l'eq.4.29, nous obtenons l'expression finale suivante :

$$\mathbb{D} = \mathbb{D}_e + \frac{1}{2} (\boldsymbol{F}_e \boldsymbol{l}_v \boldsymbol{F}_e^{-1} + \boldsymbol{F}_e^{-T} \boldsymbol{l}_v^{-T} \boldsymbol{F}_e^T) \quad (4.37)$$

Dans ce cadre visco-élastique, la densité d'énergie W est le descripteur de l'énergie élastique stockée dans le matériau, en fonction de son état de contrainte thermomécanique. L'état de contrainte mécanique est décrit par les trois invariants du tenseur de déformation eq. 4.17 et suivantes.

Suivant cette décomposition des déformations, l'énergie élastique est alors par définition [38] décrite par le tenseur des déformations élastiques \mathbb{C}_e . Plus précisément, des considérations d'objectivité imposent que l'énergie élastique soit décrite par les invariants des déformations élastiques I_1^e, I_2^e, I_3^e .

Avec :

$$I_1^e = \text{tr}(\mathbb{C}_e) = \text{tr}(\mathbb{B}_e) \quad (4.38)$$

$$I_2^e = \frac{1}{2} (I_1^{e2} - \text{tr}(\mathbb{C}_e^2)) = \frac{1}{2} (I_1^{e2} - \text{tr}(\mathbb{B}_e^2)) \quad (4.39)$$

$$I_3^e = \det(\mathbb{C}_e) = \det(\mathbb{B}_e) \quad (4.40)$$

Les tenseurs de déformation \mathbb{C}_e et \mathbb{B}_e sont diagonalisables sous la forme du carré du tenseur des allongements principaux, $\lambda_i^e, i = 1, 3$. Invariants élastiques et grandeurs principales élastiques sont reliées par :

$$I_1^e = \lambda_1^{e2} + \lambda_2^{e2} + \lambda_3^{e2} \quad (4.41)$$

$$I_2^e = \lambda_1^{e2}\lambda_2^{e2} + \lambda_2^{e2}\lambda_3^{e2} + \lambda_3^{e2}\lambda_1^{e2} \quad (4.42)$$

$$I_3^e = \lambda_1^{e2}\lambda_2^{e2}\lambda_3^{e2} \quad (4.43)$$

4.2.6 Equations constitutives

En admettant que la densité d'énergie introduite eq. 4.9 est fonction de variables d'états observables, représentés par la déformation \mathbb{C} et la température T ; et de tous les autres descripteurs de l'état du matériau sous forme de variables internes \mathbb{V}_k . Cette densité énergie s'écrit comme une fonction :

$$w = w(\mathbb{C}, T, \mathbb{V}_k) \quad (4.44)$$

Alors la dérivée de la densité d'énergie (eq. 4.9) peut s'écrire comme la somme des dérivées partielles suivantes :

$$\dot{w} = \frac{\partial w}{\partial \mathbb{C}} : \dot{\mathbb{C}} + \frac{\partial w}{\partial T} \dot{T} + \frac{\partial w}{\partial \mathbb{V}_k} \cdot \dot{\mathbb{V}}_k \quad (4.45)$$

Et la dissipation intrinsèque devient :

$$\phi_{int} = \boldsymbol{\sigma} : \mathbb{D} - \frac{1}{J} \left(\frac{\partial \mathbb{W}}{\partial \mathbb{C}} : \dot{\mathbb{C}} + \frac{\partial \mathbb{W}}{\partial T} \dot{T} + \frac{\partial \mathbb{W}}{\partial \nabla_k} \cdot \dot{\nabla}_k + \rho_0 s \dot{T} \right) \geq 0 \quad (4.46)$$

Avec $\dot{\mathbb{C}} = 2\mathbf{F}^T \mathbb{D} \mathbf{F}$ et sous les hypothèses d'incompressibilité $J = 1$, l'eq. 4.46 peut s'écrire :

$$\phi_{int} = \boldsymbol{\sigma} : \mathbb{D} - \left(\frac{\partial \mathbb{W}}{\partial \mathbb{C}} : (2\mathbf{F}^T \mathbb{D} \mathbf{F}) + \frac{\partial \mathbb{W}}{\partial T} \dot{T} + \frac{\partial \mathbb{W}}{\partial \nabla_k} \cdot \dot{\nabla}_k + \rho_0 s \dot{T} \right) \geq 0 \quad (4.47)$$

Ceci étant vrai pour toute évolution de variables d'états.

4.2.7 Entropie

On remarque que :

$$\frac{\partial \mathbb{W}}{\partial T} \dot{T} = -\rho_0 s \dot{T} \quad (4.48)$$

Si on introduit l'expression de l'entropie s :

$$s = -\frac{1}{\rho_0} \frac{\partial \mathbb{W}}{\partial T} \quad (4.49)$$

Par regroupement des termes d'origine thermique, l'expression 4.47 prend la forme suivante :

$$\phi_{int} = \boldsymbol{\sigma} : \mathbb{D} - \frac{\partial \mathbb{W}}{\partial \mathbb{C}} : (2\mathbf{F}^T \mathbb{D} \mathbf{F}) - \frac{\partial \mathbb{W}}{\partial \nabla_k} \cdot \dot{\nabla}_k \geq 0 \quad (4.50)$$

4.2.8 Expression de la contrainte

La contrainte sera calculé à partir de l'équation 4.50, en remarquant que :

$$\frac{\partial \mathbb{W}}{\partial \mathbb{C}} : (2\mathbf{F}^T \mathbb{D} \mathbf{F}) = 2 \frac{\partial \mathbb{W}}{\partial \mathbb{C}} : (\mathbf{F}^T \mathbb{D} \mathbf{F}) \quad (4.51)$$

$$= 2 \frac{\partial \mathbb{W}}{\partial \mathbb{C}} \mathbf{F}^T : \mathbf{F}^T \mathbb{D} \quad (4.52)$$

$$= 2 \left(\mathbf{F} \frac{\partial \mathbb{W}}{\partial \mathbb{C}} \mathbf{F}^T \right) : \mathbb{D} \quad (4.53)$$

En l'absence de dissipation, il y a égalité sur les termes en contrainte :

$$\boldsymbol{\sigma} : \mathbb{D} = 2 \left(\mathbf{F} \frac{\partial \mathbb{W}}{\partial \mathbb{C}} \mathbf{F}^T \right) : \mathbb{D} \quad (4.54)$$

Soit l'expression de la contrainte élastique :

$$\boldsymbol{\sigma} = 2 \left(\mathbf{F} \frac{\partial W}{\partial \mathbb{C}} \mathbf{F}^T \right) \quad (4.55)$$

Dans le cas particulier de l'incompressibilité (où $I_3 = 1$), $\frac{\partial W}{\partial I_3}$ est indéterminée.

De ce fait, la contrainte donnée par la thermodynamique est définie à une pression indéterminée près $p' = \frac{\partial W}{\partial I_3} \frac{\partial I_3}{\partial \mathbb{C}} : \mathbb{C}^{-1}$. Cette pression est alors fonction des conditions aux limites du problème. L'expression totale de la contrainte est alors de la forme :

$$\boldsymbol{\sigma}^{\text{TOT}} = \boldsymbol{\sigma} - p' \mathbb{I} \quad (4.56)$$

L'expression de la contrainte, dérivant de l'énergie de déformation, et fonction de la dérivée des invariants, est donnée par :

$$\boldsymbol{\sigma}^{\text{TOT}} = 2 \mathbf{F} \left(\frac{\partial W}{\partial I_1} \frac{\partial I_1}{\partial \mathbb{C}} + \frac{\partial W}{\partial I_2} \frac{\partial I_2}{\partial \mathbb{C}} \right) \mathbf{F}^T - p' \mathbb{I} \quad (4.57)$$

Dans le cas d'une énergie élastique dépendante de \mathbb{C}_e , l'expression de la contrainte prend la forme suivante :

$$\boldsymbol{\sigma}^{\text{TOT}} = 2 \mathbf{F}_e \left(\frac{\partial W}{\partial I_1^e} \frac{\partial I_1^e}{\partial \mathbb{C}_e} + \frac{\partial W}{\partial I_2^e} \frac{\partial I_2^e}{\partial \mathbb{C}_e} \right) \mathbf{F}_e^T - p' \mathbb{I} \quad (4.58)$$

Dans ce cadre, poser une loi de comportement revient à poser, par un raisonnement physique ou postulat phénoménologique, la forme de W .

4.2.9 Dissipation intrinsèque

Une fois les termes d'origine entropique et mécanique simplifiés, on obtient une forme réduite de l'eq. 4.47 :

$$\phi_{int} = - \frac{\partial W}{\partial \mathbb{V}_k} \cdot \dot{\mathbb{V}}_k \geq 0 \quad (4.59)$$

Avec les forces thermodynamiques suivantes :

$$A^{\mathbb{V}_k} = - \frac{\partial W}{\partial \mathbb{V}_k} \quad (4.60)$$

D'où l'expression de la dissipation intrinsèque :

$$\phi_{int} = A^{\mathbb{V}_k} \cdot \dot{\mathbb{V}}_k \geq 0 \quad (4.61)$$

Dans le cas où il n'y a pas d'évolution de variables internes ($\dot{\mathbb{V}}_k = 0$), la dissipation intrinsèque est donc nulle.

4.2.10 Equation de la chaleur

L'équation de la chaleur s'écrit :

$$\rho_0 C \dot{T} = \rho r + k \Delta T + T \frac{\partial \boldsymbol{\sigma}}{\partial T} : \mathbb{D}_e + T \frac{\partial \boldsymbol{\sigma}}{\partial \mathbb{V}_k} \cdot \dot{\mathbb{V}}_k + \phi_{int} \quad (4.62)$$

Avec :

- ρr : les sources de chaleurs extérieures
- $k \Delta T$: le gradient de température à travers le matériau.
- $T \frac{\partial \boldsymbol{\sigma}}{\partial T} : \mathbb{D}_e$: les sources de chaleurs d'origine thermoélastiques
- $T \frac{\partial \boldsymbol{\sigma}}{\partial \mathbb{V}_k} \cdot \dot{\mathbb{V}}_k$: les sources de chaleurs internes
- ϕ_{int} : les sources de chaleur d'origine dissipatives

Dans le cas d'une transformation purement élastique, sans sources internes ou d'origine dissipative, on met en évidence un refroidissement théorique du matériau pendant sa déformation, équation de Lord Kelvin [39, 40, 41].

4.2.11 Conclusion

Dans le cadre thermodynamique général, proposer une loi de comportement revient à proposer une expression pour les différents potentiels.

Lorsqu'elles sont rigoureuses, les approches de la littérature ne diffèrent que dans la forme de ces potentiels, et dans la façon dont ils sont construits : de manière phénoménologique, ou bien à partir de considérations physiques sur les processus élémentaires.

La suite présente différentes approches de modélisations phénoménologiques de la bibliographie, et la façon dont la littérature traite des comportements aussi complexes que ceux auxquels nous faisons face.

Nous détaillerons d'abord quelques modèles viscoélastiques et visco-plastiques, prenant plus ou moins en compte les phénomènes physiques dans leurs formalismes, sans prendre en compte explicitement la nature polymère.

Nous parlerons ensuite de modèle de type statistique de chaîne, que nous souhaitons utiliser et associer à la démarche mécanique.

4.3 Approches visco-élastiques et/ou viscoplastiques

Les auteurs s'attachent ici à reproduire au mieux les courbes contraintes déformations en partant d'une décomposition, à priori, en différents types de déformation (réversible, irréversible dépendent de la vitesse ou irréversible non dépendent de la vitesse) sans forcément rechercher de sens physique précis aux paramètres mis en évidence.

Ils peuvent, pour cela, s'appuyer sur des modèles 1D analogiques ou plus mathématiques.

Nous commencerons par un bref rappel de ces modélisations unidimensionnelles dans le cas visco-élastique.

Puis nous présenterons des démarches plus récentes, qui cherchent à tenir compte des phénomènes physiques, dans le cadre du formalisme thermodynamique présenté dans la partie précédente (4.2). Nous aborderons ici les modèles viscoélastiques, ainsi qu'une approche du cas viscoplastique, pour la compréhension de certains couplages élasto-viscoplastique.

4.3.1 Formulations intégrales et spectrales

4.3.1.1 Formulations intégrales

A ce stade, on postule que, à tout instant, la déformation résulte linéairement de la contrainte ou, de manière équivalente, la contrainte résulte linéairement de la déformation. On fait apparaître une complaisance ou un module, J et E respectivement.

Pour reproduire les effets anélastiques, on admettra que ces grandeurs dépendent du temps.

Le principe de superposition de Boltzmann est alors introduit, pour traiter les cas où la sollicitation (contrainte ou déformation, respectivement) dépendrait du temps.

Ainsi, pour modéliser un fluage viscoélastique [42], cette formulation associe la réponse en déformation à celle d'une succession d'accroissement de contraintes décomposées en somme :

$$\varepsilon(t) = \sum_j J(t - t_j) \Delta \sigma_j \quad (4.63)$$

J est la fonction fluage uniaxiale (ou complaisance) du matériau. Sa dépendance en temps est caractéristique de l'anélasticité du matériau, en réponse à une contrainte constante unitaire. Cette formulation se généralise sous la forme :

$$\varepsilon(t) = \int_0^t J(t - \tau) \frac{d\sigma(\tau)}{d\tau} d\tau \quad (4.64)$$

Les hypothèses de linéarité étant trop fortes, des généralisations non-linéaires ont été proposées, mais qui obligent à se ramener à l'intégration d'équations différentielles, ce qui enlève un grand intérêt à ces formulations de par leur coût de calculs.

4.3.1.2 Formulations spectrales

Une alternative est de postuler, à priori, que la contrainte, réponse à un chargement en déformation, ou la déformation, réponse à un chargement en contrainte, se composent de manière additive de diverses contributions élémentaires. Ces dernières sont de nature élastique, plastique, visqueuse ou viscoélastique.

Ces approches consistent en la mise en parallèle, ou en séries, de plusieurs éléments de Kelvin-Voigt ou de Maxwell, afin d'obtenir une description mathématique du comportement viscoélastique, sur la base d'une représentation intégrale de Boltzmann. (La fig. 4.3 représente un élément de Maxwell en parallèle avec un élément de Kelvin-Voigt.)

Quand le modèle complet représente la combinaison de n éléments, eux-mêmes viscoélastique (combinaison d'élasticité et de viscosité), ces éléments font apparaître n temps caractéristiques (relaxation ou retard), que l'on a coutume de regrouper à l'intérieur de spectres discrets ou continus.

1. Spectres de temps de relaxation [43]

Quand la modélisation du comportement est assurée par la mise en parallèle de n éléments de Maxwell pour une déformation ϵ_0 donnée, on met en évidence un spectre de relaxation tel que :

$$\sigma(t) = \epsilon_0 \sum_n E_n \exp\left(-\frac{t}{\tau_n}\right) \quad (4.65)$$

Avec E_n et τ_n les modules d'élasticité et les temps caractéristiques du $n^{\text{ième}}$ élément.

Ce qui donne sous forme intégrale :

$$\sigma(t) = [G_r \epsilon] + \epsilon_0 \int_{-\infty}^{+\infty} H(\tau) \exp\left(-\frac{t}{\tau}\right) d(\ln \tau) \quad (4.66)$$

Où G_r est le module relaxé, E_n est remplacé par $H(\tau)d(\ln \tau)$ qui détermine les contributions de la contrainte relaxée entre $\ln \tau$ et $\ln \tau + d(\ln \tau)$

2. Spectres de temps de retard [43]

Dans ce cas où n éléments de Kelvin-Voigt sont mis en série pour une contrainte σ donnée en

fluage. Sous forme intégrale, on obtient l'équation suivante :

$$J(t) = [J_u] + \int_{-\infty}^{+\infty} L(\tau) \left(1 - \exp\left(-\frac{\tau}{\eta}\right) \right) d(\ln \tau) \quad (4.67)$$

Une extension de ces formulations spectrales est réalisée par Maire et al [44], par l'utilisation de variables internes et l'emploi de décomposition de mécanismes élémentaires pour la déformation visqueuse.

4.3.2 Modèle solide standard modifié

Au-delà de la multiplication des éléments, les modèles de base, Maxwell ou Kelvin et leur association, peuvent être enrichis par la sophistication de leurs constituants. Par exemple ressort ou amortisseur non linéaires. A titre d'exemple, nous présentons quelques solutions utilisées autour du modèle solide standard modifié.

Le modèle solide standard modifié est représenté sur la fig. 4.3 par un élément de Maxwell sur la branche I connecté en parallèle avec un élément de Kelvin-Voigt sur la branche II.

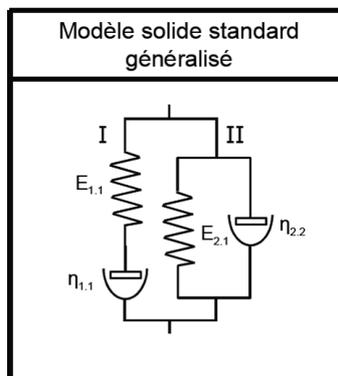


Figure 4.3 – Schéma du modèle solide standard modifié

Il est utilisé par Khan et al. ([45]), pour modéliser le comportement phénoménologique thermomécanique d'un polymère, l'Adiprene-L100, sur de larges plages de vitesse de déformation et de température. Le ressort $E_{1,1}$ possède un comportement dépendant uniquement de la température, pendant que le ressort $E_{2,1}$ possède un comportement non-linéaire dépendant de la déformation (sans sensibilité à la vitesse de déformation) avec une sensibilité à la température. Le choix des évolutions des modules est pris en considérant les deux modes de sollicitation auquel l'auteur décide de rendre le modèle sensible, un mode en chargement, et un mode en relaxation. Les comportements des ressorts sont alors définis suivant les lois suivantes :

$$E_{1,1} = c_1 \left(1 + \frac{T_r - T}{T_d} \right) \quad (4.68)$$

$$E_{2.1} = c_2 |\epsilon|^{n_2} \left(1 + \frac{T_r - T}{T_d} \right) \quad (4.69)$$

Avec c_1 , c_2 et n_2 des paramètres matériaux, $|\epsilon|$ la déformation totale vraie, T_r , T_d et T , respectivement les températures ambiante, de fusion et de la pièce pendant l'essai. L'auteur indique qu'un raffinement supplémentaire sur le comportement des ressorts est possible en utilisant la même dépendance à la déformation pour les deux ressorts, ou bien en utilisant des lois présentant d'autres formes de non-linéarités.

La loi d'évolution de la viscosité des deux amortisseurs non-linéaires est prise comme une fonction de la vitesse de déformation et de la température. Elle dérive de la forme introduite par Bird et al. (1977), modifiée afin de prédire la viscosité réactualisée selon la température et la vitesse de sollicitation au moment de l'essai. Cette viscosité est donnée sous la forme suivante :

$$\eta(\dot{\epsilon}, T) = \left(\eta_\infty + \frac{\eta_0 - \eta_\infty}{\left(1 + (a|\dot{\epsilon}|)^2 - \left(\frac{|\dot{\epsilon}|}{10^5} \right)^d \right)^b} \right) \left(\frac{T_r - T_{vf}}{T - T_{vf}} \right)^m \quad (4.70)$$

Avec a , b et d des paramètres matériaux ajustables, m le paramètre ajustant la viscosité par rapport à la température, η_∞ la valeur asymptotique de la viscosité pour une vitesse de déformation $\dot{\epsilon}$ tendant vers l'infini et η_0 la viscosité pour une vitesse de déformation très faible. T_{vf} est la température de Vogel-Fulcher, qui est usuellement inférieure de 50°C à la température de transition T_α . On aurait pu également utiliser d'autres lois d'évolution de la viscosité (Eyring, Carreau)

L'équation constitutive du modèle de comportement du solide standard généralisé est donnée par :

$$\frac{c_1}{\eta_1} \sigma + \dot{\sigma} = c_1 \dot{\epsilon} + \frac{c_1}{\eta_1} c_2 \epsilon^{n_2+1} + \frac{\eta_2}{\eta_1} c_1 \dot{\epsilon} + c_2 (n_2 + 1) \epsilon^{n_2} \dot{\epsilon} \quad (4.71)$$

La réponse du système pour un chargement constant (vitesse de déformation constante) est donnée par l'équation suivante :

$$\sigma = (\eta_1 + \eta_2) \dot{\epsilon} \left(1 - \exp \left(\frac{-c_1 \epsilon}{\eta_1 \dot{\epsilon}} \right) \right) + c_2 \epsilon^{(n_2+1)} \quad (4.72)$$

La réponse du système dans le cas d'une relaxation est donnée par :

$$\sigma = c_2 \epsilon_0^{(n_2+1)} + \left(\sigma_0 - c_2 \epsilon_0^{(n_2+1)} \right) \exp \left(\frac{-c_1 t}{\eta_1} \right) \quad (4.73)$$

Ce modèle est exclusivement 1D et n'est donc pas général. Il permet de reproduire de manière

satisfaisante des essais de charge et de relaxation en condition uniaxiale (figs. 4.4 et 4.5). Par contre, il ne tient pas compte des couplages thermomécaniques et ne reproduit pas très bien la forte sensibilité couplée des polymères à la vitesse de déformation et à la température.

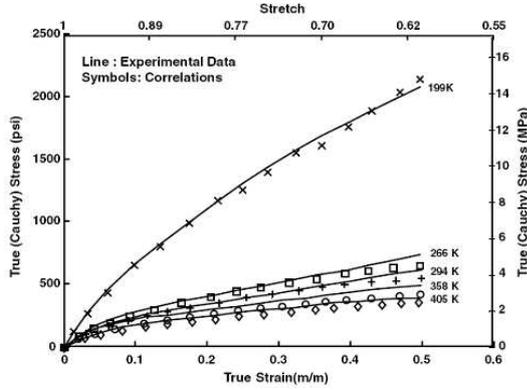


Figure 4.4 – Courbes de traction à $0.1s^{-1}$ pour différentes températures [45]

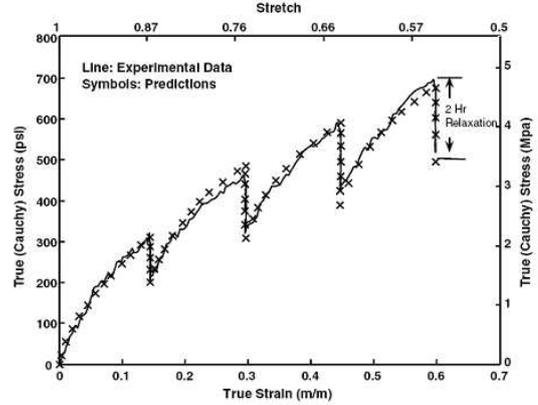


Figure 4.5 – Relaxations multiples pour une vitesse de déformation de $1s^{-1}$ [45]

4.3.3 Thermo-viscoélasticité

La prise en compte des couplages thermo-viscoélastique est par contre présente dans les modèles de Moreau et al [46]. Ils introduisent un composant thermoélastique (fig.4.6) dans un modèle rhéologique viscoélastique linéaire. Ces modèles sont, ensuite, exprimés dans le cadre général des modèles standards

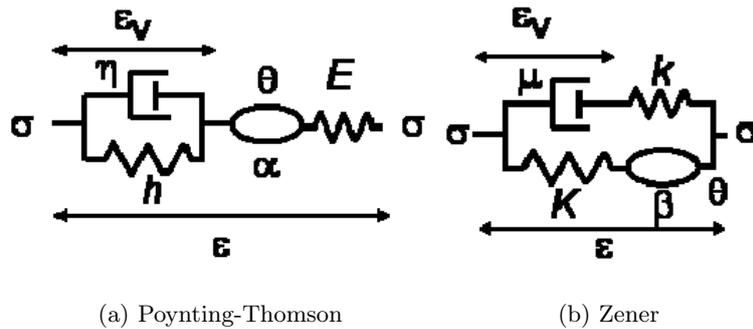


Figure 4.6 – Schématisation des modèles thermo-viscoélastiques 1D [46]

généralisés à variables internes ([18, 38, 47]). Les auteurs obtiennent alors les expressions suivantes :

- Pour le modèle de Poynting-Thomson

L'énergie libre spécifique s'écrit :

$$W^{PT}(\theta, \epsilon, \epsilon_v) = \frac{E}{2}(\epsilon - \alpha\theta - \epsilon_v)^2 - \left(\frac{E\alpha^2}{2} + \frac{\rho_0 C_0}{2T_0} \right) \theta^2 - s_0\theta + \frac{h}{2}\epsilon_v^2 \quad (4.74)$$

Le potentiel de dissipation est :

$$\phi^{\text{PT}}(q, \dot{\epsilon}, \dot{\epsilon}_v) = \frac{q \cdot q}{2\kappa T_0} + \frac{\eta}{2} \dot{\epsilon}_v^2 \quad (4.75)$$

L'équation de la chaleur prend la forme suivante :

$$\rho C \dot{T} + \text{div} q = \eta \dot{\epsilon}_v^2 - E \alpha T_0 (\dot{\epsilon} - \dot{\epsilon}_v) \quad (4.76)$$

Et l'expression de la contrainte se réduit à :

$$\sigma = \frac{\partial W^{\text{PT}}}{\partial \epsilon} = E(\epsilon - \alpha \theta - \epsilon_v) \quad (4.77)$$

Avec E, h les constantes élastiques, ϵ, ϵ_v les déformations totale et anélastique, $\theta = (T - T_0)$ la variation de température, α : le coefficient de dilatation thermique, ρ_0, C_0, κ : la densité, la capacité calorifique et le coefficient de conduction thermique, s_0 : l'entropie spécifique et q : le gradient de flux de chaleur.

- Pour le modèle de Zener

L'énergie libre spécifique est :

$$W^z(\theta, \epsilon, \epsilon_v) = \frac{K}{2} (\epsilon - \beta \theta)^2 - \left(\frac{K \beta^2}{2} + \frac{\rho_0 C_0}{2T_0} \right) \theta^2 - s_0 \theta + \frac{k}{2} (\epsilon - \epsilon_v)^2 \quad (4.78)$$

Le potentiel de dissipation est :

$$\phi^z(q, \dot{\epsilon}, \dot{\epsilon}_v) = \frac{q \cdot q}{2\kappa T_0} + \frac{\mu}{2} \dot{\epsilon}_v^2 \quad (4.79)$$

L'équation de la chaleur prend la forme suivante :

$$\rho C \dot{T} + \text{div} q = \mu \dot{\epsilon}_v^2 - K \beta T_0 \dot{\epsilon} \quad (4.80)$$

Et l'expression de la contrainte se réduit à :

$$\sigma = \frac{\partial W^z}{\partial \epsilon} = K(\epsilon - \beta \theta) + k(\epsilon - \epsilon_v) \quad (4.81)$$

Avec K, k les constantes élastiques et β le coefficient de dilatation thermique.

Ces deux modèles peuvent représenter un couplage thermomécanique à faible déformation.

Ces descriptions mathématiques, macroscopiques viscoélastiques, occultent complètement les relations entre les propriétés mécaniques, les propriétés microstructurales et la physique du matériau.

Les études suivantes considèrent des mécanismes physiques, et les auteurs utilisent une approche phénoménologique en modifiant ces modèles rhéologiques, afin de modéliser le comportement plus proche des polymères semi-cristallins.

4.3.4 Viscoélasticité de la phase amorphe en charge décharge

La modélisation des polymères semi-cristallins a été tentée en introduisant des conceptualisations plus ou moins élaborées de leur nature bi-phasique. Nous en retenons ici quelques unes.

Les polymères semi-cristallins comportent une part non négligeable de phase amorphe. Cette dernière possède des modes de déformation propres, comme les changements de conformation, qui induisent une part élastique au comportement, et l'écoulement (le désenchevêtrement) des chaînes, qui induit un comportement "visqueux".

La phase amorphe peut alors être conceptualisée comme un VER qui évolue suivant ces deux processus. Ainsi, Lai [48] propose un VER simplifié, illustré par la fig. 4.7. Il part de la constatation que le comportement de la phase amorphe n'est pas exclusivement dû à la viscosité, mais aussi à des phénomènes physiques durant et après le glissement relatif des chaînes.

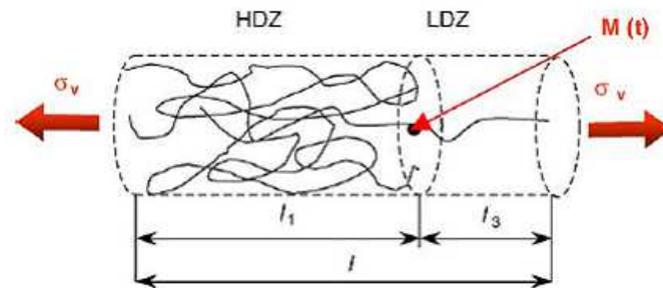


Figure 4.7 – VER de la phase amorphe, composé des zones HDZ et LDZ ([48])

On considère la décomposition de la contrainte, en une contrainte élastique, sans incidence sur la géométrie du VER, et en une contrainte visqueuse σ_v qui modifie la géométrie du VER. Avant l'application d'une sollicitation de traction, le VER est composé d'un arrangement à l'état dense. Pendant le chargement σ_v , certains segments de chaînes sont extraits. Le VER est, à ce moment, divisé en une zone de haute densité (HDZ) et une zone de basse densité (LDZ). Au temps t , un point géométrique M est attaché aux chaînes soumises au phénomène de glissement entre les bords des deux zones. Au temps $t + dt$, le point M se déplace d'une distance dl_g du bord. Cette distance dl_g correspond aux deux phénomènes suivants : le glissement des portions de chaînes entre les zones HDZ et LDZ pendant l'incrément de temps dt , et la dilatation élastique. Cette dilatation reflète la différence de déformation subie par la portion de chaîne avant et après le glissement, sans que la contrainte extérieure ne soit modifiée (σ_v est conservée dans la zone LDZ). La différence de déformation exprime alors le passage instantané d'une contrainte effective sur les chaînes de σ_v à $\frac{\sigma_v}{p}$ (où $p < 1$ représente la proportion de chaînes soumise au glissement).

Physiquement, cela revient à considérer que le VER accomode d'abord un incrément de travail mécanique sous la forme d'une déformation élastique, puis relaxe un peu de cette énergie via le glissement de certaines chaînes, provoquant un rééquilibrage de la zone HDZ. Nous utiliserons un concept proche, quoique développé de manière totalement indépendante, dans la partie 5.1.2.

Donc, lorsque σ_v augmente, la vitesse d'élongation est plus rapide dans la zone LDZ que dans la zone HDZ. En conséquence, le module d'élasticité apparent du VER est inférieur à celui de la zone HDZ, et ce module décroît avec l'augmentation de la zone LDZ. En d'autres termes, la rigidité de la phase amorphe décroît continûment (avec une évolution viscoélastique) en traction et en décharge tant que la contrainte σ_v reste positive.

Ce phénomène de glissement de chaîne est physiquement plus difficile à appréhender en compression. Ce difficile passage des chaînes de la zone HDZ à la zone LDZ est invoqué par les auteurs comme une illustration physique de la différence de comportement traction-compression observée expérimentalement dans les polymères semi-cristallins.

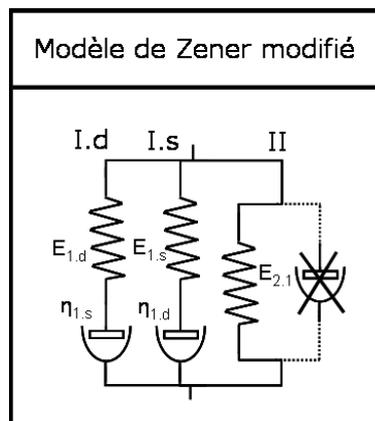


Figure 4.8 – Modèle de Zener modifié

Ce concept est introduit dans une modélisation basée sur un modèle rhéologique de Zener modifié (fig. 4.8). Ce modèle est obtenu à partir du modèle solide standard modifié (fig. 4.3) : lorsque la branche II est constituée d'un ressort seulement, associée à la phase cristalline ; et lorsque la branche I,(1s) est constituée du montage en série d'un ressort et d'un amortisseur, associée à la phase amorphe pour prendre en compte les phénomènes de glissement entraînant la viscoélasticité. Ce modèle est modifié par l'ajout d'une branche I supplémentaire, 1d, en parallèle de l'autre branche, qui représente une phase amorphe liée aux cristallites et dont le temps caractéristique est plus court que la phase amorphe libre.

Cette phase, qui est finalement associée à une interface amorphe libre-cristallite, est conceptualisée

par les mêmes phénomènes physiques de glissement, mais avec une rigidité plus importante et une viscosité moindre.

Le modèle devient alors un modèle à trois phases : une phase amorphe libre, non perturbée par le cristal, viscoélastique ; une phase amorphe liée, (contrainte par le cristal) viscoélastique avec un temps de relaxation plus court que l'amorphe libre ; et la phase cristalline, élastique.

En partant de la partition de la longueur du VER entre la zone HDZ et la zone LDZ, puis en écrivant la déformation vraie pour les deux zones, en considérant une seconde partition des vitesses de déformation élastique et visqueuse dans la zone LDZ, l'évolution de $\dot{\sigma}_v$ dans les deux branches viscoélastiques $1s$ et $1d$ est alors donnée par :

$$\dot{\sigma}_{vi} = \begin{cases} \dot{\epsilon} - \frac{\sigma_{vi}}{\eta} \exp \left[\frac{\sigma_{vi}}{E_{1i}} \frac{(1-\rho)}{p} \right] \\ \exp \left(\frac{\sigma_{vi}}{E_{1i}} - \epsilon \right) \left(1 - \frac{1}{p} \right) + \frac{1}{p} \end{cases} E_{1i} \quad \text{avec } i = s, d \quad (4.82)$$

Et la viscosité suit la loi modifiée d'Eyring :

$$\eta_i = \eta_{0i} \exp \left(\left| \frac{\sigma_{vi}}{\beta} \right|^\alpha \right) \exp \left(\left| \frac{\sigma_{vi}}{\sigma_0} \right| \right) \quad (4.83)$$

Le modèle de comportement complet à neuf paramètres est :

$$\dot{\sigma} = \dot{\epsilon} E_2 + \dot{\sigma}_{vd} + \dot{\sigma}_{vs} \quad (4.84)$$

Les résultats du modèle de comportement sont donnés dans les figs. 4.9 et 4.10, pour un polypropylène isotactique, lors d'un essai de traction en charge-décharge et d'un essai de traction avec relaxation et décharge (où la température de l'essai n'est pas renseignée). La correspondance entre les essais expérimentaux et le modèle semble bonne.

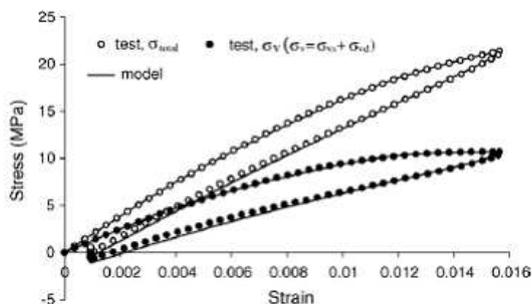


Figure 4.9 – Test de traction avec charge et décharge $\dot{\epsilon} = 1.6 \cdot 10^{-3} s^{-1}$ [48]

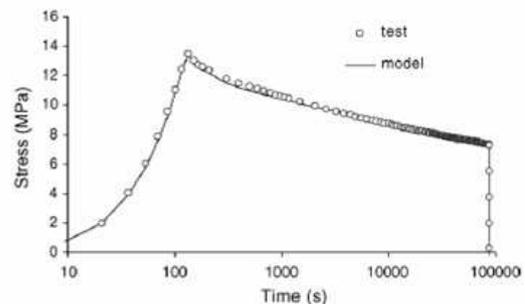


Figure 4.10 – Test de traction avec charge, relaxation et décharge, $\epsilon_t = 0.01$, T inconnue [48]

La force de ce modèle réside dans la prédiction du comportement à la décharge, où il y reproduit le

changement apparent de rigidité, en conservant une signification physique de l'approche. Ce phénomène est expliqué par le mouvement réversible des chaînes amorphes durant la sollicitation.

Néanmoins, il ne représente que le comportement à faible déformation. Ce qui en fait un modèle plutôt représentatif de la part viscoélastique des polymères sous la température de transition vitreuse.

En grandes déformations, ce phénomène est plutôt considéré comme de l'endommagement irréversible dans le cadre d'approches viscoélastique ou visco-plastique. (Un état de l'art, présenté par la suite se dirige vers ce formalisme). Le modèle reste, de plus, isotherme, unidimensionnel et ne permet pas de prévoir l'évolution de la température selon la sollicitation mécanique, ni de mettre en évidence l'évolution des variables internes dans un cadre formel thermodynamique.

4.3.5 Viscoélasticité et visco-plasticité couplées

Dans les études de Roguet et Al ([49],[50]), le comportement d'un polymère semi-cristallin, le polyamide 11, au dessus de T_α (dans le domaine de déformation précédent la striction) a été étudié expérimentalement par des essais de traction unidimensionnels. Pendant l'étude, un comportement atypique du matériau est apparu : pour les températures supérieures à la T_α , il existe une vitesse critique de sollicitation en-dessous de laquelle le comportement en charge ne dépend plus de la vitesse de sollicitation (fig. 4.11). Celle-ci dépend de la température, mais pas de la pression hydrostatique.

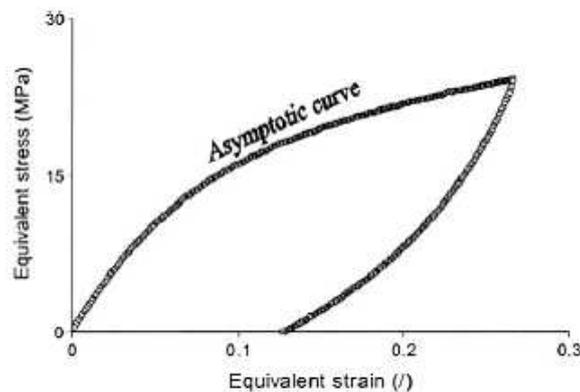


Figure 4.11 – Courbe de charge-décharge à 100°C pour une vitesse de déformation de $10^{-3} s^{-1}$ [49]

Les auteurs expliquent la cohérence de ces résultats avec un état relaxé de la phase amorphe. Néanmoins, il existe un paradoxe : même lorsque en charge, les comportements atteignent un régime de non dépendance en vitesse, des phénomènes de type visqueux (fluage, relaxation) peuvent encore avoir lieu après ce type de chargement. La courbe limite ne définit alors pas un état relaxé de l'amorphe, et le comportement hyperélastique n'est pas suffisant pour décrire cet état. Une réorganisation cristalline entraîne une nature viscoplastique au niveau des contraintes hors-équilibre, et les conséquences sur la

phase amorphe entraîne une nature viscoélastique. Cela conduit les auteurs à envisager trois types de modélisations [49] :

- une première modélisation viscoélastique, qui est celle implantée dans le code de calcul éléments finis ABAQUS, utilisant la relation suivante :

$$\boldsymbol{\sigma} = \int_0^t 2G(t-t')\boldsymbol{\epsilon}^D dt' + \int_0^t K(t-t')\boldsymbol{\epsilon}^H dt' \mathbf{I} \quad (4.85)$$

Où $\boldsymbol{\epsilon}^D$ et $\boldsymbol{\epsilon}^H$ sont respectivement les parties déviatorique et sphérique du tenseur de déformation, G et K sont les modules de cisaillement et de compressibilité, représentés par deux séries de Prony.

$$G(t) = G_0 - \sum_{i=1}^n G_i (1 - \exp(-\frac{t}{\tau_i^G})) \quad \text{et} \quad K(t) = K_0 - \sum_{i=1}^n K_i (1 - \exp(-\frac{t}{\tau_i^K})) \quad (4.86)$$

Ce modèle ne s'est pas avéré suffisant à cause de sa trop grande sensibilité à la vitesse de déformation. De plus, la décharge obtenue est trop rigide et ne prédit pas le comportement réel du matériau.

Dans le cadre du projet DAMOFIP, une modélisation utilisant une description de la viscoélasticité et de la visco-plasticité par série de Prony a été utilisée avec succès pour la modélisation du comportement d'un polymère chargé fibre de verre ([51]). Par contre, l'efficacité de telles démarches reste limitée aux faibles déformations.

Dans la suite de [49], il est ainsi apparu qu'une formulation, combinant des réponses hyperélastique ou viscoélastique et viscoplastique serait plus à même de modéliser les différents trajets de chargement. Citons deux types d'enrichissement que les auteurs ont puisé dans la littérature :

- Une modélisation élasto-viscoplastique disposant d'un écrouissage cinématique avec une sensibilité à la vitesse de type Norton-Hoff tirée du modèle de Chambaudet [52]
- Une modélisation élasto-viscoplastique à écrouissage isotrope et viscosité non linéaire [53].

La combinaison de ces deux modèles est réalisée dans [50]. En introduisant la partition des déformations en une part élastique et une part viscoplastique, le tenseur de déformation viscoplastique est obtenu par l'intégration de la loi d'écoulement donnée par :

$$\boldsymbol{\epsilon}_{vp}^{\dot{}} = \frac{3}{2} \frac{\dot{\epsilon}}{\epsilon} \frac{\boldsymbol{\sigma}^D - \mathbf{X}^D}{J_2(\boldsymbol{\sigma}^D - \mathbf{X}^D)} \quad (4.87)$$

Avec J_2 le second déviateur des contraintes, \mathbf{X}^D et $\boldsymbol{\sigma}^D$ les parts déviatoriques de l'érouissage cinématique et du tenseur des contraintes. Pour sa part, la déformation plastique équivalente de Von-Mises obéit à la loi d'évolution de Norton-Hoff :

$$\dot{\bar{\epsilon}}^{vp} = \left(\frac{J_2(\boldsymbol{\sigma} - \mathbf{X}) - R}{K} \right)^n \quad (4.88)$$

Avec R l'érouissage isotrope, considéré constant, égale à R_0 et n la sensibilité à la vitesse.

L'érouissage cinématique non linéaire $\mathbf{X} = \mathbf{X}_1 + \mathbf{X}_2$ est répartie en un érouissage de la structure \mathbf{X}_1 et un écoulement plastique \mathbf{X}_2 , avec :

$$\dot{\mathbf{X}}_1 = \frac{2}{3} C_1 \boldsymbol{\epsilon}_{vp} \quad \text{et} \quad \dot{\mathbf{X}}_2 = \frac{2}{3} C_2 \boldsymbol{\epsilon}_{vp} - \gamma \boldsymbol{\epsilon}_{vp} \mathbf{X}_2 \quad (4.89)$$

La viscosité non linéaire K est donnée sous la forme suivante :

$$K = K_0 + k (1 - \exp(-w\bar{\epsilon}_{vp})) \exp(h(\bar{\epsilon}_{vp})^2) \quad (4.90)$$

Au total, le modèle fait intervenir 11 paramètres. Ce modèle de comportement ne permet pourtant pas de décrire simultanément la charge à différentes vitesses, la décharge et la relaxation. L'évolution de cette modélisation viscoplastique est présentée dans [50], où deux variables internes sont ajoutées : l'une affectant la matrice de rigidité du matériau par un processus isotrope, et l'autre, liée à la cristallisation faisant évoluer cette matrice de rigidité de manière directionnelle. Ces derniers ajustements permettent de prévoir des cas simples de chargement avec précision.

Dans une autre approche phénoménologique, les modèles utilisés pour la modélisation dans les applications métalliques à hautes températures seraient une solution de représentation viscoplastique. Khan et al [54] suggèrent ainsi un couplage avec les modèles viscoplastiques de Khan-Huang-Liang (KHL) et Johnson-Cook (JC). Les contraintes sont définies respectivement par :

$$\sigma^{KHL} = \left[A + B \left(1 - \frac{\ln \dot{\epsilon}}{\ln D_0^P} \right)^{n_1} (\epsilon^P)^{n_0} \right] \left(\frac{\dot{\epsilon}}{\dot{\epsilon}^{ref}} \right)^C \left(\frac{T_m - T}{T_m - T_{ref}} \right)^m \quad (4.91)$$

$$\sigma^{JC} = \left[A + B(\epsilon^P)^{n_0} \right] \left(1 + C \ln \frac{\dot{\epsilon}}{\dot{\epsilon}^{ref}} \right) \left(1 - \left(\frac{T - T_{ref}}{T_m - T_{ref}} \right)^m \right) \quad (4.92)$$

Avec T_m, T, T_{ref} respectivement les températures de fusion, instantanée et de référence, $D_0^P, \dot{\epsilon}^{ref}$ étant

deux vitesses de référence et A, B, n_1, n_0, C, m les constantes matériau.

La similitude des deux modèles entraîne une réponse proche. Les auteurs concluent à une meilleure corrélation pour le modèle KHL, dans les domaines des déformations rapides et de l'adoucissement thermique.

Le grand nombre de paramètres matériaux d'ajustement nous montre que des considérations sur l'évolution de la microstructure du matériau sont nécessaires à une bonne représentation du comportement. En terme thermomécanique, des variables internes additionnelles sont indispensables pour définir le comportement.

4.3.6 Viscoélasticité et viscoplasticité à deux phases

Le modèle de Lai [48] est une modélisation purement viscoélastique, où la phase amorphe et la phase cristalline sont modélisées par les mêmes phénomènes. Le modèle de Roguet et al [50] est élasto-viscoplastique, et ne permet pas de décrire avec justesse les processus de décharge, relaxation et essais de fluage. Ces deux modèles peuvent conduire à une modélisation hybride, où la phase amorphe serait viscoélastique, pendant que la phase cristalline serait viscoplastique.

C'est un modèle qui est approché par Drozdov dans plusieurs publications ([55],[56]), où le polymère semi-cristallin, (ici un polyéthylène), est modélisé par deux phases continues. La première est un squelette cristallin viscoplastique isotrope pour représenter les glissements cristallins. La deuxième (phase amorphe) est traitée comme un réseau transitoire de chaînes reliées aux processus d'enchevêtrement et d'élasticité entropique. Elle présente une réponse à la fois viscoélastique et viscoplastique. Sa déformation est pilotée, via un frottement inter facial, par la déformation viscoplastique des cristallites.

4.3.6.1 Phase cristalline

La phase cristalline est considérée dans un cadre incompressible, en petites déformations. Les déformations sont partitionnées en une partie élastique et une partie viscoplastique $\hat{\epsilon} = \hat{\epsilon}_e + \hat{\epsilon}_{vp}$, et l'hypothèse d'incompressibilité induit $trace(\hat{\epsilon}_{vp}) = 0$. Le tenseur des vitesses de déformations plastiques est introduit proportionnel au tenseur des vitesses de déformations globales :

$$\dot{\hat{\epsilon}}_{vp} = \phi \dot{\hat{\epsilon}} \quad (4.93)$$

Où le $\hat{\epsilon}$ représente les tenseurs écrit en notation matricielle de Voigt, et ϕ est une fonction scalaire explicitée dans la suite.

L'énergie de déformation de la phase cristalline est donnée par :

$$\Psi_c = \frac{1}{2} E_c \hat{\epsilon}_e : \hat{\epsilon}_e \quad (4.94)$$

Avec E_c module élastique isotrope de la phase cristalline. Par différenciation temporelle de l'énergie de déformation, on a :

$$\dot{\Psi}_c = E_c(1 - \phi)(\dot{\hat{\epsilon}} - \dot{\hat{\epsilon}}_p) : \hat{\epsilon}_e \quad (4.95)$$

4.3.6.2 Phase amorphe

La phase amorphe est traitée comme un réseau temporaire de chaînes flexibles reliées ensemble par les phénomènes d'enchevêtrement et de friction avec les surfaces lamellaires cristallines. Sous chargement, deux type de méso-régions (MR) sont définies : Les MR passives, qui représentent l'amorphe où les interactions de chaînes sont permanentes (ramification, enchevêtrement, changements de conformation, présence des lamelles cristallines radiales et tangentielles). Les MR actives, qui représentent le désenchevêtrement de chaînes et le détachement des extrémités de chaîne de la phase cristalline. Ces processus d'évolution d'interactions sont décrit par les mécanismes thermiquement activés proposés par Eyring. Le réseau est alors modélisé par un ensemble de MR avec une énergie d'activation propre (qui représente l'énergie nécessaire pour les mouvements de chaîne) formant un méso-domaine.

Dans le même cadre de modélisation, on peut citer Bardenhagen et al [57] qui réalise l'extension isotherme en grandes déformations d'un modèle solide standard de Zener pour la partie viscoélastique, et d'un modèle élasto-plastique pour la part viscoplastique. Ce modèle est validé dans les cas complexes de charge, relaxation et recharge en traction.

4.3.7 Elasto-viscoplastique

4.3.7.1 modèles biphasiques

Le modèle mésoscopique de Cangemi et al ([58]) se place à une échelle mésoscopique pour la phase amorphe. La partie amorphe liée aux cristallites, prise en compte par Drozdov [59] et qui donnait un modèle complexe à trois phases, est simplifiée par un modèle biphasique, mais sous le formalisme thermodynamique des milieux ouverts. Le modèle est inspiré des caoutchoucs chargés de noir de carbone, où la mobilité de certaines zones amorphes est affectée par la présence des particules de noir

de carbone.

Pour la transposer la modélisation au cas des polymères semi-cristallins, les auteurs considèrent une partition de la phase amorphe en une zone amorphe confinée, lié aux cristallites, où la mobilité des chaînes est pilotée par la présence de la phase cristalline, et une zone amorphe libre qui se comporte comme une phase caoutchoutique. La phase amorphe libre est assimilée à une phase molle, possédant une raideur relative très faible par rapport à la phase cristalline, pendant que les phases cristalline et amorphe confinée sont assimilées à un squelette solide ; afin de coupler les phases amorphe molle et cristalline solide, les auteurs utilisent la thermodynamique des milieux poreux (ou thermodynamique des milieux ouverts) pour formuler le problème.

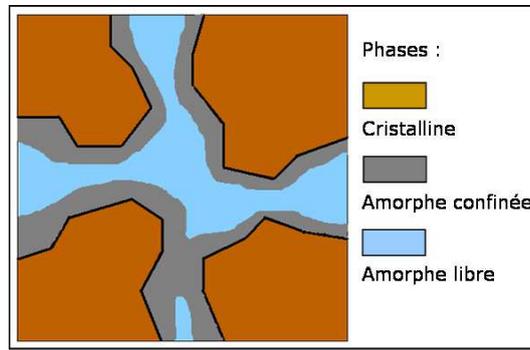


Figure 4.12 – Illustration du milieu poreux en un squelette solide et une phase amorphe considérée fluide, tel que décrite par [58].

L'approche développée consiste à privilégier le mouvement du squelette solide vis à vis du fluide (phase molle). En respectant la conservation de la masse, les premier et second principes de la thermodynamique modifiés pour les systèmes ouverts et les transformations de Green, les auteurs obtiennent l'inégalité de Clausius Duhem suivante :

$$\phi = \boldsymbol{\sigma} : \mathbf{D} + G_m \dot{m} - \rho S \dot{T} - \rho \dot{\Psi} - \vec{M}_m \overrightarrow{\text{grad}} G_m - \frac{\vec{q}}{T} \overrightarrow{\text{grad}} T \geq 0 \quad (4.96)$$

Où G_m est l'enthalpie libre de l'amorphe, appelée également potentiel chimique, \dot{m} la variation de masse d'amorphe et \vec{M}_m est le vecteur de courant relatif de masse d'amorphe à travers le VER. Dans les hypothèses de petites déformations, la dissipation totale ϕ peut être décomposée en une dissipation intrinsèque ϕ_{int} , une dissipation visqueuse ϕ_{visq} due au transport de l'amorphe à travers le squelette solide et une dissipation thermique ϕ_{th} :

$$\phi_{int} = \boldsymbol{\sigma} : \dot{\boldsymbol{\epsilon}} + G_m \dot{m} - \rho S \dot{T} - \rho \dot{\Psi} \geq 0 \quad (4.97)$$

$$\phi_{visq} = -\vec{M}_m \overrightarrow{\text{grad}} G_m \geq 0 \quad (4.98)$$

$$\phi_{th} = -\frac{\vec{q}}{T} \overrightarrow{\text{grad}} T \geq 0 \quad (4.99)$$

En posant la partition de la déformation totale et du courant d'amorphe en des composantes élastique et viscoplastique $\epsilon = \epsilon_e + \epsilon_{vp}$ et de la masse de fluide en une composante élastique et viscoplastique $m = m_e + m_{vp}$, l'expression du potentiel d'état dépendant des variables d'états observables et internes, est donnée par :

$$\Psi = \Psi(\epsilon_e, \phi_{vp}, m, V_k) \quad (4.100)$$

Avec $\phi_{vp} = \frac{m_{vp}}{\rho_0^m}$ la pseudo porosité reliée à la plasticité (en fonction de la densité du fluide à l'état de référence) et V_k représentant les variables internes. La déformation viscoplastique ϵ_{vp} , variable interne, est liée à la pseudo porosité et n'entre pas dans les paramètres du potentiel d'état. Les forces thermodynamiques associées sont ensuite exprimées selon la loi de normalité :

$$S = -\frac{\partial \Psi}{\partial T} \quad \sigma = \rho \frac{\partial \Psi}{\partial \epsilon_e} \quad G_m = \frac{\partial \Psi}{\partial m} \quad A_k = -\rho \frac{\partial \Psi}{\partial V_k} \quad (4.101)$$

Ce qui conduit à l'expression de la dissipation intrinsèque ϕ_{int} :

$$\phi_{int} = \sigma : \dot{\epsilon} + G_m \dot{\phi}_{vp} + \sum_k A_k \dot{V}_k \geq 0 \quad (4.102)$$

La porosité plastique ϕ_{vp} reliée à la déformation plastique est donnée par :

$$\phi_{vp} = \mathbb{B}_{vp} : \epsilon_{vp} \quad \text{avec} \quad \mathbb{B}_{vp} = \beta \mathbb{I} \quad (4.103)$$

En utilisant l'eq. 4.103) dans l'eq. 4.102), on a :

$$\phi_{int} = (\sigma + \beta G_m \mathbb{I}) : \dot{\epsilon} + \sum_k A_k \dot{V}_k \geq 0 \quad (4.104)$$

Ce qui permet d'écrire le tenseur des contraintes effectives :

$$\sigma'_\beta = \sigma + \beta G_m \mathbb{I} = \sigma'_\beta{}^D + \frac{1}{3} \text{Trace}(\sigma'_\beta) \mathbb{I} = \mathbf{s}_\beta + \mathbf{p}_\beta \mathbb{I} \quad (4.105)$$

Afin de décrire rigoureusement le cadre thermodynamique, les expressions des trois formes de

dissipation doivent être vérifiées pour toutes les évolutions du système, et donc les forces thermodynamiques associées doivent dériver des pseudo-potentiels Φ_1, Φ_2 et Φ_3 . Les égalités permettant d'utiliser les lois d'évolution, sans violer les deux principes de la thermodynamique, sont les suivantes :

$$(\boldsymbol{\sigma}'_\beta, A_k) \in \partial\Phi_1(\dot{\boldsymbol{\epsilon}}_{vp}, \dot{V}_k; \mathbf{s}_\beta; P_\beta) \quad (4.106)$$

$$-\overrightarrow{\text{grad}} G_m \in \partial\Phi_2(\vec{M}_m) \quad (4.107)$$

$$-\overrightarrow{\text{grad}} T \in \partial\Phi_3\left(\frac{\vec{q}}{T}\right) \quad (4.108)$$

Ce qui peut également s'exprimer selon les lois complémentaires suivantes :

$$\boldsymbol{\sigma}'_\beta = \frac{\partial\Phi_1}{\partial\dot{\boldsymbol{\epsilon}}_{vp}} \quad (4.109)$$

$$A_k = -\frac{\partial\Phi_1}{\partial\dot{V}_k} \quad (4.110)$$

$$\overrightarrow{\text{grad}} G_m = \frac{\partial\Phi_2}{\partial\vec{M}_m} \quad (4.111)$$

$$\overrightarrow{\text{grad}} T = -\frac{\partial\Phi_3}{\partial\frac{\vec{q}}{T}} \quad (4.112)$$

L'enjeu de la modélisation est maintenant de définir un potentiel d'état Ψ respectant les cadres thermodynamiques et physiques présentés, puis de définir les potentiels de dissipation afin de déterminer les lois complémentaires décrivant l'évolution des variables internes.

Le potentiel d'état Ψ est proposé dans le cas isotherme, sous les hypothèses des petites déformations et pour un milieu isotrope :

$$\begin{aligned} \Psi = \boldsymbol{\sigma}_0 : \boldsymbol{\epsilon}_e + m \Psi_m^0 + P^0 \left(\frac{m}{\rho_m^0} - \phi_{vp} \right) + \frac{1}{2} \boldsymbol{\epsilon}_e : \mathbb{C} : \boldsymbol{\epsilon}_e \\ - \left(\frac{m}{\rho_m^0} - \phi_{vp} \right) M b \epsilon_e^{vol} + \frac{1}{2} M \left(\frac{m}{\rho_m^0} - \phi_{vp} \right)^2 + U(V_k) \end{aligned} \quad (4.113)$$

Avec l'énergie libre $\Psi_m^0 = G_m^0 - \frac{P^0}{\rho_m^0}$ définie à l'état de référence, V_k le jeu de variables internes associé aux déformations irréversibles, $U(V_k)$ l'énergie stockée lors de l'évolution irréversible, M et b des paramètres de couplage liant la compressibilité des deux phases et \mathbb{C} le tenseur d'élasticité de Hooke apparent des deux phases. Ce qui donne directement l'expression des forces thermodynamiques associées par l'eq. 4.101.

L'enthalpie libre de la phase fluide est déterminée via l'équation d'état empirique de Tait, soit

$G_m^0 = G_m(P_0) = \frac{BC}{\rho_m^m}$, où B est le paramètre de Tait et C considéré comme une constante universelle.

Une fonction de surface de charge est introduite dans l'espace des contraintes, déterminant le champ de contrainte à partir duquel les mécanismes visqueux et irréversibles apparaissent, puis ensuite un potentiel d'écoulement plastique est introduit. Le modèle est confronté à des essais de traction simple (fig. 4.13) et de fluage (fig. 4.14). Ce modèle à 15 paramètres permet de reproduire avec succès le comportement en chargement monotone.

Néanmoins, cette modélisation, basée sur la partition entre une phase solide dure et une phase fluide molle, ne permet pas de déterminer l'évolution de la température en fonction de la sollicitation mécanique. De même, la prise en compte de sollicitations complexes, des couplages thermiques, mécaniques ou physico-chimiques n'est pas possible dans l'état. Le développement du modèle dans un cadre formel thermodynamique offrant la capacité, par la suite, d'introduire l'ensemble de ces couplages forts.

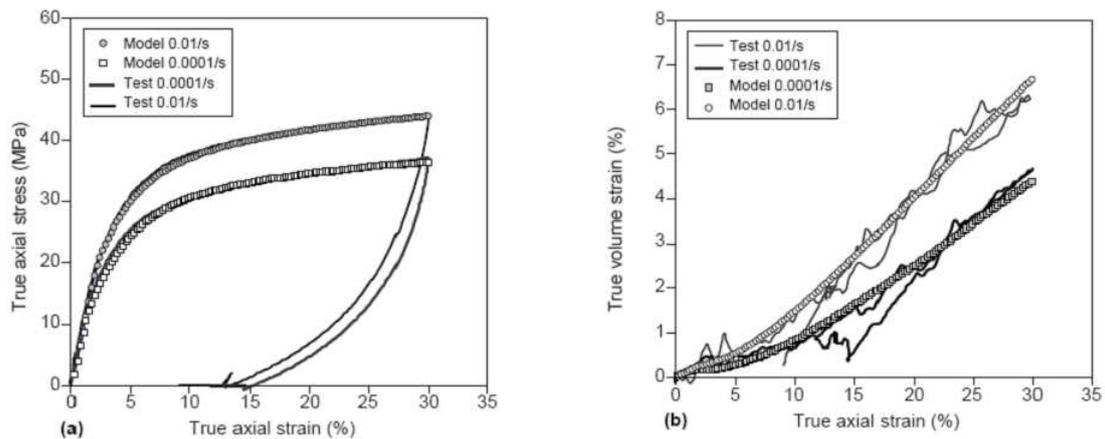


Figure 4.13 – Comparaison modèle et expérimental pour des essais de traction. (a) Courbes contrainte déformation. (b) Courbes variation de volume déformation.[58]

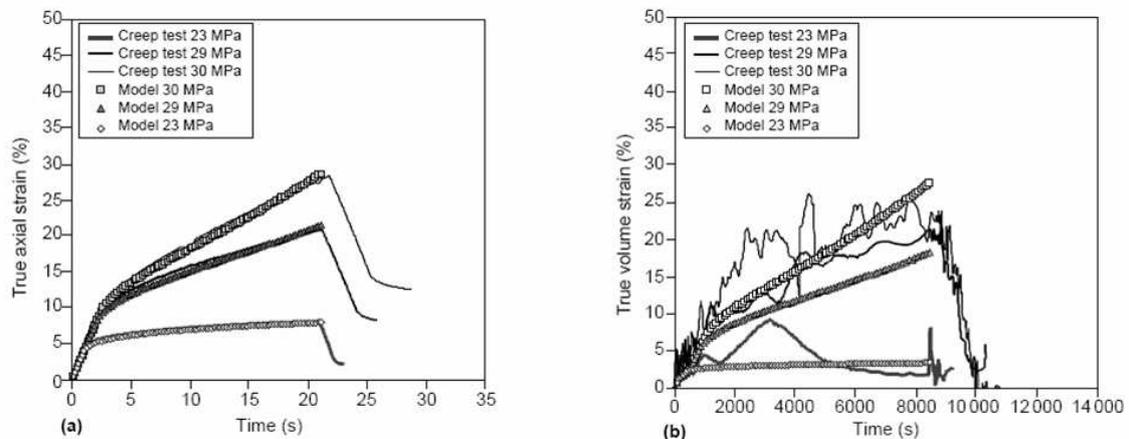


Figure 4.14 – Comparaison modèle et expérimental pour des essais de fluage. (a) Courbes déformation temps. (b) Courbes variation de volume déformation.[58]

La modélisation de la visco-plasticité a également été traitée, entre autre, par Bikard [60], dans le modèle dit de Bikard et al, et plus récemment par Temimi [10], dans le modèle de comportement développé au Centre de Mise en Forme des Matériaux. Ce modèle présente une partie élastique endommageable explicitée dans la partie suivante.

4.3.7.2 Comportement élasto-viscoplastique endommageable

Développé par Temimi ([10]) pour des polypropylènes, c'est un modèle de comportement isotrope, élastique endommageable en petites déformations, viscoplastique isotherme avec endommagement et écrouissage au-delà du seuil. Nous étudierons dans cette partie l'aspect comportement élastique endommageable.

Les analyses des propriétés mécaniques à faible déformation (analyse DMA) ont montré une faible contribution du module visqueux face au module élastique, l'hypothèse d'un comportement élastique linéaire a alors été posé. Un endommagement apparaît néanmoins dès les faibles déformations, et son formalisme, posé dans le cadre thermodynamique, est le suivant :

- Potentiel d'énergie libre élastique

Le matériau est supposé isotrope et linéaire dans son domaine élastique, le potentiel d'état élastique prend la forme suivante :

$$\rho\psi^e = \frac{1}{2} (\lambda(\epsilon_1^e)^2 + 4\mu\epsilon_{II}^e) \quad (4.114)$$

avec $\epsilon_1^e = [\text{Tr}(\epsilon_e)]^2$ premier invariant du tenseur des déformations élastiques et $\epsilon_{II}^e = \frac{1}{2}\text{Tr}(\epsilon_e^2)$ second invariant du tenseur des déformations élastiques. Avec le module de cisaillement élastique G et de compression hydrostatique K , l'expression du potentiel d'état devient :

$$\rho\psi^e = \frac{1}{2} (K(\epsilon_1^e)^2 + 4G\epsilon_{II}^{eD}) \quad (4.115)$$

- Loi d'état

La loi d'évolution est donnée par :

$$\boldsymbol{\sigma}_e = \rho \frac{\partial \psi^e}{\partial \epsilon_e} = K \text{Tr}(\epsilon_e) \mathbb{I} + 2G\epsilon_e^D \quad (4.116)$$

La prise en compte de l'endommagement comme un paramètre scalaire D conduit à une contrainte

effective $\tilde{\sigma}_e$ donnée par :

$$\tilde{\sigma}_e = \frac{K \text{Tr}(\epsilon_e) \mathbb{I} + 2G \epsilon_e^D}{1 - D} \quad (4.117)$$

L'endommagement isotrope est donc introduit via les variables effectives $\frac{V_k}{1-D}$, où l'endommagement prend la forme d'une variable interne scalaire D appartenant à l'intervalle $[0, 1]$, selon que le matériau soit vierge de défauts ou à l'état de ruine.

4.3.8 Modélisations hyperélastiques

Les modèles précédents sont écrits dans le cadre des hypothèses de petites transformations élastiques, et alors peu applicables aux comportements rencontrés aux températures et/ou vitesses immédiatement supérieures à la transition vitreuse.

D'autres auteurs ont développé des approches dans le cadre des grandes transformations pour modéliser le comportement des polymères amorphes proches de leur transition, ou rendre compte du durcissement observé en grandes déformations, dans le cas de comportement ductile.

Assez souvent, ces approches sont associées à l'utilisation de potentiels hyperélastiques, construits soit de manière phénoménologique, soit à partir de considérations basées sur les outils de la statistique de chaîne.

La première voie consiste à proposer une forme de potentiel ne dépendant que des invariants du tenseur de déformation \mathbb{C} 4.14. Les approches peuvent dépendre :

Du premier invariant :

- Néo-Hookeen

Approche faisant intervenir le premier invariant des déformations et une constante C_1 .

$$W = C_1(I_1 - 3) \quad (4.118)$$

- Yeoh

$$W = C_{10}(I_1 - 3) + C_{20}(I_1 - 3)^2 + C_{30}(I_1 - 3)^3 \quad (4.119)$$

Des deux premiers invariants :

- Mooney

Approche faisant intervenir deux coefficients élastiques C_1, C_2 et les invariants I_1, I_2 des déformations.

$$W = C_1(I_1 - 3) + C_2(I_2 - 3) \quad (4.120)$$

- Mooney-Rivlin

Approche qui généralise la précédente, en faisant intervenir les invariants I_1, I_2 des déformations et une infinité de coefficients élastiques.

$$W = \sum_{i=0, j=0}^{\infty} C_{ij}(I_1 - 3)^i (I_2 - 3)^j \quad (4.121)$$

· Biderman

$$W = C_{10}(I_1 - 3) + C_{01}(I_2 - 3) + C_{20}(I_1 - 3)^2 + C_{30}(I_1 - 3)^3 \quad (4.122)$$

· Hart-Smith

$$W = G \int \exp [k_1(I_1 - 3)^2] dI_1 + Gk_2 \ln \left(\frac{I_2}{3} \right) \quad (4.123)$$

Des extensions principales :

· Ogden

Avec μ et α constante matériau et où α_n peut prendre n'importe quelle valeur rationnelle positive ou négative.

$$W = \sum_{n=1}^N \frac{\mu_n}{\alpha_n} (\lambda_1^{\alpha_n} + \lambda_2^{\alpha_n} + \lambda_3^{\alpha_n} - 3) \quad (4.124)$$

A titre d'exemple, une application en grandes déformations est réalisée par Méo et al[61] dans le cadre de la généralisation d'un modèle de Poynting-Thomson (cf. 4.6(a)) en grande transformations, avec couplages thermomécaniques fort. L'inégalité de Clausius-Duhem prend la forme suivante :

$$\phi_0 = \left(\boldsymbol{\pi} - \frac{\partial \psi}{\partial \mathbf{F}} \right) : \dot{\mathbf{F}} - \rho_0 \left(s - \frac{\partial \psi}{\partial T} \right) \dot{T} - \rho_0 \frac{\partial \psi}{\partial \mathbb{C}_v} : \dot{\mathbb{C}}_v - \frac{1}{T} \vec{Q} \cdot \Delta T \geq 0 \quad (4.125)$$

Où $\boldsymbol{\pi}$ est le premier tenseur de Piola-Kirchhoff tel que $\boldsymbol{\sigma} = J^{-1} \boldsymbol{\pi} \mathbf{F}^T$, \vec{Q} est le flux de chaleur de Piola-Kirchhoff et \mathbb{C}_v est le tenseur des déformations anélastique de Cauchy-Green droit.

La loi d'évolution pour les contraintes et les lois complémentaires d'évolution pour les variables internes sont données par :

$$\boldsymbol{\pi} = \rho_0 \frac{\partial}{\partial \mathbf{F}} \psi(\mathbb{C}, \mathbb{C}_v, T) \quad (4.126)$$

$$s = - \frac{\partial \psi}{\partial T} \quad (4.127)$$

$$\rho_0 \frac{\partial}{\partial \mathbb{C}_v} \psi(\mathbb{C}, \mathbb{C}_v, T) = - \frac{\partial}{\partial \dot{\mathbb{C}}_v} \varphi^{int}(\dot{\mathbb{C}}_v) \quad (4.128)$$

$$\frac{\Delta T}{T} = \frac{\partial}{\partial \vec{q}} \varphi^{th}(\vec{q}) \quad (4.129)$$

Où φ est le pseudo-potential de dissipation.

L'énergie libre est postulée (analogie avec 4.2.5) répondre à une part incompressible hyperélastique de Gent-Thomas (cas particulier de Hart-Smith) pour la composante élastique ψ_e et une part Néo-Hookienne pour la composante anélastique ψ_v , où l'ensemble des paramètres matériaux sont thermo-

dépendants.

$$\psi_e = c_1(T)(I_1 - 3) + c_2(T) \ln \frac{I_2}{3} \quad (4.130)$$

$$\psi_v = a_1(T)(I_1 - 3) \quad (4.131)$$

L'énergie libre totale est donnée par l'expression suivante :

$$\rho_0 \psi(\mathbb{C}, \mathbb{C}_v, T) = \begin{cases} \rho_0(\psi_e(\mathbb{C}, T) + \psi_v(\mathbb{C}_v, T)) & \text{si } \det(\mathbb{C}) = 1 \\ \infty & \text{sinon} \end{cases} \quad (4.132)$$

Et l'expression du pseudo-potential est donnée par :

$$\varphi(\dot{\mathbb{C}}_v, T) = \begin{cases} \frac{1}{2} \nu(T) \dot{\mathbb{C}}_v : \dot{\mathbb{C}}_v & \text{si } \text{tr}(\dot{\mathbb{C}}_v \cdot \mathbb{C}_v^{-1}) = 0 \\ \infty & \text{sinon} \end{cases} \quad (4.133)$$

Les évolutions des coefficients thermo-dépendants c_1, c_2, a_1, ν sont données à la fig.4.15.

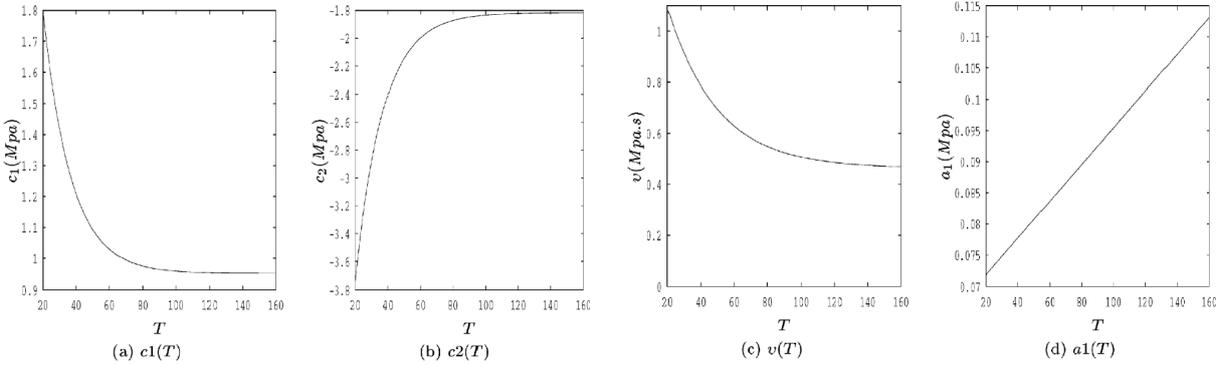


Figure 4.15 – Loi d'évolution des paramètres c_1, c_2, a_1, ν en fonction de la température. [61]

Dans le cas d'un modèle de Poynting-Thomson étendu en grandes déformations, les équations caractéristiques de la partie mécanique deviennent :

$$\begin{cases} \pi = 2\rho_0 \mathbf{F}_e \left[\left(\frac{\partial \psi_e}{\partial I_1^e} + \frac{\partial \psi_e}{\partial I_2^e} I_1^e \right) \mathbb{I} - \frac{\partial \psi_e}{\partial I_2^e} \mathbb{C}_e \right] \mathbf{F}_v^{-T} + p \text{cof } \mathbf{F} \\ \rho_0 \left[\mathbb{C} \left(\left(\frac{\partial \psi_e}{\partial I_1^e} + \frac{\partial \psi_e}{\partial I_2^e} I_1^e \right) \mathbb{I} - \frac{\partial \psi_e}{\partial I_2^e} \mathbb{C}_v^{-1} \cdot \mathbb{C} \right) \mathbb{C}_v^{-1} \right]^D + \rho_0 \frac{\partial \psi_v}{\partial I_1^v} \mathbb{C}_v^D + \nu [\mathbb{C}_v \cdot \dot{\mathbb{C}}_v]^D = 0 \\ \det(\mathbb{C}) = 1 \\ \text{tr}(\dot{\mathbb{C}}_v \cdot \mathbb{C}_v^{-1}) = 0 \end{cases} \quad (4.134)$$

Le problème thermique est gouverné par l'équation de la chaleur, qui, dans le cas d'un couplage

thermomécanique fort, prend la forme suivante :

$$\rho_0 C_s \dot{T} = -\text{div} \vec{Q} + \rho_0 \cdot r + D_s \quad (4.135)$$

Avec :

$C_s = T \frac{\partial s}{\partial T}$: capacité calorifique

$\rho_0 \cdot r$: le terme source

$D_s = \nu \dot{C}_v \cdot \dot{C}_v + \rho_0 T \left(\frac{\partial^2 \psi}{\partial T \partial C} : \dot{C} + \frac{\partial^2 \psi}{\partial T \partial C_v} : \dot{C}_v \right)$: est le source interne de chaleur par unité de volume, contenant le terme de dissipation thermique intrinsèque et la dépendance lié au couplage fort entre thermique et mécanique.

Ce modèle visco-hyperélastique a été implémenté numériquement dans un code de calcul éléments finis, où la partie mécanique est résolue par une méthode de pénalisation à intégration réduite, et la partie thermique par interpolation linéaire. Les résultats thermiques et mécaniques présentés fig.4.16 dans un cas de cisaillement, présentent une excellente corrélation avec les données expérimentales.

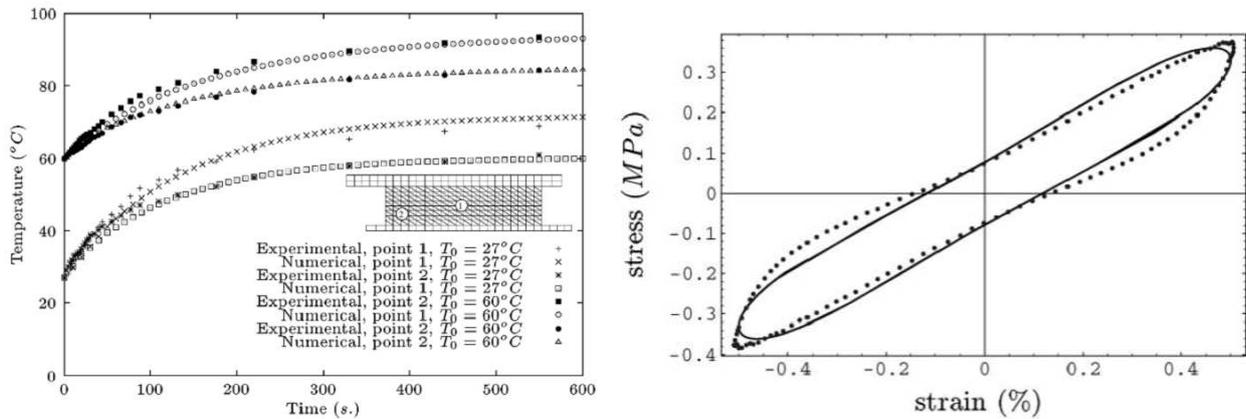


Figure 4.16 – Résultats thermiques et numériques pour un cas de cisaillement. Expérimental et numérique. [61]

Cette description mathématique macroscopique visco-hyperélastique occulte complètement les relations entre les propriétés mécaniques, les propriétés microstructurales et la physique du matériau. La prévision du comportement thermomécanique est cependant bonne et le formalisme présenté dans le modèle de Méo et al [61] respecte les lois de la thermodynamique.

4.3.9 Bilan

D'une manière générale, les approches rencontrées dans la littérature conduisent à une multiplication des paramètres de comportement, avec peu ou pas de sens physiques, dans des modèles souvent limités aux cas de sollicitations simples.

Malgré une certaine complexité, présentant des limitations qu'il conviendrait de lever, (voir Tableau 4.II), aucune modélisation ne se détache comme répondant à toutes nos attentes.

La listes n'est pas exhaustive concernant le comportement à l'état caoutchoutique, ([62, 63])

L'effort de développement nécessaire pour parvenir à un modèle de comportement prenant en compte les couplages thermomécaniques forts et valides sur une large gamme de vitesses et températures entraînerait une multiplication supplémentaire des paramètres matériaux. Cela pourrait même rendre leur identification impossible, ou très compliquée.

Par contre, le formalisme thermodynamique, appliqué pour les cas thermo-viscoélastique et viscoplastique, fournit un cadre strict à la modélisation, et sera utilisé dans la suite.

Modèles	Mots clés	Avantages	Inconvénients
Modèles macroscopiques			
Visco-Elastique	Intégrale et spectrales	Modélisation performante pour les cas linéaires	Très lourdes numériquement Pas de prise en compte des phénomènes thermiques
Thermo Visco-Elastique	PT, Zener, MSSM	Extension en grandes déformations Utilisation de variables internes	Pas de relation entre propriétés mécanique, microstructure et physique du matériau
	Lai	Bonne corrélation en charge et décharge Reflexion sur les origines physiques	Adaptés aux petites déformations exclusivement Pas de prise en compte de l'évolution des variables internes
Visco-Elastique Visco-Plastique	Roguet	Modèle tridimensionnel Validé pour des cas de chargement simples	Peu adapté en cas de décharge Faiblesse de la viscoplasticité
Elasto-Visco-Plastique	Johnson Cook		Pas de relations mécanique/microstructure Nombre de paramètres importants
Visco-hyperélastique	Méo	Modèle en grandes déformations Formalisme thermodynamique Couplages thermomécaniques forts Bonne correspondance avec les données expérimentales	Pas de relations mécanique/microstructure Modèle lourd numériquement Pas d'équivalence vitesse / température
Modèles microscopiques			
Visco-Elastique Visco-Plastique	Drozdov	Prédiction des chargements complexes Prise en compte des mouvements de chaînes	Complexité du modèle Reste adapté aux petites déformations
	Cangémi	Formalisme thermodynamique Adapté a des cas de chargements simples	Ecriture en petites déformations Modèle limité aux cas de chargement simple

Tableau 4.II – Bilan des différents modèles

4.4 Approche statistique de chaînes

Le développement des approches de statistiques de chaîne est basé sur une description statistique de l'énergie libre du système composé de chaînes moléculaires. Chaque chaîne est vue comme un système statistique dont l'entropie est contrôlée par la fonction densité de probabilité de conformations. Une conformation est contrôlée par l'écart bout à bout de la portion de chaîne considérée. La contrainte sur une portion de chaîne est alors reliée à son entropie unitaire et donc à son écart bout à bout. Pour représenter le matériau, on ajoute à cette hypothèse de base une conceptualisation des interconnexions entre chaînes (réseau ou tube de reptation par exemple), et une hypothèse sur la façon dont les déformations macroscopiques induisent un déplacement des bouts de chaînes (hypothèse affine sur les nœuds des réseaux par exemple).

Nous présentons dans cette partie quelques uns des travaux ayant conduit à des modélisations thermomécaniques du comportement de polymères semi cristallins.

4.4.1 Exemple de l'approche d'Arruda-Boyce

L'approche présentée par Arruda et Boyce [64]] utilise partiellement les théories de réseau et dérive des travaux de James, Guth et Treolar où chacune des chaînes du système d'étude est considérée obéir à une statistique Gaussienne. Ce modèle considère trois chaînes, incluses dans un tétraèdre déformable représentant les trois directions principales de déformation (Fig.4.17). L'expression de l'énergie prend la forme suivante :

$$W = \frac{1}{2}G (\lambda_1^2 + \lambda_2^2 + \lambda_3^2 - 3) \quad (4.136)$$

Avec $G = nkT$, n est la limite de Flory, où n est une densité de chaîne, k la constante de Boltzman et T la température absolue. On remarque la similitude entre cette forme et l'expression phénoménologique d'Ogden 4.124 ou le modèle néo Hookeen.

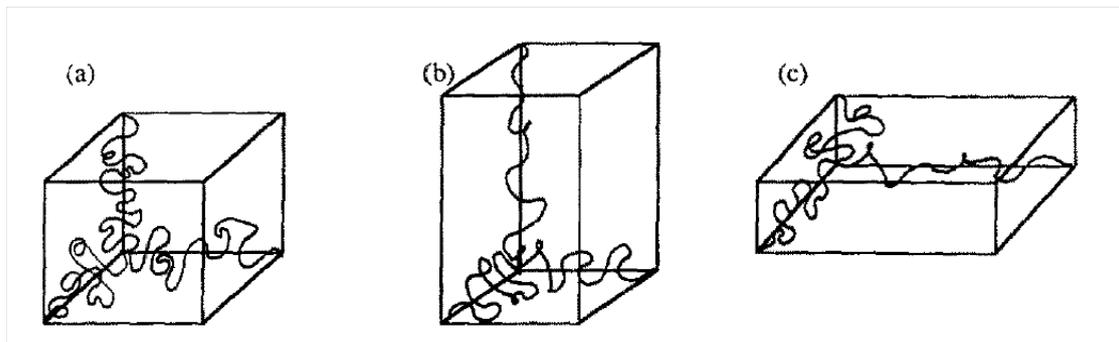


Figure 4.17 – Modèle élastomère à trois chaînes (a) non déformée. (b) extension uniaxiale. (c) extension biaxiale. [65]

Arruda et Boyce proposent une extension à huit chaînes non Gaussienne (Fig. 4.18) de la forme suivante :

$$W = nkT \left[\frac{1}{2}(I_1 - 3) + \frac{1}{20N}(I_1^2 - 9) + \frac{11}{1050N^2}(I_1^3 - 27) \right] + nkT \left[\frac{19}{7000N^3}(I_1^4 - 81) + \frac{519}{673750N^4}(I_1^5 - 243) \right] + \dots \quad (4.137)$$

Avec N le nombre de nœuds du réseau.

Ce modèle permet de reproduire correctement les données expérimentales de Treolar. Une extension est ensuite proposée par Arruda et Boyce [65], pour prendre en compte la sensibilité à la température en introduisant une thermo-dépendance pour la densité de chaîne n . Le modèle est écrit dans le cadre des grandes déformations, dans un formalisme à variables internes.

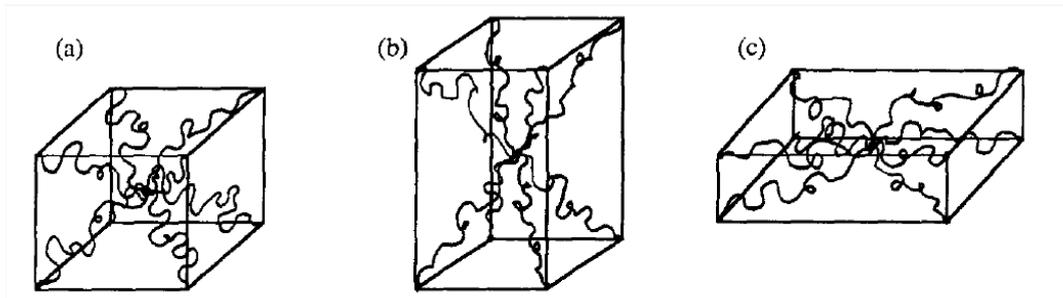


Figure 4.18 – Modèle élastomère à huit chaînes (a) non déformées. (b) extension uniaxiale. (c) extension biaxiale. [65]

Les équations explicitant cette thermo-dépendance sont basées sur les travaux de Raha et Bowden [66] et Boyce [67], qui postulent que les interactions du réseau, formées par la structure du polymère, sont équilibrées thermiquement :

$$n(T)N(T) = \text{constante} \quad (4.138)$$

$$n(T) = B - D \exp \frac{-E_a}{RT} \quad (4.139)$$

Avec B la partie du réseau non dissocié, D la partie du réseau dissocié avec la température, R la constante universelle des gaz parfaits et E_a l'énergie thermique de dissociation.

Les résultats, dans le cas de polymères caoutchoutiques, prédisent correctement les courbes contrainte-déformation et température-déformation. Ces résultats montrent que l'introduction de notion de statistique de chaîne dans la modélisation peut se faire sans alourdir la formulation, dans un cadre thermodynamique consistant, et minimisant le nombre de paramètres. L'origine physique de l'expression de l'énergie libre est donc une voie intéressante pour la construction thermodynamique d'un modèle de comportement prédictif thermomécanique.

On peut néanmoins se poser la question de la grandeur significative à utiliser pour décrire au mieux la thermodépendance. Les études de Urayama et al [68],[69],[70] introduisent une réflexion sur les dépendances couplés vitesse / température. Les auteurs utilisent avec succès cinq modèles de statistiques de chaînes pour la prédiction des courbes contraintes déformation.

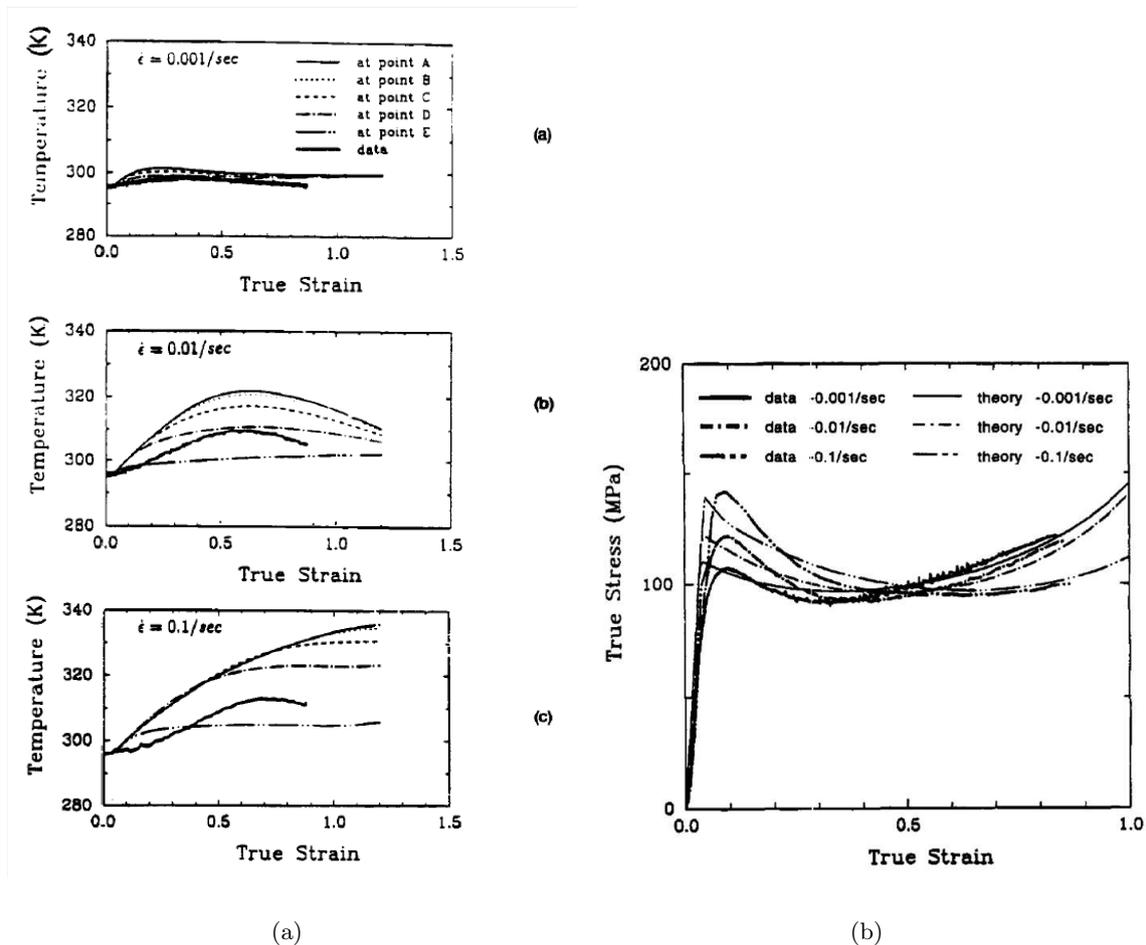


Figure 4.19 – Résultats en compression pour trois vitesses $10^{-3}, 10^{-2}, 10^{-1}$ (a) Courbes Température déformation vraie (b) Courbes contrainte vraie déformation vraie [65]

D'autres approches comme [71] introduisent dans un cadre formel thermodynamique en grandes transformation des théories statistiques thermodynamique hors équilibre. Ce sont des approches déjà rencontrées dans un cadre phénoménologique par Cangemi et al[58] où cette fois l'ensemble des lois sont thermiquement activées par l'utilisation de loi d'équivalence vitesse température d'Arrhenius et WLF.

Enfin, d'autres modèles ont été utilisés, c'est le cas du modèle d'Edwards et Vilgis [72] que nous avons choisi et qui est une extension du modèle de Ball et al [73].

4.4.2 Exemple de l'approche de Ball et al

Basée sur la théorie de Ball, cette approche suppose que le matériau se comporte comme un réseau de chaînes statistiques. Les chaînes interagissent entre elles en des points, les nœuds du réseau. A la différence des théories initiales ces nœuds ne sont pas tous des points de réticulations, mais certains points d'interactions gardent un certain degré de liberté et représenteraient les enchevêtrements.

La base est le concept d'anneaux glissants de Ball et al [73]. Les enchevêtrements sont considérés comme la source d'entropie lors des déformations de la phase amorphe d'un polymère. Les interactions entre chaînes sont représentées par des points discrets reliant les chaînes, mais conservant une mobilité, i.e. une certaine longueur de glissement dans des anneaux. Les chaînes sont supposées obéir à une statistique Gaussienne dans cette approche. La part de l'énergie libre due aux enchevêtrements et aux nœuds de réticulation s'écrit alors :

$$\frac{F}{kT} = \frac{1}{2}N_c \sum_{i=1}^3 \lambda_i^2 + \frac{1}{2}N_s \sum_{i=1}^3 \left[\frac{(1+\eta)\lambda_i^2}{1+\eta\lambda_i^2} + \ln(1+\eta\lambda_i^2) \right] \quad (4.140)$$

Avec λ_i les extensions principales dans les directions $i = 1, 2, 3$ et trois paramètres :

N_c : le nombre de points de réticulation ou de nœuds figés

N_s : le nombre de points d'enchevêtrement ou de nœuds mobiles

η : une mesure du glissement potentiel dans les nœuds d'enchevêtrement. Le cas $\eta = 0$ représente une distance de glissement nulle, et donc un réseau purement réticulé. Dans le cas $\eta = 1$ les enchevêtrements sont purement glissants.

C'est le modèle que Sweeney [74, 75, 76] a introduit comme élément élastique dans ses modèles pour représenter le comportement de polymères semi-cristallins. Dans [74], Sweeney et Ward introduisent un modèle de comportement valide pendant la transition vitreuse, sur une gamme large de vitesses de déformations. Il consiste en l'introduction d'une sensibilité du nombre de points d'enchevêtrement à la vitesse de déformation de la forme :

$$N_s kT = A + B \ln\left(\frac{\dot{\gamma}}{\gamma_0}\right) \quad (4.141)$$

Cette modification introduit une dépendance du module à la vitesse de déformation. Ce réseau moléculaire est mis en parallèle avec un élément visqueux, le tout en série avec un élément élastique isotrope 4.20 pour modéliser un corps viscoélastique.

Dans [75], les auteurs s'intéressent à un polypropylène à haute température, où la sensibilité à la

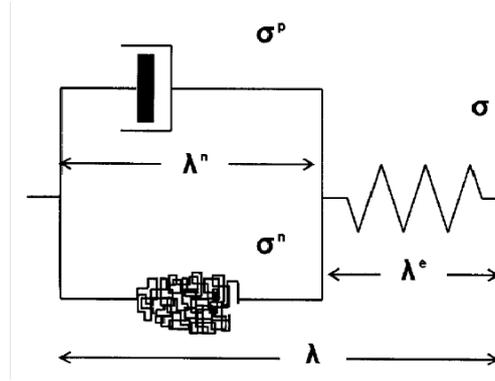


Figure 4.20 – Modèle à deux phases. Un élément visqueux en parallèle d'un réseau sensible à la vitesse de déformation. L'ensemble en série avec un élastique isotrope. [74]

température est moindre. Le modèle de Ball seul est employé, réécrit selon les invariants principaux des déformations I_1, I_2, I_3 . Soit la forme suivante de l'énergie libre :

$$W = \frac{1}{2}N_c^*I_1 + \frac{1}{2}N_s^* \left[\frac{(1+\eta)(I_1 + 2\eta I_2 + 3\eta^2)}{1 + \eta I_1 + \eta^2 I_2 + \eta^3} + \ln(1 + \eta I_1 + \eta^2 I_2 + \eta^3) \right] \quad (4.142)$$

Et l'expression de la contrainte, dérivant de l'équation 4.57 dans le cas uniaxial devient :

$$\sigma_{ii} = \lambda_i \frac{\partial W}{\partial \lambda_i} - p \quad (4.143)$$

Avec la loi d'évolution suivante sur la densité de nœuds d'enchevêtrement :

$$N_s^*(I_1) = \frac{N_{s0}^* - N_{s0}^\infty}{(I_1 - 2)^\beta} - N_{s0}^\infty \quad (4.144)$$

Dans [76], les auteurs utilisent le modèle de Ball écrit en fonction d'allongements effectifs. L'évolution du rayon d'une sphère rigide comme phase cristalline rigide est introduite. Cette évolution, fonction de la contrainte (au sens de Tresca) est définie par l'expression empirique suivante :

$$\frac{dR}{dt} = -(R - R_\infty)A(\exp(B\tau) - 1) \quad (4.145)$$

Avec R le rayon de la sphère, A, B, R_∞ des paramètres matériau et $\tau = (\sigma_{max} - \sigma_{min})$ un critère proche de la contrainte de Tresca, fonction des contraintes principales minimales et maximales.

L'expression des allongements effectifs est finalement donnée par :

$$\bar{\lambda}_i = \int_0^R \int_0^{\sqrt{R^2 - X_k^2}} \frac{\lambda_i - \sqrt{R^2 - X_j^2 - X_k^2}}{1 - \sqrt{R^2 - X_j^2 - X_k^2}} dX_j dX_k + \lambda_i \left(1 - \frac{1}{4}\pi R^2 \right) \{i, j, k\} = \{1, 2, 3\} \quad (4.146)$$

Les résultats fournis par les trois études permettent une excellente corrélation avec les données expérimentales pour les courbes contrainte déformation, mais l'évolution de la température n'est pas traitée.

Pourtant, afin de prendre en compte le durcissement structural aux fortes déformations, il apparaît utile de prendre en compte une extensibilité limite pour les chaînes, i.e. de lever l'hypothèse Gaussienne. C'est justement l'apport d'Edwards et Vilgis [72] dans leur généralisation du modèle de Ball.

D'autres modèles plus avancés sont utilisés en introduisant une limite d'extensibilité aux chaînes par l'introduction du concept de tube de courant dans la théorie précédente.

4.4.3 Exemple de l'approche d'Edwards-Vilgis

Le modèle d'Edwards-Vilgis [72] est posé dans le cadre de polymères enchevêtrés contraints par un certain nombre de nœuds de réticulation. Il a été utilisé avec succès dans de nombreux cas de modélisation viscoélastique, tels que ceux déjà introduits de Sweeney [77], Meissner et al[78] ou encore Marco [30] et Gorlier [4], pour des application en soufflage de bouteille ou encore Buckley et Jones [79], [80].

La part de l'énergie libre liée aux déformations élastiques est donnée par les auteurs sous la forme suivante :

$$\frac{F}{kT} = \frac{1}{2} \left(N_c \left[\frac{\sum_{i=1}^3 (1 - \alpha^2) \lambda_i^2}{1 - \alpha^2 \sum_{i=1}^3 \lambda_i^2} + \ln \left(1 - \alpha^2 \sum_{i=1}^3 \lambda_i^2 \right) \right] + N_s \left[\sum_{i=1}^3 \left(\frac{\lambda_i^2 (1 + \eta) (1 - \alpha^2)}{(1 + \eta \lambda_i^2) (1 - \alpha^2 \sum_{i=1}^3 \lambda_i^2)} + \ln(1 + \eta \lambda_i^2) \right) + \ln \left(1 - \alpha^2 \sum_{i=1}^3 \lambda_i^2 \right) \right] \right) \quad (4.147)$$

N_c : le nombre de points de réticulation ou la densité de nœuds permanents

N_s : le nombre de points d'enchevêtrement ou la densité de nœuds glissants

η : la mesure du glissement potentiel dans les nœuds d'enchevêtrement

α : le potentiel d'extensibilité de la chaîne. Avec $\alpha = \frac{l}{a}$, où l est la longueur statistique d'une chaîne isolée et a la distance entre deux points du réseau. Si statistiquement il y a n segments de chaîne, alors $a^2 = nl^2$. Et la limite d'extensibilité du réseau est alors :

$$\lambda_{max} \approx \frac{nl}{a} = \sqrt{n} = \alpha^{-1}.$$

Les approches statistiques d'Arruda Boyce à 8 chaînes et leur généralisation en "full network" par Wu et van der Giessen ont été comparée par Meissner et al[78] et Sweeney [77] à une théorie de réseau complète, le modèle d'Edwards-Vilgis [72].

Ce dernier est capable de modéliser un éventail beaucoup plus large de comportements en raison de capacité de mobilité de chaînes, donc d'enchevêtrements au sein du réseau des macromolécules. Il est par contre nécessaire d'apporter des modifications pour une description plus large du modèle.

Ce potentiel est quelquefois utilisé comme simple "source" d'hyper élasticité dans des modèles analogiques en association avec d'autres éléments source de viscosité ou de plasticité pour reproduire des comportements complexes.

Ainsi, est-il utilisé par Marco [30] (dans le cas limite $N_c = 0$, ce qui n'est peut être pas consistant avec le modèle initial) pour modéliser le comportement d'un PET dans le cadre d'un modèle type Zener.

L'auteur obtient de bon résultats sur une large gamme de vitesses et de températures, en imposant une loi d'évolution sur N_s de type Sweeney 4.141 dépendante en vitesse et une sensibilité de l'inextensibilité α à la température. Le développement d'une approche couplée thermodynamique est ensuite nécessaire pour prendre en compte l'évolution de variables internes, et donc de l'évolution de la microstructure. L'utilisation du potentiel hyperélastique seul dans cette formulation semble être pourtant à même, seule, de reproduire fig.4.21 le comportement mécanique d'un chargement bi-axe.

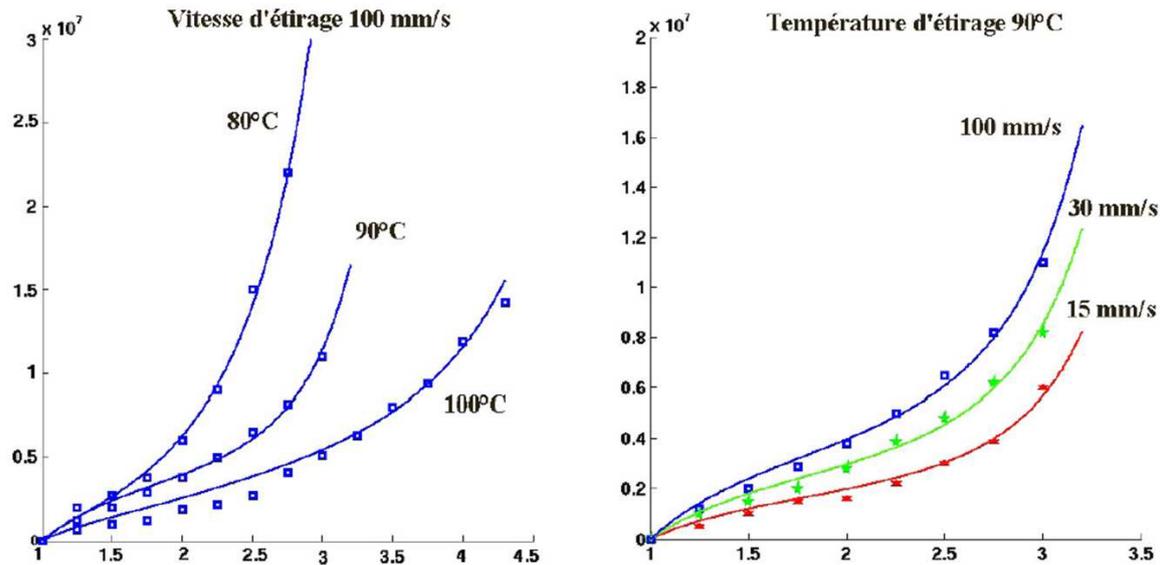


Figure 4.21 – Identification purement hyperélastique pour des sollicitations bi-axiales à vitesses ou températures constantes. [30]

Les travaux de Buckley et Jones, considèrent une partition de la déformation en une part vitreuse et une part caoutchoutique. Leur modèle est adapté de la transition vitreuse à $T_\alpha + 60$ °C.

Gorlier s'est inspiré de cette modélisation en ajoutant un élément supplémentaire représentant le taux d'étirage d'activation du réseau. (fig.4.22 et fig.4.23).

La corrélation expérimentale et modèle est bonne pour un nombre de paramètres limités, conservant un sens physique fort.

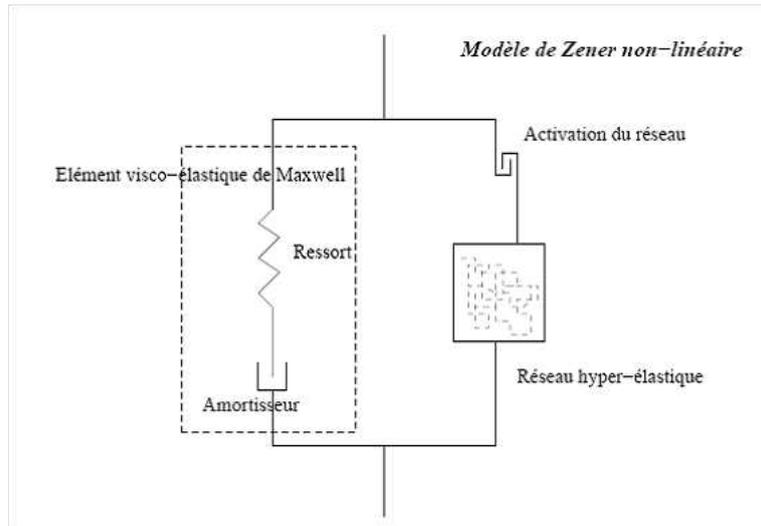


Figure 4.22 – Représentation analogique du modèle hybride vitreux caoutchoutique utilisé par Gorlier. [4]

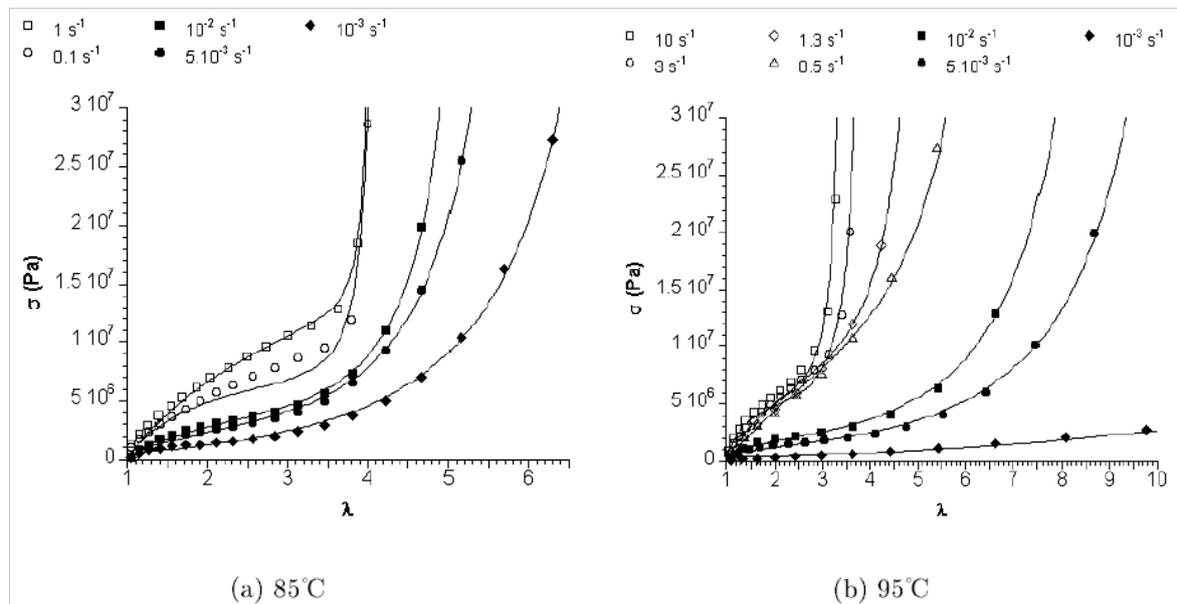


Figure 4.23 – Courbes contraintes vraies déformation vraies pour différents essais de traction uniaxiaux à différentes vitesses de déformation et température. [4]

Plus récemment, Billon propose d'introduire une part viscoélastique dans le modèle d'Edward Vilgis, via une évolution de ses paramètres, contrôlée par l'énergie élastique emmagasinée dans le réseau [81, 82, 83]. Cette approche permet, sans adjoindre d'autres éléments constitutifs, de reproduire les effets viscoélastiques et viscoplastiques dans des polymères amorphes 4.24. Nous détaillerons cette approche dans la suite du document puisque c'est elle que nous étendrons aux polymère semi-cristallin de notre étude.

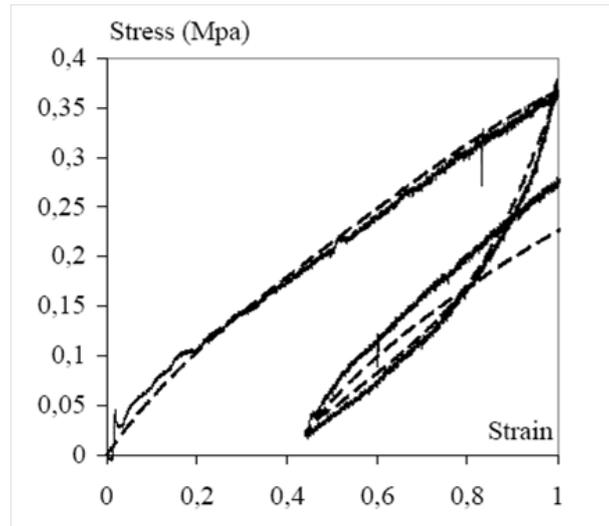


Figure 4.24 – Modèle de Billon [c] : Comparaison expérience (traits pleins) et calcul (pointillés) dans le cas d'une traction cyclique réalisée à 1.10^3 s^{-1} et 115°C sur un HIPS

4.5 Bilan

Dans la première partie, nous avons présenté le formalisme thermodynamique à variables internes, permettant de développer des modèles de comportement thermomécanique avec couplages forts ouverts à la prise en compte des mécanismes microstructuraux. Ce cadre respecte les équations de la physique, et permet l'usage de modèles consistants. Le modèle développé dans la suite de cette étude le sera dans ce cadre thermodynamique.

Nous avons ensuite vu différentes approches permettant de reproduire le comportement mécanique des polymères avec une bonne correspondance, mais les effets thermiques sont souvent négligés. Quand ils ne le sont pas, il est rare que les couplages forts soient considérés.

Il est indispensable, dans un modèle couplé, de prédire l'évolution des paramètres en fonction de la température d'une part, mais également de la vitesse de déformation d'autre part. C'est ce qui est amorcé par les approches les plus avancées, mais non totalement réalisé.

La vitesse équivalente à une température de référence $a_T \dot{\epsilon}_{eq}$ nous apparaît comme une voie à explorer, qui a déjà prouvé son efficacité sur des polymères amorphes.

Des différentes approches présentées, les travaux d'Urayama [69], Sweeney, Meissner [78], Marco [30] ou Gorlier [4], identifient le modèle d'Edwards-Vilgis comme approche statistique, permettant de développer un modèle de comportement minimisant le nombre de paramètres, tout en conservant un sens physique fort.

La théorie de Lai[48], où l'origine de l'anélasticité (4.3.4) consiste à considérer que le réseau accommode d'abord un incrément de travail mécanique, sous la forme d'une déformation élastique, puis relaxe un peu de cette énergie via le glissement de certaines chaînes, a aussi retenu notre attention.

L'approche de Billon utilise à la fois le modèle d'Edwards et Vilgis et un concept proche de celui de Lai, puisque l'anélasticité résulte d'un transfert d'énergie depuis l'énergie élastique vers un processus d'évolution des paramètres d'un réseau. Ce concept étant introduit dans un modèle physique de statistique de chaîne.

Nous construirons notre modèle de comportement thermomécanique sur cette base, en nous appuyant sur le formalisme thermodynamique en grandes transformations.

CHAPITRE 5

MODÉLISATION THERMOMÉCANIQUE

CETTE partie traite du modèle de comportement thermomécanique global, visco-hyperélastique, avec un sens physique fort, développé dans cette étude doctorale.

Dans l'étude bibliographique, nous avons balayé un large spectre de modèles de comportement utilisés dans le cas des polymères amorphes et semi-cristallins. Notre attention s'est portée sur ceux étant les plus à même de reproduire le comportement fortement couplé mécaniquement et thermiquement. Les modèles énergétiques de statistique de chaînes se sont avérés être ceux présentant un sens physique fort, tout en garantissant une prévision fiable du comportement. Les études de Sweeney [74, 76, 77] présentaient un comparatif entre différents modèles énergétiques. Le modèle apportant le plus de souplesse, avec une grande précision était celui d'Edwards-Vilgis. Plus récemment, Billon [24, 25, 26, 81, 82, 83, 84, 85] a utilisé un potentiel d'Edwards-Vilgis modifié pour reproduire les phénomènes d'anélasticité. Nous utiliserons ses travaux pour étendre cette approche unidimensionnelle à une modélisation fortement couplée thermiquement, tridimensionnelle, dans un cadre formel consistant.

Les essais mécaniques ont montré un comportement très complexe, à la fois viscoélastique, viscoplastique et hyperélastique. Les deux premières composantes sont difficilement discernables dans le cas d'anélasticité aux temps longs. On a alors décidé de mettre en place cette modélisation en premier lieu dans un cadre purement visco-hyperélastique pour confronter l'approche de Billon à notre matériau.

L'objectif de l'étude était de mettre en place un modèle de comportement global, sur une large gamme de vitesse de déformation et de température. La grandeur expérimentale $a_T \dot{\epsilon}_{eq}$ validée comme un paramètre thermodynamique au chap 3 a été naturellement intégrée comme paramétrisation de l'énergie.

Dans le cas global, nous avons raisonné sur le devenir des grandeurs en fonction des conditions initiales en vitesse et température d'une part, mais également de l'effet d'une évolution thermique ou énergétique sur l'évolution même de ces grandeurs d'autre part. Les lois d'évolution sont introduites dans l'aspect global du comportement.

Les différentes approches de validation sont présentées dans cette partie, en s'appuyant en permanence sur un raisonnement physique, et en tenant compte du garde fou théorique qui est la thermodynamique des processus irréversibles.

5.1 Modélisation visco-hyperélastique du matériau

L'étude bibliographique portant sur la modélisation du comportement thermomécanique des polymères a présenté différentes approches. Les approches classiquement utilisées pourraient nous permettre de réaliser une modélisation efficace de notre matériau. Mais la non-linéarité du comportement, combinée à sa forte dépendance à la vitesse de déformation et à la température, auraient nécessité une modélisation très complexe et sans doute de nombreux paramètres difficiles à identifier. Nous avons décidé de favoriser une approche fondamentalement différente, en conservant un sens physique fort à notre modélisation, en nous appuyant sur les travaux récents [74, 76, 77, 85] de l'hyperélasticité des réseaux amorphes.

Billon utilise le modèle hyperélastique d'Edwards-Vilgis (4) comme l'approche moléculaire permettant de développer un modèle de comportement minimisant le nombre de paramètres, tout en conservant un sens physique fort. Son approche où l'anélasticité résulte d'un transfert d'énergie depuis l'énergie élastique vers un processus d'évolution des paramètres d'un réseau est présentée dans la suite, et intégrée dans un cadre formel en grandes déformations.

5.1.1 Forme de l'énergie W

Le potentiel d'Edwards-Vilgis est introduit par les auteurs [72] dans un cas isotrope, incompressible et isotherme. Ce cadre général est conservé dans cette étude, et le modèle sera donc écrit à une température de référence. Ayant constaté l'équivalence temps température sur le polymère considéré, on ramènera toute modification de température à une modification de vitesse de déformation à la température de référence.

Le matériau est supposé pouvoir être représenté, à tout moment, par un réseau statistique équivalent, portant une contrainte qui dérive d'un potentiel hyperélastique.

Le potentiel d'Edwards-Vilgis est choisi comme densité d'énergie élastique, et s'écrit, en fonction des allongements élastiques principaux λ_i^e , ($i = 1, 2, 3$) :

$$w = \frac{1}{2}kT \left(N_c \left[\frac{\sum_{i=1}^3 (1 - \alpha^2) \lambda_i^{e2}}{1 - \alpha^2 \sum_{i=1}^3 \lambda_i^{e2}} + \ln \left(1 - \alpha^2 \sum_{i=1}^3 \lambda_i^{e2} \right) \right] + N_s \left[\sum_{i=1}^3 \left(\frac{\lambda_i^{e2} (1 + \eta) (1 - \alpha^2)}{(1 + \eta \lambda_i^{e2}) (1 - \alpha^2 \sum_{i=1}^3 \lambda_i^{e2})} + \ln(1 + \eta \lambda_i^{e2}) \right) + \ln \left(1 - \alpha^2 \sum_{i=1}^3 \lambda_i^{e2} \right) \right] \right) \quad (5.1)$$

Par définition des invariants élastiques (4.41 et suivants), ce potentiel peut être réécrit sous la

forme :

$$w = \frac{1}{2}kT \left(N_c \left[\frac{(1-\alpha^2)I_1^e}{1-\alpha^2I_1^e} + \ln(1-\alpha^2I_1^e) \right] + N_s \left[\frac{(1+\eta)(1-\alpha^2)}{1-\alpha^2I_1^e} \frac{(I_1^e + 2\eta I_2^e + 3\eta^2 I_3^e)}{(1+\eta I_1^e + \eta^2 I_2^e + \eta^3 I_3^e)} + \ln(1+\eta I_1^e + \eta^2 I_2^e + \eta^3 I_3^e) + \ln((1-\alpha^2I_1^e)) \right] \right) \quad (5.2)$$

On se place dans le cas incompressible, soit $I_3^e = 1$. La densité d'énergie devient donc :

$$w = \frac{1}{2}kT \left(N_c \left[\frac{(1-\alpha^2)I_1^e}{1-\alpha^2I_1^e} + \ln(1-\alpha^2I_1^e) \right] + N_s \left[\frac{(1+\eta)(1-\alpha^2)}{1-\alpha^2I_1^e} \frac{(I_1^e + 2\eta I_2^e + 3\eta^2)}{(1+\eta I_1^e + \eta^2 I_2^e + \eta^3)} + \ln(1+\eta I_1^e + \eta^2 I_2^e + \eta^3) + \ln((1-\alpha^2I_1^e)) \right] \right) \quad (5.3)$$

L'énergie W peut ainsi s'écrire en fonction de deux contributions, w_c et w_s , portées respectivement par les points de réticulations N_c et les points d'enchevêtrements N_s :

$$w = \frac{1}{2}.kT. (N_c w_c + N_s w_s) \quad (5.4)$$

La part liée aux points de réticulations n'est fonction que du premier invariant I_1^e des élongations élastiques et de l'inextensibilité des chaînes. La seconde part est, quand à elle, plus complexe, et fonction des deux invariants des déformations et du paramètre de glissement η :

$$w_c = \frac{(1-\alpha^2)I_1^e}{1-\alpha^2I_1^e} + \ln(1-\alpha^2I_1^e) \quad (5.5)$$

$$w_s = \frac{(1+\eta)(1-\alpha^2)}{1-\alpha^2I_1^e} \frac{(I_1^e + 2\eta I_2^e + 3\eta^2)}{(1+\eta I_1^e + \eta^2 I_2^e + \eta^3)} + \ln(1+\eta I_1^e + \eta^2 I_2^e + \eta^3) + \ln((1-\alpha^2I_1^e)) \quad (5.6)$$

5.1.2 Anélasticité entropique

L'anélasticité du polymère amorphe résulte en une évolution dans la topologie et/ou le nombre des enchevêtrements les plus "mobiles" du réseau équivalent. Les points de forte interaction entre chaînes, dits de réticulation, ont quand à eux une durée de vie très largement supérieure à l'échelle de temps

de la sollicitation.

Dans le cadre du modèle de Edward et Vilgis cela produirait une augmentation du paramètre de glissement η . Toutefois, cette variation seule impacterait directement l'énergie du système et n'assurerait pas le respect des principes thermodynamiques. Pour conserver au système une énergie constante, il faut admettre qu'un processus physique prend place en parallèle, compensant cette évolution. Ce processus est une relaxation d'une partie de l'énergie élastique emmagasinée dans le réseau, c'est-à-dire une relaxation d'une partie de la déformation du réseau. C'est cette relaxation qui serait la source d'anélasticité.

De manière conceptuelle, on peut imaginer qu'à chaque instant le matériau sollicité absorbe de manière élastique l'incrément d'énergie mécanique qui lui est appliquée et en restitue une part pour "réorganiser" ses enchevêtrements, i.e. augmenter le paramètre η et activer tout autre processus supplémentaire que l'on pourrait envisager.

Ceci s'écrit de manière générique :

$$N_s \frac{\partial w_s}{\partial \eta} \dot{\eta} + \Delta + \sum_{i=1,3} \left(N_s \frac{\partial w_s}{\partial I_i^e} + N_c \frac{\partial w_c}{\partial I_i^e} \right) \frac{\partial I_i^e}{\partial t} = 0 \quad (5.7)$$

Où Δ la part d'énergie consommée à autre chose que du désenchevêtrement (par exemple un échauffement).

Le cas limite unidimensionnel est plus simple à concevoir :

$$N_s \frac{\partial w_s}{\partial \eta} \dot{\eta} + \Delta + \sum_{i=1,3} \left(N_s \frac{\partial w_s}{\partial \epsilon_e} + N_c \frac{\partial w_c}{\partial \epsilon_e} \right) \frac{\partial \epsilon_e}{\partial t} = N_s \frac{\partial w_s}{\partial \eta} \dot{\eta} + \Delta - \sum_{i=1,3} \left(N_s \frac{\partial w_s}{\partial \epsilon_e} + N_c \frac{\partial w_c}{\partial \epsilon_e} \right) \frac{\partial \epsilon_a}{\partial t} = 0 \quad (5.8)$$

Avec respectivement ϵ_e et ϵ_a les parts élastique et anélastique de la déformation.

La variation du paramètre de glissement η , sous forme d'une cinétique d'évolution $\dot{\eta}$ introduit une capacité de relaxation du réseau sollicité mécaniquement. La cinétique d'évolution proposée est fonction de l'énergie élastique stockée à chaque instant, dans le sens où un réseau plus contraint se désenchevêtre plus rapidement. En d'autres termes, l'anélasticité est fonction, d'une part de l'énergie élastique instantanée stockée dans le matériau, et d'autre part de l'historique de l'évolution du paramètre de glissement $\dot{\eta}$.

Cette cinétique d'évolution est posée, en première approximation, par :

$$\dot{\eta} = z_p \left(e^{\Delta w} - 1 \right) \quad (5.9)$$

Où :

z_p est un paramètre matériau représentant "la force entropique" des nœuds d'enchevêtrement. Ce paramètre contrôle l'évolution du glissement. En accord avec le cadre thermodynamique, il est fonction des variables d'état. On le suppose fonction de la température et paramétré par $\dot{\epsilon}$:

$$z_p = f(T, \dot{\epsilon}) = f(a_T \dot{\epsilon}_{eq}) \quad (5.10)$$

Δw est, quant à lui, l'énergie élastique associée à un enchevêtrement :

$$\Delta w = w_s(I_1^e, I_2^e, \eta) - w_s(I_1^e = 3, I_2^e = 3, \eta) \quad (5.11)$$

Le concept "d'anélasticité entropique" étant introduit, nous présentons ensuite l'adaptation de ce raisonnement en statistique de chaîne dans un cadre thermodynamique consistant.

5.1.3 Expression de Clausius-Duhem

Dans cette partie, nous présentons les équations constitutives pour la modélisation de la phase amorphe de notre matériau.

On part de l'inégalité de Clausius-Duhem, donnée au chap. 4 eq. 4.6, afin d'introduire les équations constitutives du matériau dans un cadre thermodynamique fort. Soit la dissipation intrinsèque :

$$\phi_{int} = \boldsymbol{\sigma} : \mathbb{D} - \frac{1}{J} \left(\dot{w} + \rho_0 s \dot{T} \right) \geq 0 \quad (5.12)$$

On postule l'existence d'une densité d'énergie w de la forme Edwards-Vilgis (eq. 5.2) respectant les considérations physiques. Cette énergie est à variables internes de la forme suivante :

$$w = w(\mathbb{C}_e, \eta, T) \quad (5.13)$$

Soit :

$$\dot{w} = \frac{\partial w}{\partial \mathbb{C}_e} : \dot{\mathbb{C}}_e + \frac{\partial w}{\partial \eta} \dot{\eta} + \frac{\partial w}{\partial T} \dot{T} \quad (5.14)$$

L'expression est introduite dans la dissipation intrinsèque :

$$\phi_{int} = \boldsymbol{\sigma} : \mathbb{D} - \frac{1}{J} \left(\frac{\partial \bar{w}}{\partial \mathbf{C}_e} : \dot{\mathbf{C}}_e + \frac{\partial w}{\partial \eta} \dot{\eta} + \frac{\partial w}{\partial T} \dot{T} + \rho_0 s \dot{T} \right) \geq 0 \quad (5.15)$$

En remplaçant le taux de déformation \mathbb{D} donnée par eq. 4.37 dans la dissipation :

$$\phi_{int} = \boldsymbol{\sigma} : \left(\mathbb{D}_e + (\mathbf{F}_e \mathbf{l}_v \mathbf{F}_e^{-1})_{sym} \right) - \frac{1}{J} \left(\frac{\partial \bar{w}}{\partial \mathbf{C}_e} : \dot{\mathbf{C}}_e + \frac{\partial w}{\partial \eta} \dot{\eta} + \frac{\partial w}{\partial T} \dot{T} + \rho_0 s \dot{T} \right) \geq 0 \quad (5.16)$$

Avec $\dot{\mathbf{C}}_e = 2\mathbf{F}_e^T \mathbb{D}_e \mathbf{F}_e$ et sous les hypothèses d'incompressibilité $J = 1$, l'expression suivante de la dissipation intrinsèque est obtenue :

$$\phi_{int} = \boldsymbol{\sigma} : \left(\mathbb{D}_e + (\mathbf{F}_e \mathbf{l}_v \mathbf{F}_e^{-1})_{sym} \right) - \left(\frac{\partial w}{\partial \mathbf{C}_e} : (2\mathbf{F}_e^T \mathbb{D}_e \mathbf{F}_e) + \frac{\partial w}{\partial \eta} \dot{\eta} + \frac{\partial w}{\partial T} \dot{T} + \rho_0 s \dot{T} \right) \geq 0 \quad (5.17)$$

5.1.4 Entropie

Par respect du postulat de Boltzmann, on regroupe les termes d'origine thermique dans 5.17 :

$$\frac{\partial w}{\partial T} \dot{T} = -\rho_0 s \dot{T} \quad (5.18)$$

D'où l'expression de l'entropie s :

$$s = -\frac{1}{\rho_0} \frac{\partial w}{\partial T} \quad (5.19)$$

L'introduction de la vitesse équivalente à une température de référence $a_T \dot{\epsilon}_{eq}$ comme paramétrisation s'écrit dans le cas de la densité d'énergie :

$$W(T; \dot{\epsilon}) = W(T; a_T(T) \dot{\epsilon}_{eq}) \quad (5.20)$$

L'expression de l'entropie prend alors la forme suivante :

$$s = -\frac{1}{\rho_0} \frac{\partial w}{\partial T} - \frac{1}{\rho_0} \frac{\partial w}{\partial a_T(T) \dot{\epsilon}_{eq}} \frac{\partial a_T(T) \dot{\epsilon}_{eq}}{\partial T} \quad (5.21)$$

Dans le cas où W ne dépendrait pas explicitement de la température, alors $\frac{\partial w}{\partial T} = 0$ et l'entropie prend la forme réduite :

$$s = -\frac{1}{\rho_0} \frac{\partial w}{\partial a_T \dot{\epsilon}_{eq}} \frac{\partial a_T \dot{\epsilon}_{eq}}{\partial T} \quad (5.22)$$

En considérant une forme de loi WLF dépendant exclusivement de la température T pour l'expres-

sion du facteur de décalage $a_T(T)$, on obtient l'expression d'entropie suivante :

$$s = -\frac{1}{\rho_0} \frac{\partial W}{\partial a_T \dot{\epsilon}_{eq}} \dot{\epsilon}_{eq} \frac{da_T}{dT} \quad (5.23)$$

5.1.5 Contrainte

L'expression de la contrainte, dérivant de l'énergie élastique de déformation fonction de la dérivée des invariants, est donnée classiquement par l'équation 4.58. Le détails du calcul des dérivées des invariants est donné annexe I :

$$\boldsymbol{\sigma}^{\text{TOT}} = 2\mathbf{F}_e \left(\frac{\partial W}{\partial I_1^e} \frac{\partial I_1^e}{\partial \mathbf{C}_e} + \frac{\partial W}{\partial I_2^e} \frac{\partial I_2^e}{\partial \mathbf{C}_e} \right) \mathbf{F}_e^T - p' \mathbb{I} \quad (5.24)$$

5.1.6 Forces thermodynamiques

Une fois les termes d'origine thermique et de déformation élastique simplifiés dans l'expression de la dissipation intrinsèque (voir annexe I), on obtient une forme réduite de l'eq. 5.17 :

$$\phi_{int} = \boldsymbol{\sigma} : (\mathbf{F}_e \mathbf{l}_v \mathbf{F}_e^{-1})_{sym} - \frac{\partial W}{\partial \eta} \dot{\eta} \geq 0 \quad (5.25)$$

En utilisant l'expression de la contrainte $\boldsymbol{\sigma} = 2 \left(\mathbf{F}_e \frac{\partial W}{\partial \mathbf{C}_e} \mathbf{F}_e^T \right)$, explicité en annexe I.8, on a l'expression suivante de la dissipation intrinsèque :

$$\phi_{int} = 2 \left(\mathbf{F}_e \frac{\partial W}{\partial \mathbf{C}_e} \mathbf{F}_e^T \right) : \frac{1}{2} (\mathbf{F}_e \mathbf{l}_v \mathbf{F}_e^{-1} + \mathbf{F}_e^{-T} \mathbf{l}_v^T \mathbf{F}_e^T) - \frac{\partial W}{\partial \eta} \dot{\eta} \geq 0 \quad (5.26)$$

On se rappelle que :

$$\mathbf{F}_e \frac{\partial W}{\partial \mathbf{C}_e} \mathbf{F}_e^T : \mathbf{F}_e \mathbf{l}_v \mathbf{F}_e^{-1} = \mathbf{F}_e \frac{\partial W}{\partial \mathbf{C}_e} \mathbf{F}_e^T \mathbf{F}_e^{-T} : \mathbf{F}_e \mathbf{l}_v \quad (5.27)$$

$$= \mathbf{F}_e^T \mathbf{F}_e \frac{\partial W}{\partial \mathbf{C}_e} : \mathbf{l}_v \quad (5.28)$$

$$= \mathbb{C}_e \frac{\partial W}{\partial \mathbf{C}_e} : \mathbf{l}_v \quad (5.29)$$

De même :

$$\mathbf{F}_e \frac{\partial W}{\partial \mathbf{C}_e} \mathbf{F}_e^T : \mathbf{F}_e^{-T} \mathbf{l}_v^T \mathbf{F}_e^T = \mathbf{F}_e \frac{\partial W}{\partial \mathbf{C}_e} \mathbf{F}_e^T \mathbf{F}_e : \mathbf{F}_e^{-T} \mathbf{l}_v^T \quad (5.30)$$

$$= \frac{\partial W}{\partial \mathbf{C}_e} \mathbf{F}_e^T \mathbf{F}_e : \mathbf{l}_v^T \quad (5.31)$$

$$= \frac{\partial W}{\partial \mathbf{C}_e} \mathbb{C}_e : \mathbf{l}_v^T \quad (5.32)$$

Après regroupement des termes symétriques, et posant l'expression du taux de déformation anélastique $\mathbb{D}_v = \frac{1}{2} (\mathbf{l}_v + \mathbf{l}_v^T)$, la forme de la dissipation intrinsèque réduite est donnée par l'équation suivante :

$$\phi_{int} = 2\mathbb{C}_e \frac{\partial w}{\partial \mathbb{C}_e} : \mathbb{D}_v - \frac{\partial w}{\partial \eta} \dot{\eta} \geq 0 \quad (5.33)$$

Avec les forces thermodynamiques associées suivantes :

$$A^{\mathbb{D}_v} = 2\mathbb{C}_e \frac{\partial w}{\partial \mathbb{C}_e} - q' \mathbb{I} \quad (5.34)$$

$$A^\eta = -\frac{\partial w}{\partial \eta} \quad (5.35)$$

Où q' est une extra-pression indéterminée par la loi de comportement, au même titre que p' .

D'où l'expression de la dissipation intrinsèque :

$$\phi_{int} = A^{\mathbb{D}_v} : \mathbb{D}_v + A^\eta \dot{\eta} \geq 0 \quad (5.36)$$

5.1.7 Coefficient de Taylor-Quinney

Nous pouvons poser qu'une partie de l'énergie dissipée l'est sous forme de chaleur, en plus de celle consommée pendant les phénomènes anélastiques. Ce serait la composante du paramètre Δ de l'eq. 5.7.

A l'image de ce qui est fait dans le domaine de la modélisation thermomécanique des métaux, nous proposons d'utiliser un coefficient de Taylor-Quinney. Ce paramètre, noté β , correspond à la fraction de travail anélastique convertie en chaleur. Il est en général proche de 1 dans les métaux étant donné leur forte part dissipative d'origine thermique. Ce paramètre est également couramment, voire toujours, pris dans la littérature comme constant.

Partant de ce paramètre β , nous intégrons le coefficient de Taylor-Quinney dans la dissipation intrinsèque (eq. 5.36). Remarquons tout de suite que nous ne faisons aucune hypothèse restrictive sur la valeur de ce paramètre, ni sur son évolution éventuelle en fonction des conditions expérimentales. La forme générale de β est la suivante :

$$\beta = f(\mathbb{D}_e, a_T \dot{\epsilon}_{eq}) \quad (5.37)$$

Le paramètre β est introduit dans l'eq. 5.36 :

$$\phi_{int} = A^{\mathbb{D}_v} : \mathbb{D}_v + A^\eta \dot{\eta} = \beta A^{\mathbb{D}_v} : \mathbb{D}_v \geq 0 \quad (5.38)$$

On retrouve alors la relation suivante entre les forces thermodynamiques :

$$(1 - \beta)A^{\mathbb{D}_v} : \mathbb{D}_v = -A^\eta \dot{\eta} \quad (5.39)$$

Avec :

- $(1 - \beta)A^{\mathbb{D}_v} : \mathbb{D}_v$: la dissipation sous forme d'anélasticité
- $A^\eta \dot{\eta}$: la dissipation dans le réseau par l'évolution du degré de liberté des noeuds du réseau.

Selon les valeurs extrêmes de β , on définit deux frontières extrêmes :

- Si $\beta = 1$, toute la dissipation est d'origine thermique, il n'y a pas d'évolution du réseau. L'ensemble des processus anélastiques est bloqué, et le comportement est alors de type hyperélastique pur.
- Si $\beta = 0$, l'évolution du réseau consomme l'ensemble de la dissipation en anélasticité, il n'y a alors aucune évolution thermique, le comportement est alors visco-hyperélastique isotherme.

Il est désormais possible d'exprimer le taux de déformation anélastique \mathbb{D}_v en fonction des données matériaux, sans adjoindre d'autres éléments constitutifs. La loi d'évolution est définie dans la suite.

5.1.8 Loi de comportement anélastique

De l'expression 5.39, on obtient, après calcul, l'expression du taux de déformation anélastique suivant :

$$\mathbb{D}_v = \frac{1}{1 - \beta} \cdot \frac{3}{2} \cdot \left(\frac{\mathbf{S}}{\sigma_{eq}^2} \right) \cdot \frac{\partial w}{\partial \eta} \dot{\eta} \quad (5.40)$$

Avec :

- $S = \frac{1}{2} (\mathbf{F}_e^{-1} \boldsymbol{\sigma}^D \mathbf{F}_e)$: la contrainte dans la configuration intermédiaire.
- $\sigma_{eq} = \sqrt{\frac{3}{2} \cdot (\boldsymbol{\sigma}^D : \boldsymbol{\sigma}^D)}$: la contrainte équivalente au sens de Von Mises.

5.1.9 Couplages thermiques

L'équation complète de la chaleur permet de mettre en évidence les deux mécanismes, thermo-réversibles et thermo-irréversibles obtenus pendant les essais mécaniques. Le premier mécanisme entraîne le refroidissement continu du matériau en charge, pendant que le second introduit un échauffement progressif.

Soit l'équation de la chaleur :

$$\rho C\dot{T} = k\Delta T + T\dot{\epsilon}_{eq} \frac{da_T}{dT} \frac{\partial \sigma}{\partial a_T \dot{\epsilon}_{eq}} : \mathbb{D}_e + T\dot{\epsilon}_{eq} \frac{da_T}{dT} \frac{\partial^2 w}{\partial \eta \partial a_T \dot{\epsilon}_{eq}} \dot{\eta} + \phi_{int} \quad (5.41)$$

Avec :

- $k\Delta T$: diffusion de la chaleur à travers le matériau
- $T\dot{\epsilon}_{eq} \frac{da_T}{dT} \frac{\partial \sigma}{\partial a_T \dot{\epsilon}_{eq}} : \mathbb{D}_e$: sources thermoélastiques
- $T\dot{\epsilon}_{eq} \frac{da_T}{dT} \frac{\partial^2 w}{\partial \eta \partial a_T \dot{\epsilon}_{eq}} \dot{\eta} + \phi_{int}$: sources dissipatives

Dans un premier temps, dans un souci de validation globale du modèle simple, nous nous intéressons seulement au couplage thermique faible. On considère que l'évolution de la température n'entraîne pas de modification du comportement mécanique.

5.1.10 Bilan

Le modèle thermodynamique présenté est basé sur une description énergétique du comportement. Nous avons utilisé un potentiel énergétique issu des modèles de statistique de chaîne. Ce choix nous a permis de conserver un sens physique fort tout en minimisant le nombre de paramètres. Pour une condition en vitesse de déformation et température (ou en vitesse équivalente à la température de référence), nous avons donc introduit cinq paramètres matériaux :

- N_c : La densité de noeuds permanents, où le degré de réticulation, (cross-link).
- N_s : La densité de noeuds pouvant glisser, où le degré d'enchevêtrements, (slip-link)
- z_p : Le paramètre d'évolution du glissement potentiel entre les points d'enchevêtrement
- β : Le coefficient de Taylor-Quinney
- α : Le potentiel d'extensibilité d'une chaîne

A ces cinq paramètres matériaux, nous ajoutons cinq données caractéristiques de notre polymère :

- η_0 : La valeur théorique [73] de $\eta = 0.2343$ minimisant l'énergie libre du système
- ρ_0 : La densité du matériau
- C : La capacité calorifique du matériau
- C_1 et C_2 : Les coefficients de la loi WLF
- T_{ref} : Le paramètre arbitraire de la température de référence

Le modèle étant posé, nous avons cherché à le confronter à nos essais expérimentaux. Pour validation, cette première comparaison est posée dans le cas d'un couplage thermique faible. Le raisonnement global sera présenté après l'extension nécessaire du formalisme en grandeurs équivalentes.

5.2 Implémentations numériques avec couplage thermique faible

L'implantation numérique tridimensionnelle du modèle a été réalisée sous Matlab. L'architecture complète du modèle est présentée dans la résolution du cas général 5.4.

Les résultats sont donnés sur un point matériel. Nos essais seront tour à tour utilisés pour identification et pour validation.

Le modèle d'Edwards-Vilgis étant établi sous condition d'équilibre thermodynamique, nous introduisons les grandeurs suivantes :

- $N_c^*(a_T \dot{\epsilon}_{eq}) = kTN_c(T, \dot{\epsilon})$
- $N_s^*(a_T \dot{\epsilon}_{eq}) = kTN_s(T, \dot{\epsilon})$

La dimension de ces grandeurs est le *MPa*.

5.2.1 Validation 1D isotherme

Nous présentons les résultats obtenus conditions par conditions, après ajustement des cinq paramètres matériaux du modèle.

Nous réalisons systématiquement la comparaison des courbes mécaniques calculées et mesurées. Quand elles sont disponibles, nous comparons les évolutions de température calculées au point, à l'évolution de température mesurée en surface.

Rappelons que ce sont des essais en condition isotherme de charge-décharge, où les deux séquences sont réalisées à la même vitesse.

5.2.1.1 Essais à 60°C et $3.1 \cdot 10^{-3} \text{ s}^{-1}$

$$a_T \dot{\epsilon}_{eq} = 6.05 \cdot 10^{-9}$$

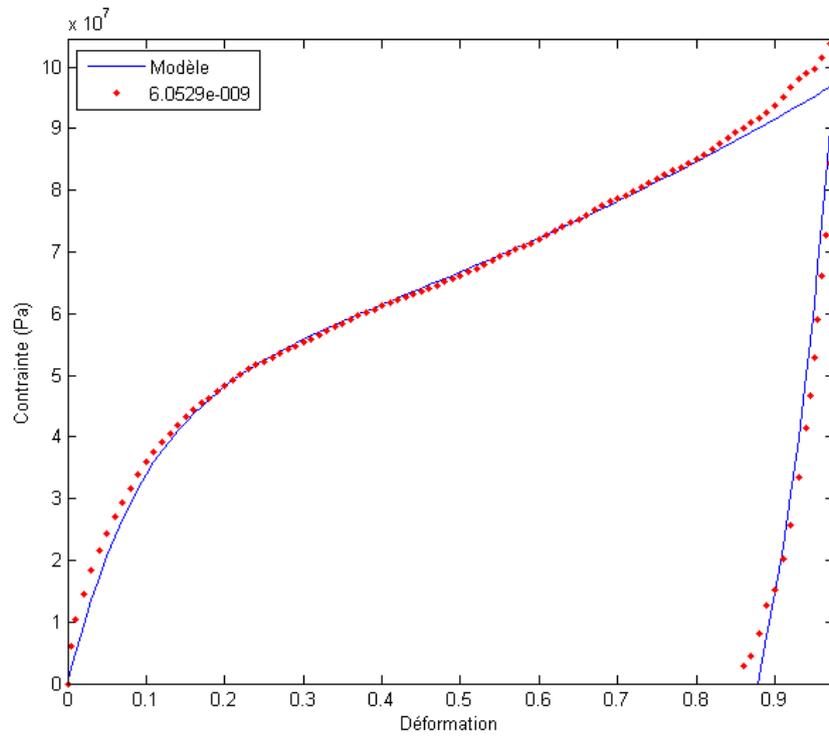


Figure 5.1 – Validation mécanique

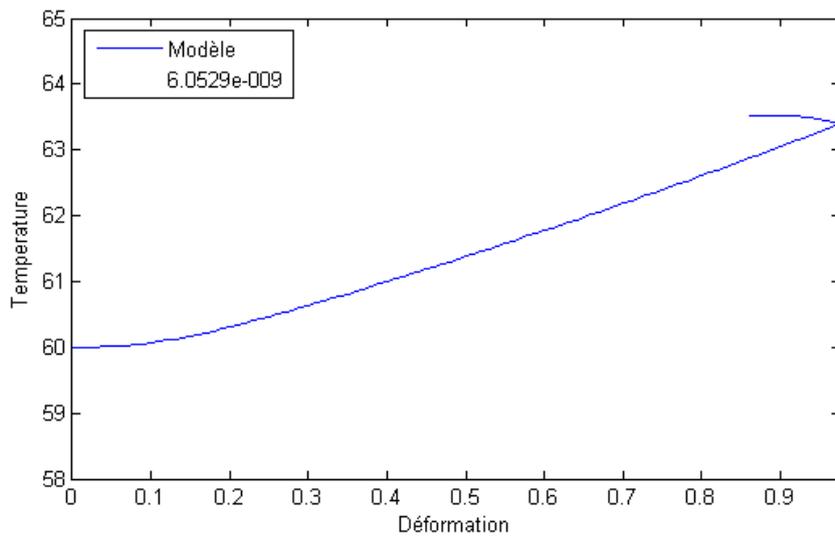
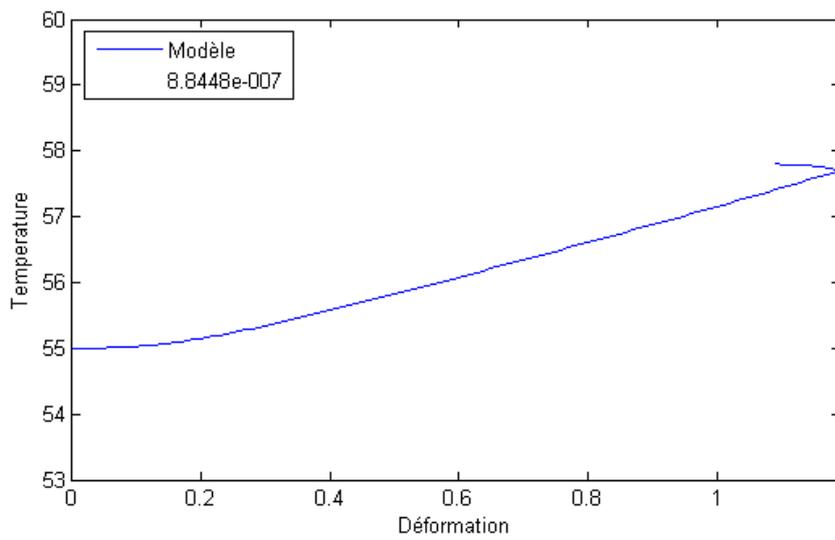
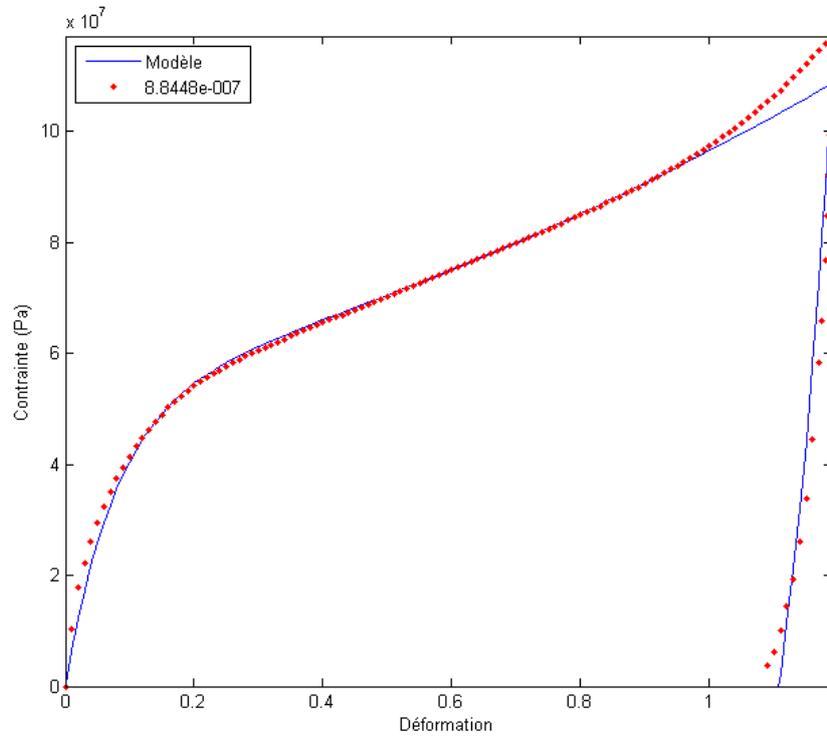


Figure 5.2 – Calcul thermique

5.2.1.2 Essais à 55°C et $8.5 \cdot 10^{-2} \text{ s}^{-1}$

$$a_T \dot{\epsilon}_{eq} = 8.84 \cdot 10^{-7}$$



5.2.1.3 Essais à 60°C et $7.7 \cdot 10^{-1} \text{ s}^{-1}$

$$a_T \dot{\epsilon}_{eq} = 1.5 \cdot 10^{-6}$$

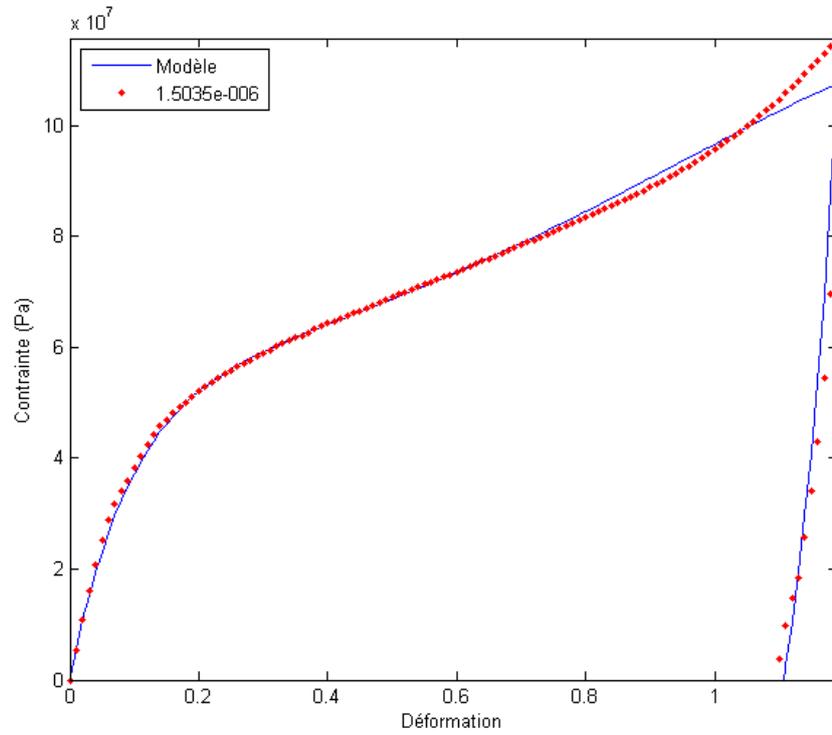


Figure 5.5 – Validation mécanique

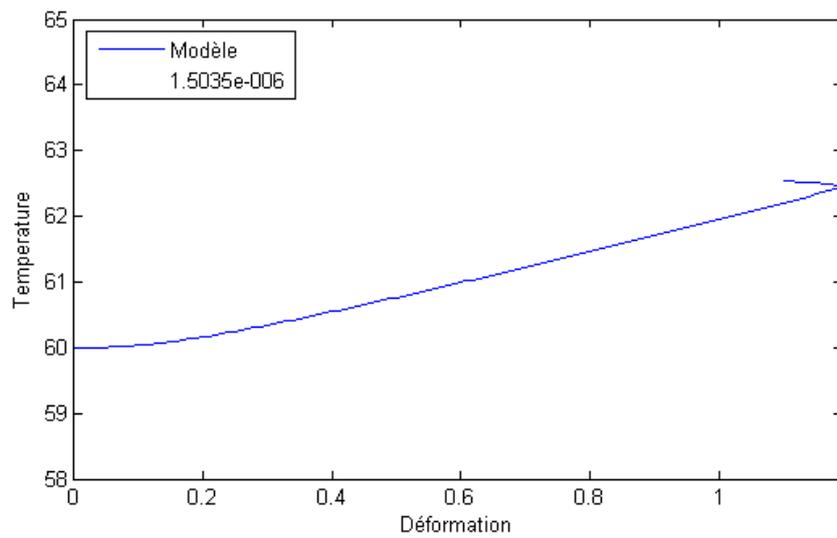


Figure 5.6 – Calcul thermique

5.2.1.4 Essais à 40°C et $3.3 \cdot 10^{-3} \text{ s}^{-1}$

$$a_T \dot{\epsilon}_{eq} = 7.65 \cdot 10^{-6}$$

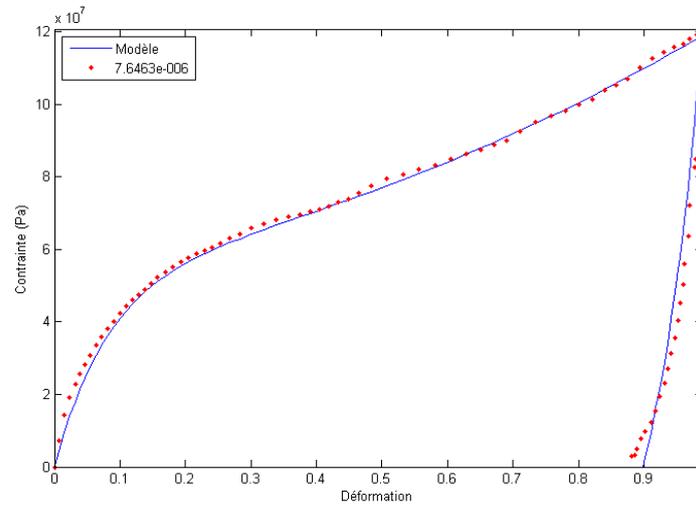


Figure 5.7 – Validation mécanique

5.2.1.5 Essais à 50°C et $2.5 \cdot 10^{-1} \text{ s}^{-1}$

$$a_T \dot{\epsilon}_{eq} = 1.47 \cdot 10^{-5}$$

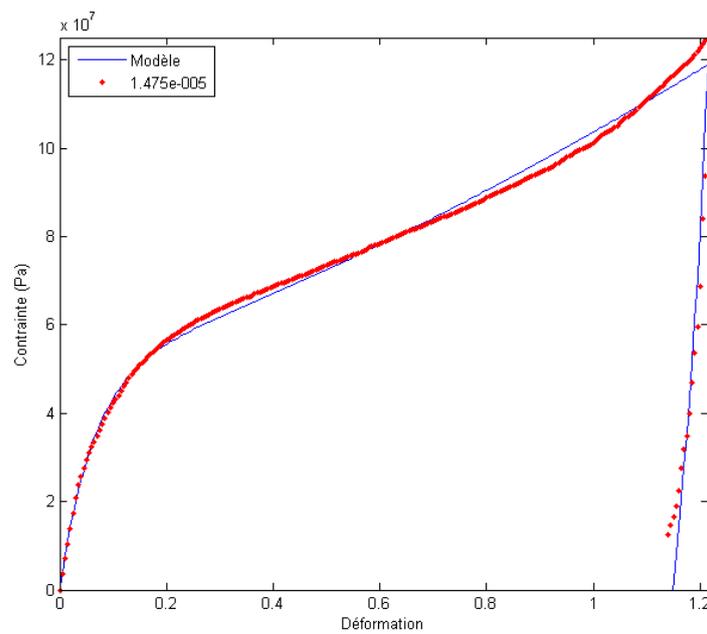


Figure 5.8 – Validation mécanique

5.2.1.6 Essais à 35°C et $4.52 \cdot 10^{-2} \text{ s}^{-1}$

$$a_T \dot{\epsilon}_{eq} = 7.31 \cdot 10^{-4}$$

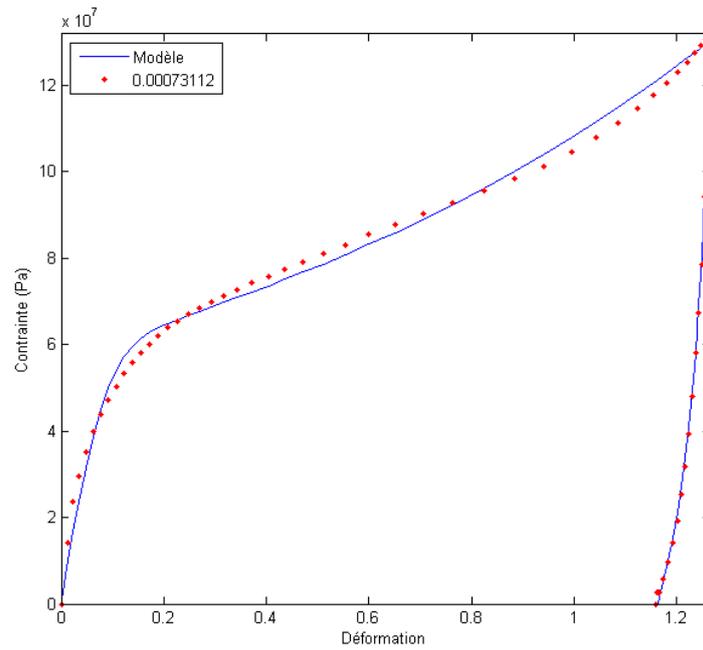


Figure 5.9 – Validation mécanique

5.2.1.7 Essais à 21.6°C et $1.83 \cdot 10^{-2} \text{ s}^{-1}$

$$a_T \dot{\epsilon}_{eq} = 8.04 \cdot 10^{-2}$$

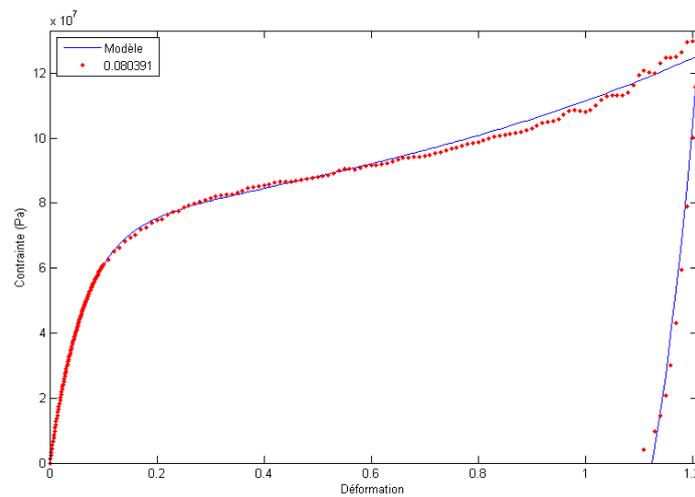
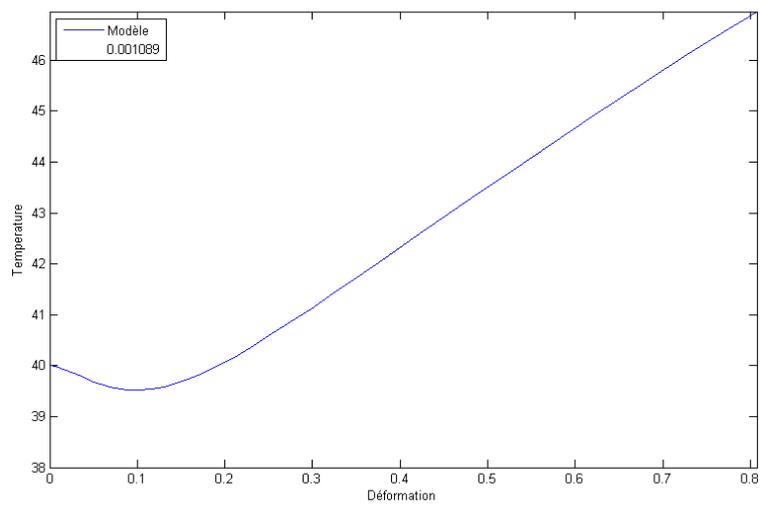
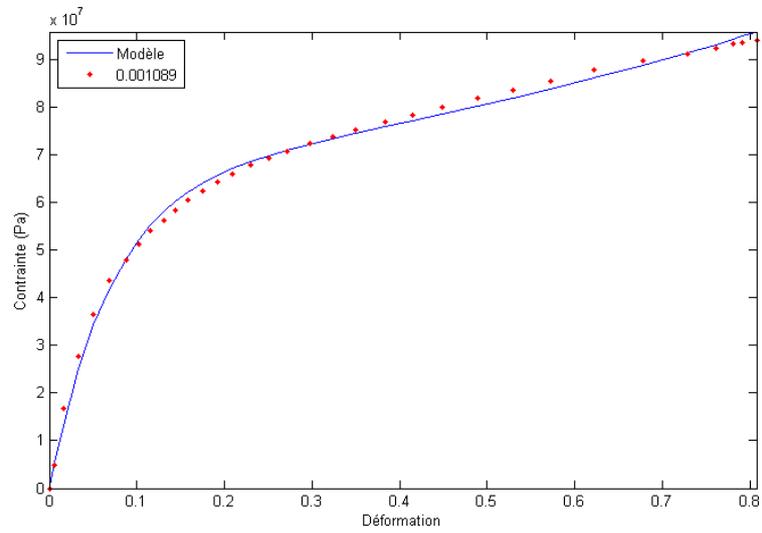


Figure 5.10 – Validation mécanique

5.2.1.8 Essais à 40°C et $4.7 \cdot 10^{-1} \text{ s}^{-1}$

$$a_T \dot{\epsilon}_{eq} = 1.09 \cdot 10^{-3}$$



5.2.1.9 Essais à 26°C et $2.4 \cdot 10^{-3} \text{ s}^{-1}$

$$a_T \dot{\epsilon}_{eq} = 1.57 \cdot 10^{-3}$$

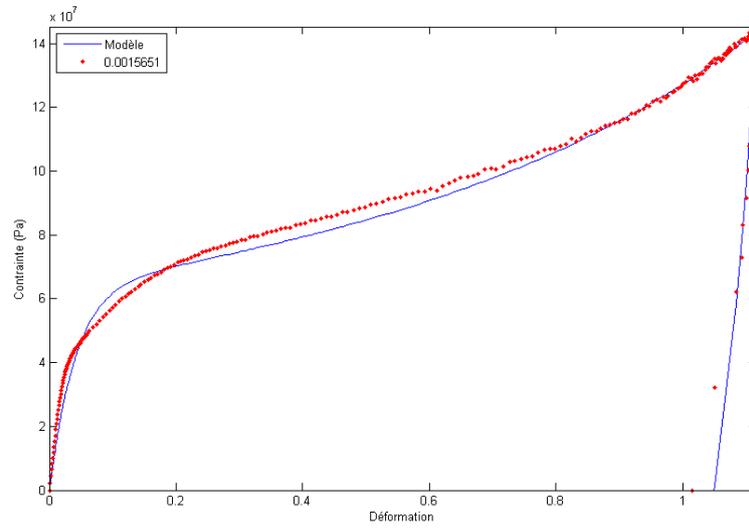


Figure 5.13 – Validation mécanique

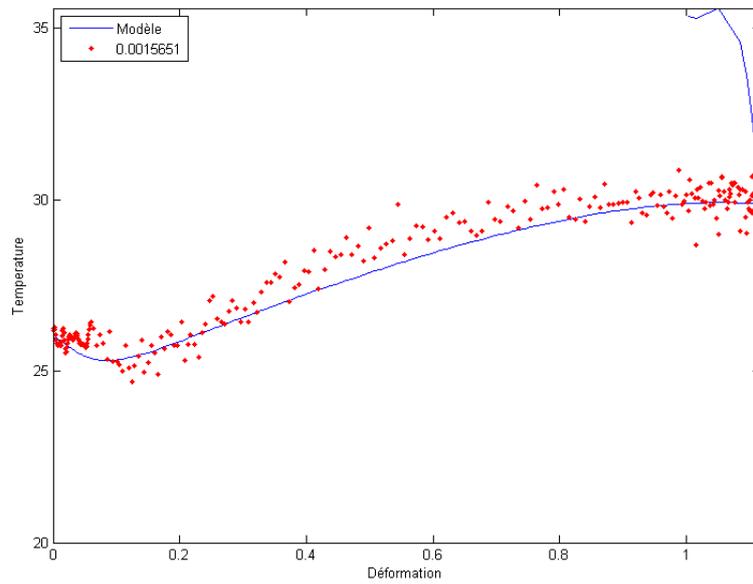


Figure 5.14 – Validation thermique

5.2.1.10 Essais à 26°C et $2.4 \cdot 10^{-1} \text{ s}^{-1}$

$$a_T \dot{\epsilon}_{eq} = 1.57 \cdot 10^{-1}$$

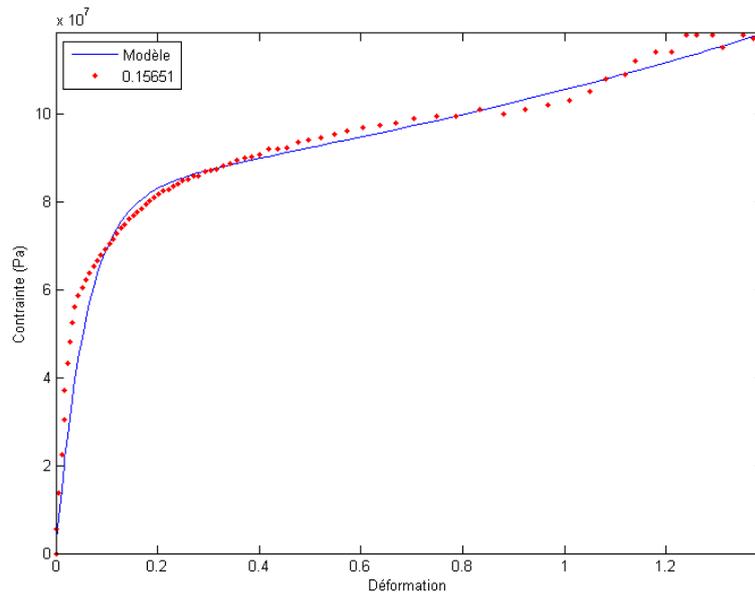


Figure 5.15 – Validation mécanique

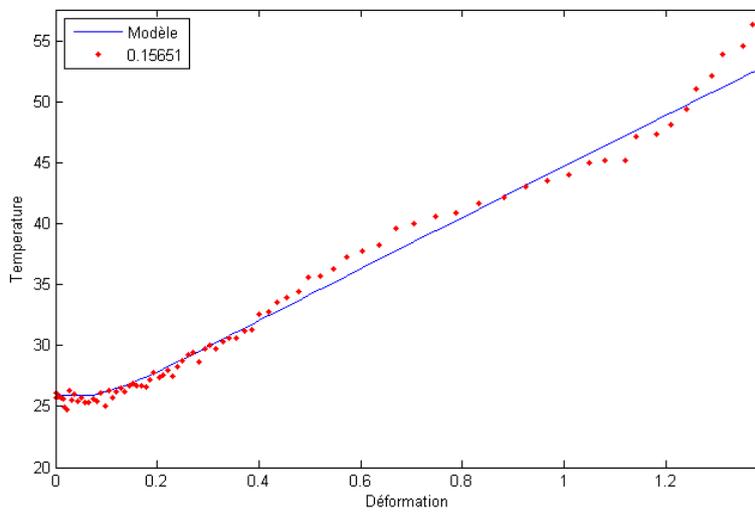


Figure 5.16 – Validation thermique

5.2.1.11 Essais à 15°C et $1.36 \cdot 10^{-2} \text{ s}^{-1}$

$$a_T \dot{\epsilon}_{eq} = 1.19$$

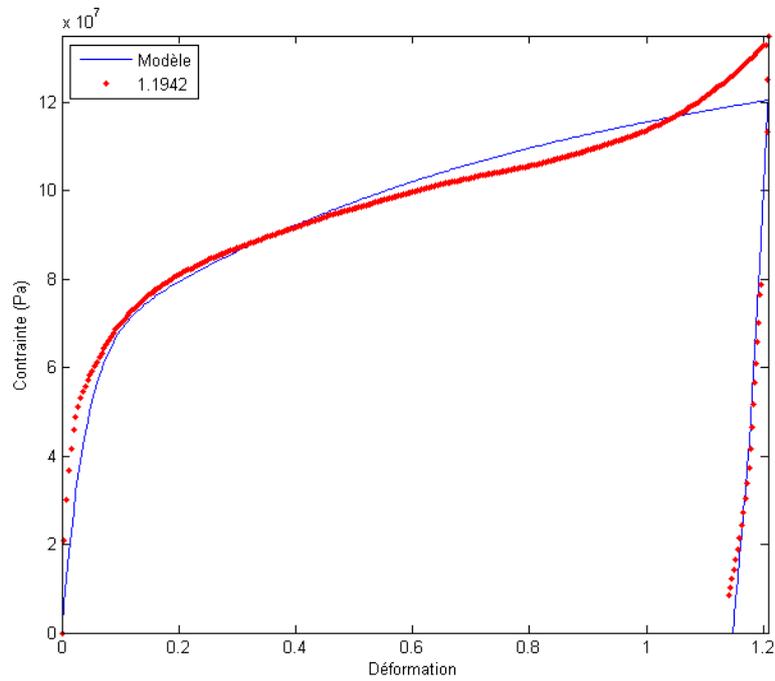


Figure 5.17 – Validation mécanique

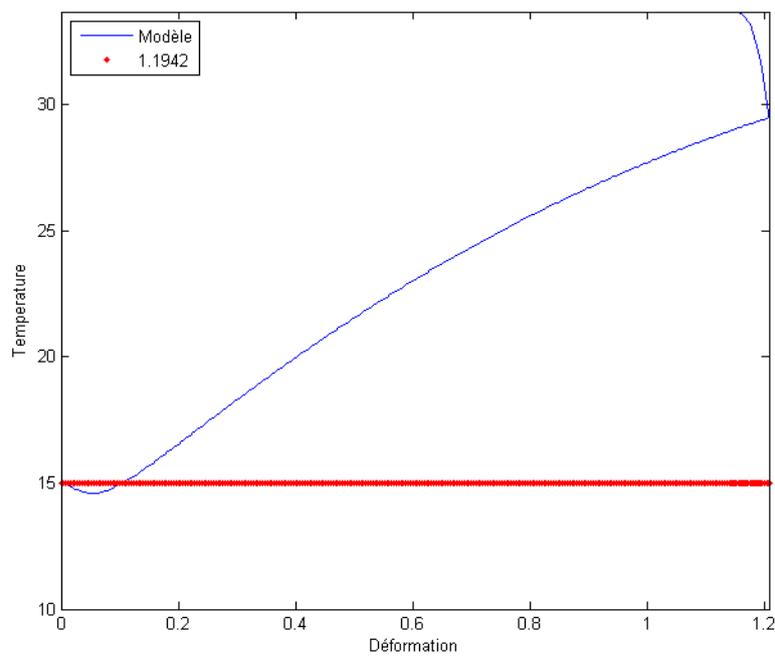


Figure 5.18 – Calcul thermique

5.2.1.12 Essais à 10°C et $1.3 \cdot 10^{-2} \text{ s}^{-1}$

$$a_T \dot{\epsilon}_{eq} = 1.24 \cdot 10^1$$

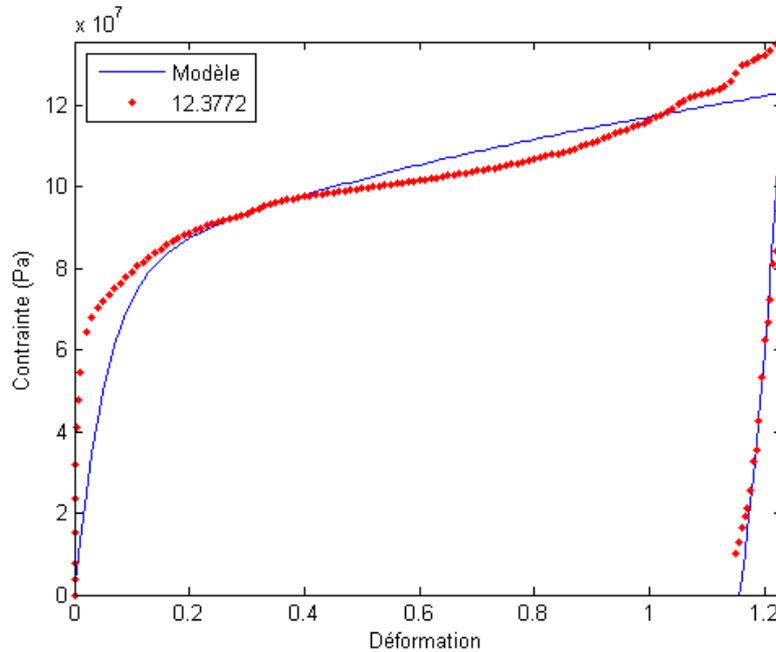


Figure 5.19 – Validation mécanique

5.2.1.13 Conclusion

Les résultats obtenus courbe à courbe présentent une excellente correspondance sur la gamme d'étude. Lorsque le comportement du matériau est modélisé après sa transition vitreuse, la prévision du comportement mécanique et thermique permet de prévoir avec précision les modules initiaux, le passage en comportement non-linéaire, le domaine où coexistent les caractères mêlés viscoplastique et hyperélastique, la zone de fort durcissement identifiée à partir des déformations de 0.8, puis finalement la décharge du matériau, présentant une forte composante anélastique.

Dans la gamme de modélisation avant la transition vitreuse, les résultats présentent une bonne correspondance (5.17 à 5.19). La prévision sous estime notablement le module initial.

L'évolution de la température fournie par le modèle n'est pas prise en compte dans la réactualisation du comportement mécanique, ce qui est l'une des origines de l'écart de la modélisation par rapport aux données expérimentales. Plus le comportement du matériau est éloigné de sa transition, plus les aspects dissipatifs sont nécessairement à prendre en compte pour optimiser notre modèle de comportement.

Nous verrons, dans la suite de cette partie, comment nous avons intégré l'évolution de la température, pour développer un modèle de comportement fortement couplé mécaniquement et thermiquement.

5.2.2 Sensibilité du modèle de comportement aux paramètres

La sensibilité du modèle aux paramètres matériaux est illustrée figures 5.20 à 5.22(b). Nous y affectons une variation de $\pm 20\%$ à la valeur optimale de chacun des paramètres pour une seule condition expérimentale donnée.

- Pour une valeur initiale de $\alpha = 0.0115$, la sensibilité du modèle a ce paramètre est nulle (figure 5.20).
- Pour une valeur initiale de $\beta = 0.7$, une variation de $\pm 20\%$ impacte de 50% la contrainte maximale, et de 15% la température maximale (figure 5.21(a)).
- Pour une valeur initiale de $N_c = 3E + 8$, une variation de $\pm 20\%$ impacte de 100% la contrainte maximale, et de 15% la température maximale (figure 5.21(b)).
- Pour une valeur initiale de $N_s = 1E + 8$, une variation de $\pm 20\%$ impacte de 70% la contrainte maximale, et impacte peu la température maximale (figure 5.22(a)).
- Pour une valeur initiale de $z_p = 1.5$, une variation de $\pm 20\%$ impacte de 70% la contrainte maximale, et impacte peu la température maximale (figure 5.22(b)).

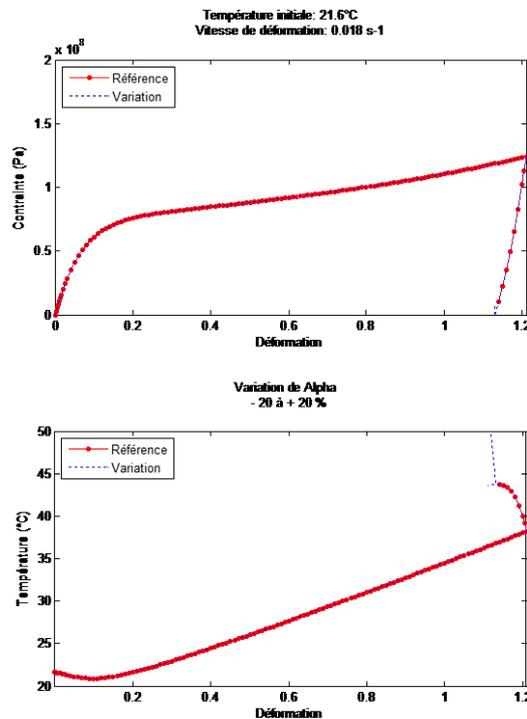


Figure 5.20 – Sensibilité du modèle à une variation de $\pm 20\%$ du paramètre α

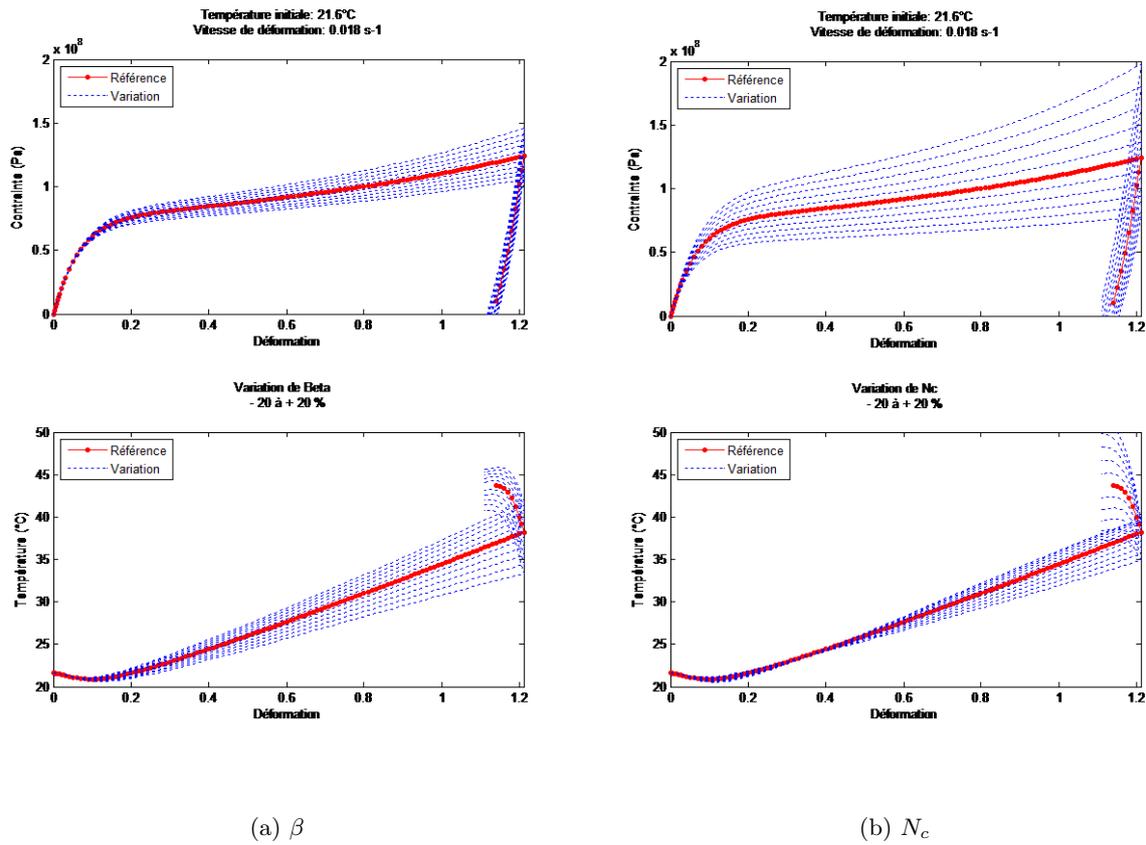


Figure 5.21 – Sensibilité du modèle à une variation de $\pm 20\%$ du paramètre

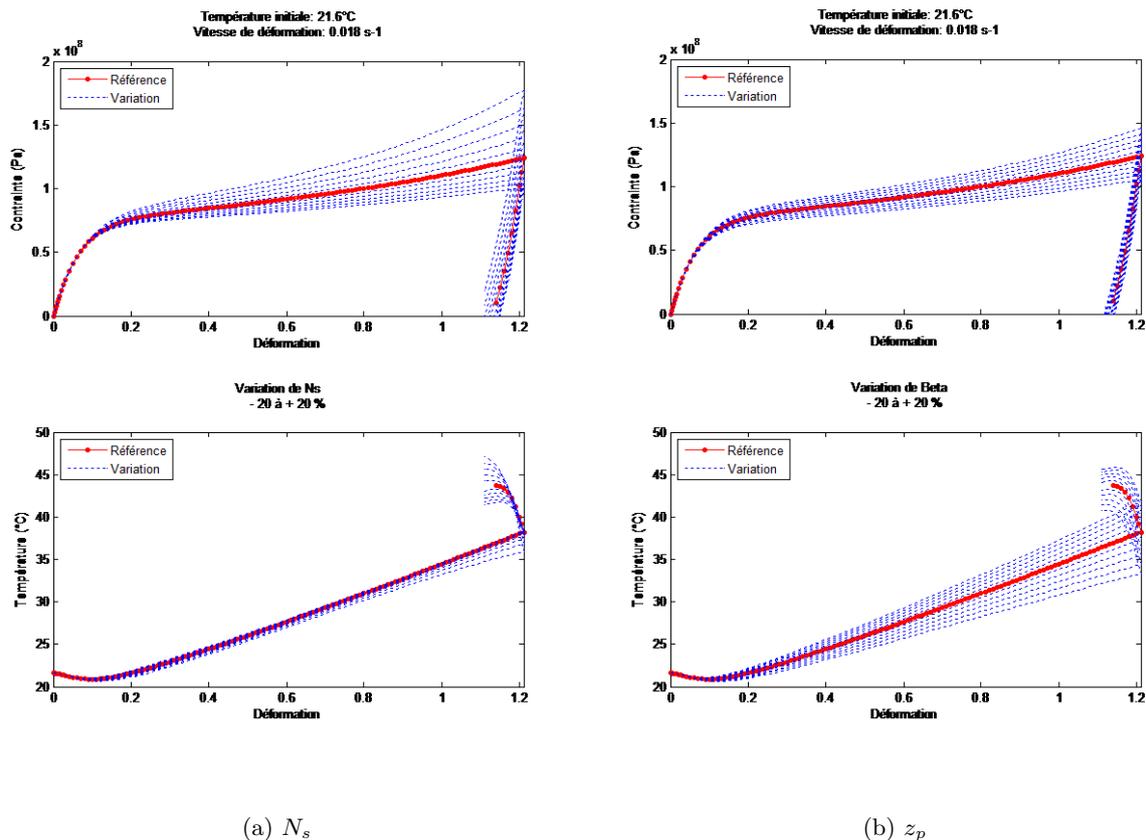


Figure 5.22 – Sensibilité du modèle à une variation de $\pm 20\%$ du paramètre

Une étude complète s'avère difficile, car globalement, le choix des paramètres initiaux impacte cette étude de sensibilité. Le modèle étant fortement couplé, les paramètres initiaux conditionnent la sensibilité des autres. De plus, la sensibilité dépend de la valeur. Par exemple, elle est très faible sur α quand il est proche de 0.

Cette étude permet néanmoins d'estimer quantitativement la zone d'impact de chacun des paramètres, et leurs sensibilités relatives.

Ce sont les paramètres N_c , N_s , facteurs d'échelles, et z_p qui apparaissent comme les plus critiques.

5.2.3 Lois d'évolutions des paramètres globaux

Pour aller au-delà d'une identification courbe à courbe, il nous faut analyser l'évolution de nos cinq paramètres, avec notre grandeur de paramétrage $a_T \dot{\epsilon}_{eq}$. L'objectif étant de proposer une loi d'évolution phénoménologique des paramètres. Une analyse plus physique pouvant être développée ultérieurement.

Les paramètres bruts, obtenus pour les cas où nous avons accès aux mesures mécaniques et thermiques, sont représentés en fonction de $a_T \dot{\epsilon}_{eq}$ sur les figures 5.23 à 5.27 :

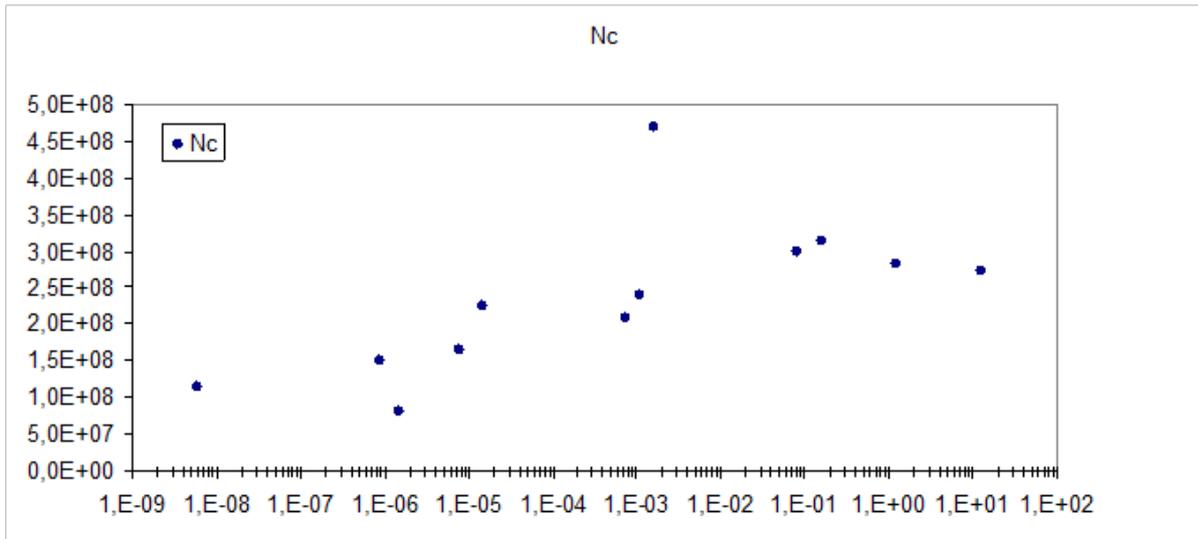


Figure 5.23 – Paramètre N_c : densité de points de réticulation, fonction de $a_T \dot{\epsilon}_{eq}$

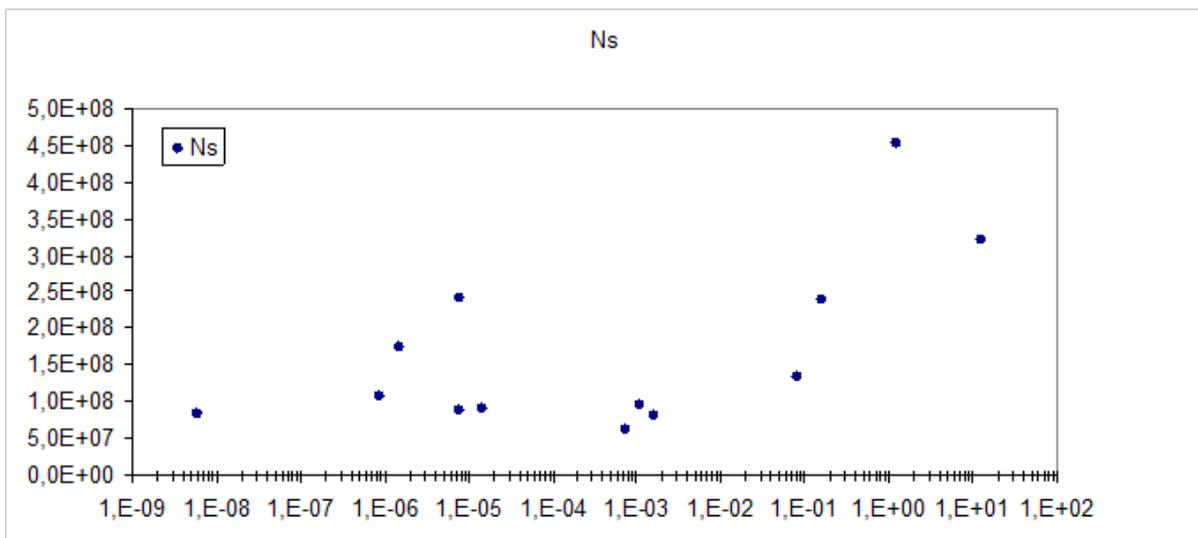


Figure 5.24 – Paramètre N_s : densité de points d'enchevêtrements, fonction de $a_T \dot{\epsilon}_{eq}$

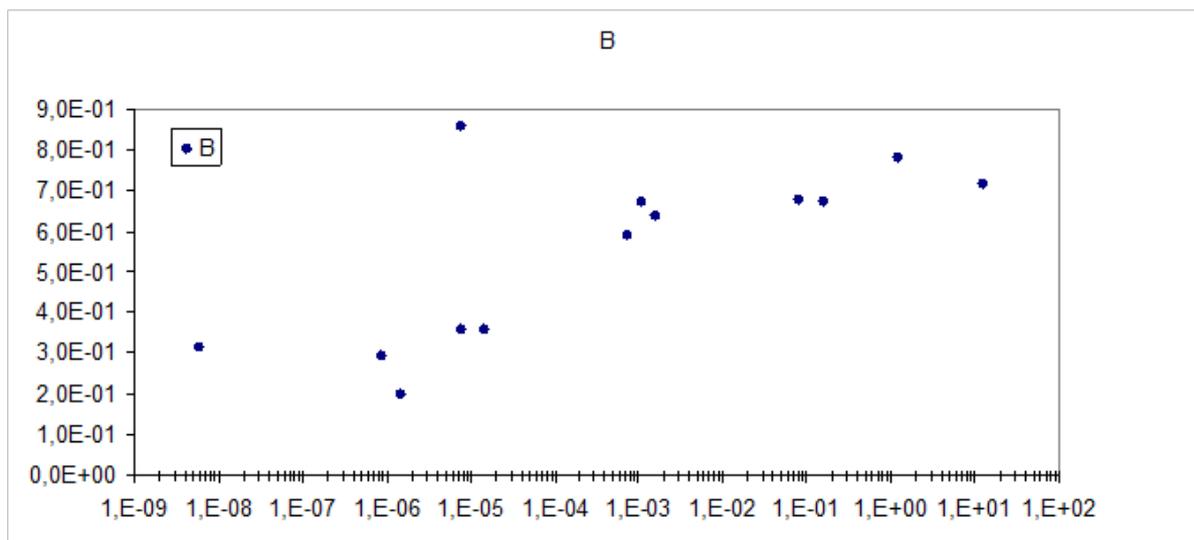


Figure 5.25 – Paramètre β : partition de la chaleur, fonction de $a_T \epsilon_{eq}$

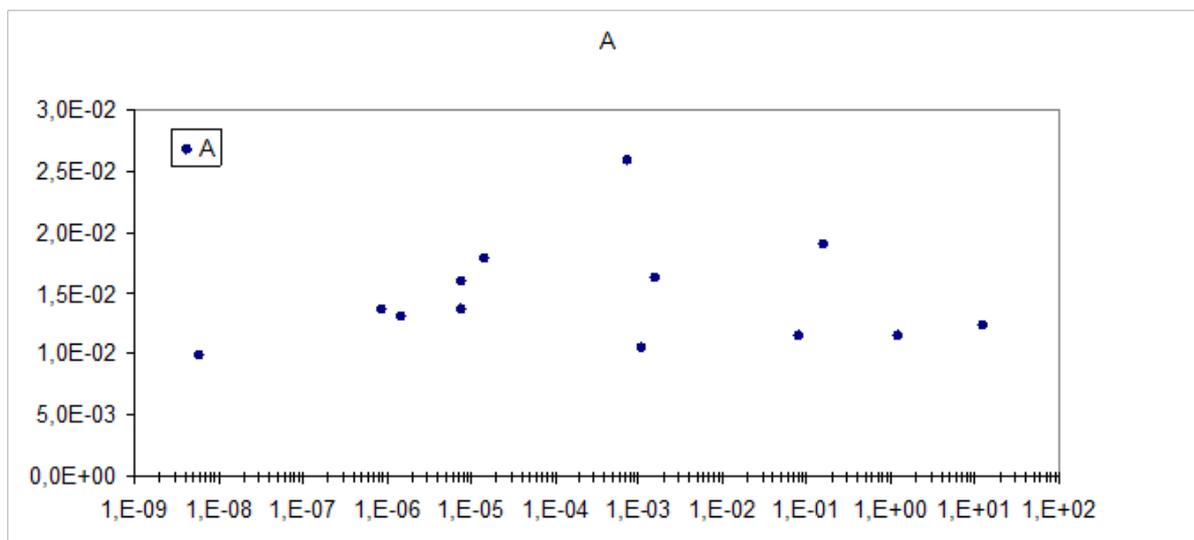


Figure 5.26 – Paramètre α : extensibilité maximale des chaînes, fonction de $a_T \epsilon_{eq}$

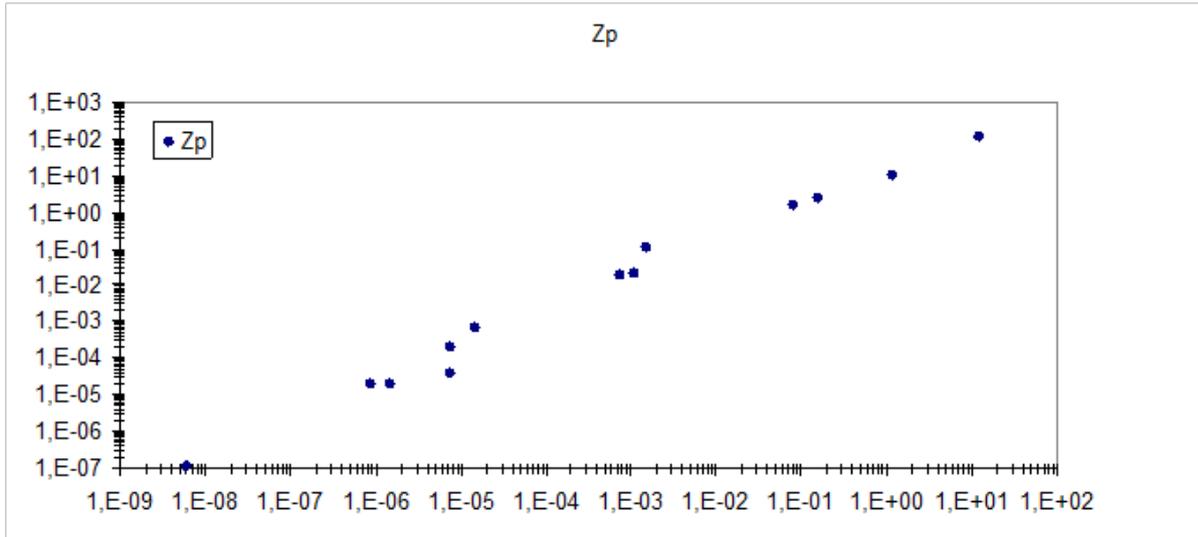


Figure 5.27 – Paramètre Z_p : force entropique du réseau, fonction de $a_T \dot{\epsilon}_{eq}$

Les valeurs exactes des paramètres sont relativement dépendantes les unes des autres. Il en résulte une certaine sensibilité aux paramètres initiaux, avant optimisation. Raisonner sur les répartitions brutes de valeurs, sans lien entre chaque identification n'est pas réellement approprié.

De plus, l'hypothèse de couplage faible est très forte aux hautes vitesses et est de nature à accroître l'imprécision de ces identifications.

Malgré ces difficultés, les figures 5.23 à 5.25 présentent une tendance similaire, qui rappelle la forme sigmoïdale des évolutions de seuils fictifs (chapitre 3, fig. 3.50) et de modules (chapitre 2, fig. 2.13). Par analyse de la limite du modèle, à faible déformation, on peut voir, de plus, que le module initial est contrôlé par les paramètres N_s et N_c (si α est faible). Ces derniers doivent donc dépendre de la vitesse équivalente de la même manière que le module.

A la vue de ces constatations, nous postulons l'existence d'une loi d'évolution pour chacun des paramètres N_c, N_s, β de la forme suivante :

$$A(a_T \dot{\epsilon}_{eq}) = A_0 + A_1 \left(\frac{2}{1 + (\tau a_T \dot{\epsilon}_{eq})^{-2m}} \right) \quad (5.42)$$

Avec A_0 et A_1 les paramètres liés aux grandeurs N_c, N_s, β et m, τ , deux grandeurs caractéristiques du matériau.

Les expressions des lois d'évolution pour les grandeurs N_c, N_s, β sont les suivantes :

$$N_c(a_T \dot{\epsilon}_{eq}) = N_{c0} + N_{c1} \left(\frac{2}{1 + (\tau a_T \dot{\epsilon}_{eq})^{-2m}} \right) \quad (5.43)$$

$$N_s(a_T \dot{\epsilon}_{eq}) = N_{s0} + N_{s1} \left(\frac{2}{1 + (\tau a_T \dot{\epsilon}_{eq})^{-2m}} \right) \quad (5.44)$$

$$\beta(a_T \dot{\epsilon}_{eq}) = \beta_0 + \beta_1 \left(\frac{2}{1 + (\tau a_T \dot{\epsilon}_{eq})^{-2m}} \right) \quad (5.45)$$

Avec la forme suivante pour chacune des ces lois d'évolution :

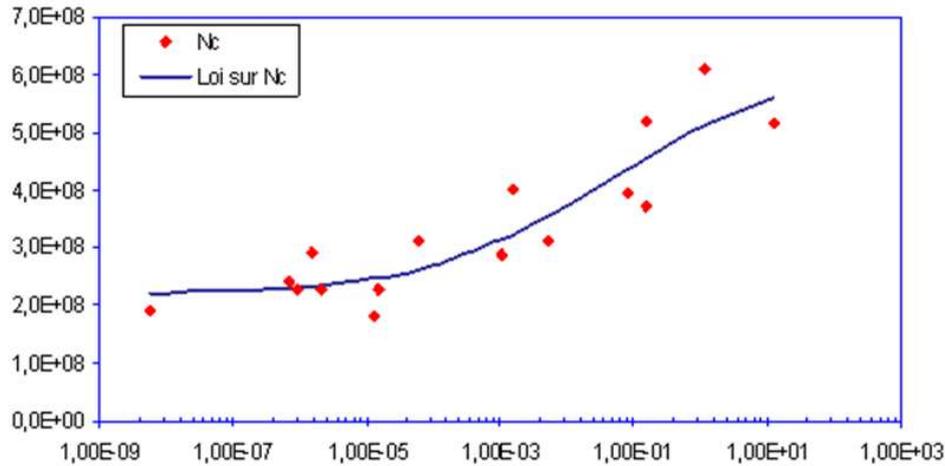


Figure 5.28 – Forme de la loi d'évolution postulée dépendant de $a_T \dot{\epsilon}_{eq}$

La forme globale de la loi d'évolution de z_p (fig. 5.27) est posée comme une loi affine avec $a_T \dot{\epsilon}_{eq}$:

$$z_p(a_T \dot{\epsilon}_{eq}) = z_{p0} \cdot a_T \dot{\epsilon}_{eq} \quad (5.46)$$

Le modèle de comportement global comporte alors 10 paramètres variables :

$$N_{c0}, N_{c1}, N_{s0}, N_{s1}, \beta_0, \beta_1, m, \tau, z_{p0}, \alpha$$

Nous intégrons cette modélisation des grandeurs en fonction de la vitesse équivalente à une température de référence dans notre modèle de comportement global, et ré-identifions les paramètres constitutifs du modèle comme un jeu unique, à l'aide d'une méthode d'analyse inverse.

5.3 Extension du formalisme thermodynamique en équivalence temps/température

5.3.1 Grandeurs équivalentes

Avant d'aller plus loin, nous devons donc mettre la généralisation de notre modèle de comportement en place. Le choix d'utiliser une vitesse équivalente nécessite une échelle temporelle équivalente. Le passage d'un traitement 1D (où la définition de la vitesse est sans ambiguïté), à un traitement 3D nécessite, quant à lui, le choix d'une vitesse équivalente.

Dans le cas général, le facteur de décalage est connu à chaque instant, par la connaissance de la température instantanée. Le raisonnement en équivalence temporelle à une température de référence doit aussi être mené sur la discrétisation en temps. On définit le temps équivalent, τ , à la température de référence, par l'équation 5.47 :

$$a_T \dot{\epsilon}_{eq} = a_T \frac{d\epsilon_{eq}}{dt} = \frac{d\epsilon_{eq}}{(dt/a_T)} = \frac{d\epsilon_{eq}}{d\tau} \quad (5.47)$$

L'expression finale du pas de temps équivalent est alors :

$$d\tau = \frac{dt}{a_T} \quad (5.48)$$

L'expression du temps équivalent total est de la forme :

$$\tau = \int_0^t \frac{dt}{a_T(t)} \quad (5.49)$$

Ce temps équivalent est fonction de l'historique, puisque chaque pas de temps équivalent est directement relié au facteur de décalage instantané, ou encore directement relié à l'historique de l'évolution de la température. Ce temps équivalent est le temps "physique" ressenti par la matière.

Pour ce qui est de la vitesse, nous choisissons, par convenance, la vitesse équivalente au sens de von Mises [18, 38], soit :

$$\dot{\epsilon}_{eq} = \sqrt{\frac{2}{3} \mathbb{D} : \mathbb{D}} \quad (5.50)$$

5.3.2 Couplages thermiques forts

A partir du second principe de la thermodynamique (eq. 4.4), et de la partition de la dissipation, introduite dans Clausius-Duhem (eq. 4.7), on peut écrire l'expression suivante :

$$\rho T \dot{s} = \rho r - \text{div } \vec{q} + \phi_{int} \quad (5.51)$$

En rappelant l'expression de l'entropie donnée par eq.5.22, on obtient la dérivée \dot{s} suivante :

$$\dot{s} = -\frac{1}{\rho_0} \frac{\partial}{\partial t} \left(\frac{\partial W}{\partial a_T \dot{\epsilon}_{eq}} \frac{\partial a_T \dot{\epsilon}_{eq}}{\partial T} \right) \quad (5.52)$$

L'équation 5.51 devient alors fonction de l'énergie libre et de la vitesse équivalente à la température de référence :

$$\rho T \dot{s} = -\frac{1}{J} T \frac{\partial}{\partial t} \left(\frac{\partial W}{\partial a_T \dot{\epsilon}_{eq}} \frac{\partial a_T \dot{\epsilon}_{eq}}{\partial T} \right) \quad (5.53)$$

Ou encore sous l'hypothèse d'incompressibilité ($J = 1$) :

$$\rho T \dot{s} = -T \left(\frac{\partial}{\partial a_T \dot{\epsilon}_{eq}} \frac{\partial a_T \dot{\epsilon}_{eq}}{\partial T} \right) \dot{w} \quad (5.54)$$

Par regroupement de l'ensemble des termes, et rappelant la forme de \dot{w} donnée par l'eq.5.14, nous obtenons la forme complète de l'équation de la chaleur, prenant en compte l'ensemble des couplages forts :

$$\rho_0 C v \dot{T} = -div \vec{q} + T \dot{\epsilon}_{eq} \frac{da_T}{dT} \frac{\partial \sigma}{\partial a_T \dot{\epsilon}_{eq}} : \mathbb{D}_e + T \dot{\epsilon}_{eq} \frac{da_T}{dT} \frac{\partial^2 W}{\partial \eta \partial a_T \dot{\epsilon}_{eq}} \dot{\eta} + \phi_{int} \quad (5.55)$$

Cette équation est fonction des lois d'évolutions posées dans la partie 5.2.3.

L'ensemble des équations du modèle de comportement thermomécanique sont donc maintenant posées.

Il reste donc à mettre en place un calcul direct (au point) et une analyse inverse. Ceci sera fait sous Matlab $\text{\textcircled{R}}$.

5.4 Implémentations numériques avec couplages thermomécaniques forts

Le calcul est incrémental, partant de l'état initial, connu, en incrémentant l'état de déformation en fonction du chargement externe, et où le terme \mathbb{D}_v est calculé à l'intérieur d'une boucle implicite.

L'algorithme du modèle de comportement implanté sous Matlab est schématisé sur la fig.5.29.

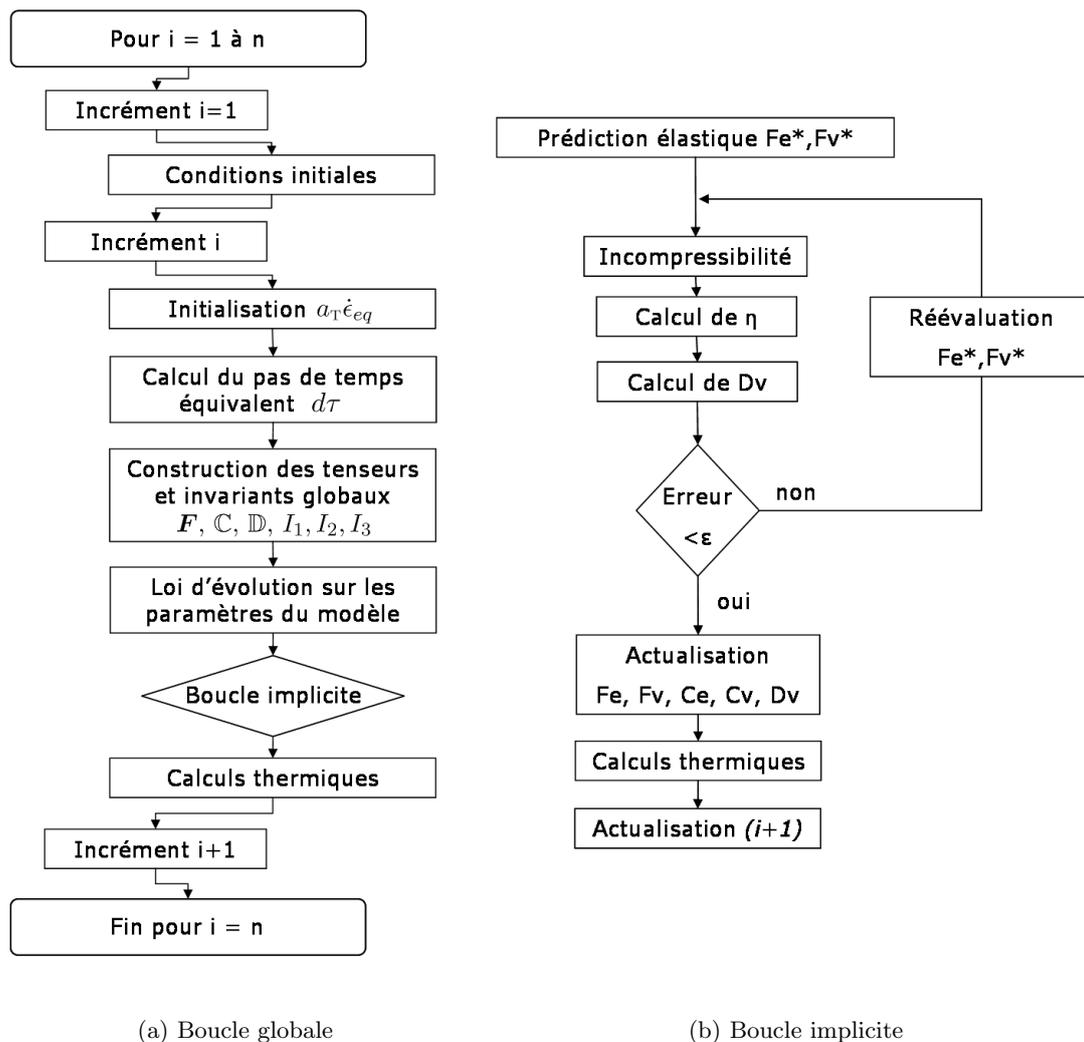


Figure 5.29 – Algorithme de calcul

Avant le premier incrément de déformation, les grandeurs initiales sont définies. La température initiale est définie, l'initialisation des gradients de déformation est réalisée.

Chaque itération débute par le calcul du facteur de décalage a_T , en fonction de la température instantanée, puis celui de la vitesse équivalente, ainsi que du temps équivalent.

La connaissance du chargement global permet de calculer l'incrément d'allongement, ou de déformation de cisaillement, selon le type d'essais.

- Dans un cas de traction simple :

$$\mathbf{F}_{traction} = \begin{bmatrix} \lambda & 0 & 0 \\ 0 & \frac{1}{\sqrt{\lambda}} & 0 \\ 0 & 0 & \frac{1}{\sqrt{\lambda}} \end{bmatrix}$$

- Dans un cas de cisaillement simple :

$$\mathbf{F}_{cisaillement} = \begin{bmatrix} 1 & \gamma & 0 \\ 0 & 1 & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{bmatrix}$$

Avec :

$\lambda = \exp(\epsilon)$: l'allongement dans le sens de traction

$\gamma = \epsilon$: la déformation de cisaillement

On en déduit le tenseur de Cauchy-Green droit, \mathbb{C} , et l'expression des invariants de déformation, I_1, I_2, I_3 . Le taux de déformation, \mathbb{D} , est déterminé par :

- Dans un cas de traction simple, avec :

$$\mathbb{D}_{traction} = \begin{bmatrix} \frac{\dot{\lambda}}{\lambda} & 0 & 0 \\ 0 & -\frac{1}{2} \frac{\dot{\lambda}}{\lambda} & 0 \\ 0 & 0 & -\frac{1}{2} \frac{\dot{\lambda}}{\lambda} \end{bmatrix}$$

L'expression de $\dot{\epsilon}_{eq}$ est :

$$\dot{\epsilon}_{eq} = \frac{\dot{\lambda}}{\lambda} = \dot{\epsilon}_{traction} \quad (5.56)$$

- Dans un cas de cisaillement simple, avec :

$$\mathbb{D}_{cisaillement} = \begin{bmatrix} 0 & \frac{\dot{\gamma}}{2} & 0 \\ \frac{\dot{\gamma}}{2} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \end{bmatrix}$$

L'expression de $\dot{\epsilon}_{eq}$ est :

$$\dot{\epsilon}_{eq} = \frac{1}{\sqrt{3}} \dot{\gamma} = \frac{1}{\sqrt{3}} \dot{\epsilon}_{cisaillement} \quad (5.57)$$

La vitesse équivalente, au sens de von mises, est déduite, et permet l'actualisation des paramètres du modèle : N_c, N_s, z_p et β .

Dans le cas du couplage thermomécanique fort, les lois d'évolution des paramètres, en fonction de la vitesse équivalente à une température de référence, permettent de prendre en compte l'évolution des

propriétés mécaniques en fonction des conditions instantanées. On utilise les lois d'évolution présentées dans la partie 5.2.3.

On utilise un algorithme implicite 5.29(b) pour résoudre la loi complémentaire, et calculer le taux de déformation anélastique.

A la fin de cette boucle implicite, l'ensemble des données mécaniques est déterminée pour l'incrément de calcul i .

L'équation de la chaleur complète, 5.55, est alors résolue, explicitement, à l'incrément i .

5.5 Identification couplée des paramètres

Le modèle de comportement développé étant fortement couplé, une méthode d'optimisation numérique est utilisée pour l'identification d'un jeu de paramètre global.

Une méthode d'optimisation sans contrainte est utilisée. Elle est basée sur l'algorithme de Nelder-Mead [86, 87]. C'est une méthode permettant l'optimisation sans contrainte de plusieurs paramètres, à partir de l'évolution d'une fonction scalaire. Nous utilisons une minimisation aux moindres carrés, normalisés, comme fonction scalaire. Une erreur scalaire est définie sur l'ensemble des courbes contrainte / déformation d'une part, et température / déformation d'autre part. Cela nous donne l'erreur moyenne, pour un jeu de paramètres, sur le comportement global du matériau.

Cette méthode est directement utilisable dans Matlab par l'utilisation de la routine *fminsearch*. La méthode utilisable est alors l'algorithme standard de Nelder-Mead, où les coefficients de la routine d'optimisation sont les suivants :

- Reflexion : $\rho = 1$
- Expansion : $\chi = 2$
- Contraction : $\gamma = \frac{1}{2}$
- Shrinkage : $\sigma = \frac{1}{2}$

Les courbes de comportement mécanique et thermique utilisées représentent 16 couples vitesse/température, représentatifs de l'ensemble du comportement mécanique et thermique de notre matériau. Nous intégrons à la fois les essais en traction et en cisaillement.

Le jeu de paramètre initial est le suivant :

- $N_{c0} = 9.6E^6$
- $N_{c1} = 1.3E^8$
- $N_{s0} = 1.1E^7$
- $N_{s1} = 1.2E^7$
- $\beta_0 = 0.06$
- $\beta_1 = 0.69$
- $m = 0.06$

- $\tau = 4.6$
- $zp_0 = 20$
- $\alpha = 0.06$

La figure suivante présente l'évolution de la fonction scalaire erreur par rapport aux itérations du programme d'optimisation. On voit apparaître, dès les 50 premières itérations, une baisse rapide de la fonction scalaire. Puis, la tendance se poursuit vers la minimisation de la valeur scalaire. Le programme d'optimisation est validé, et nous permet, par la suite de déterminer les paramètres optimaux.

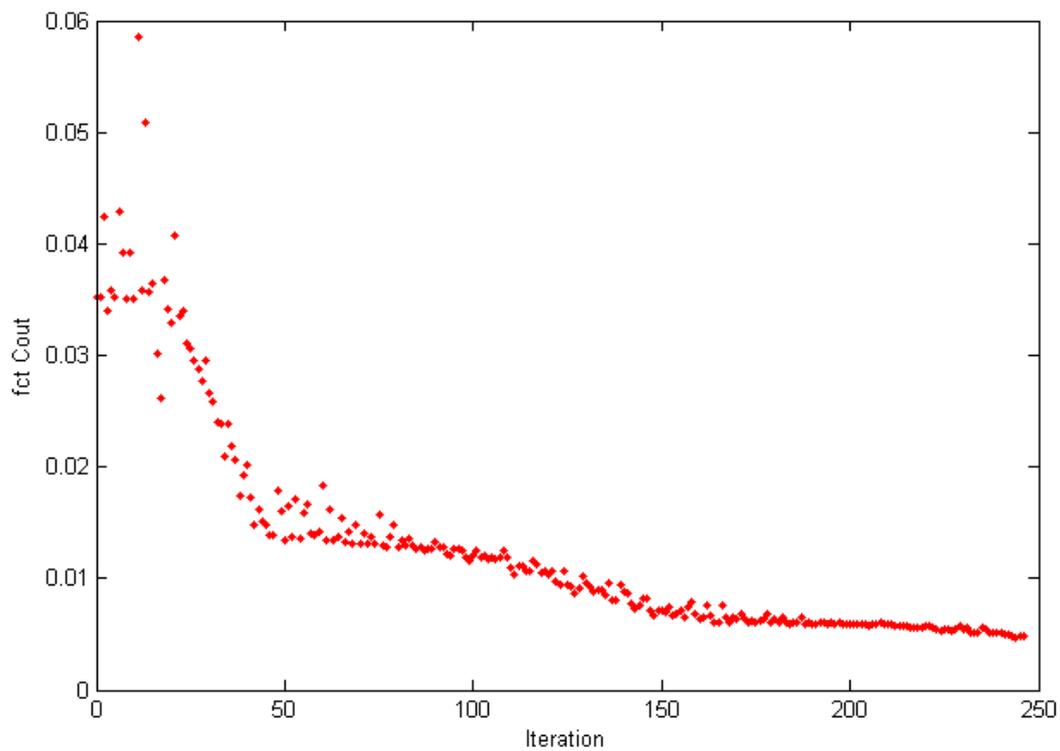


Figure 5.30 – Evolution de la fonction erreur selon les itérations du programme d'optimisation.

5.5.0.1 Résultats mécaniques en traction

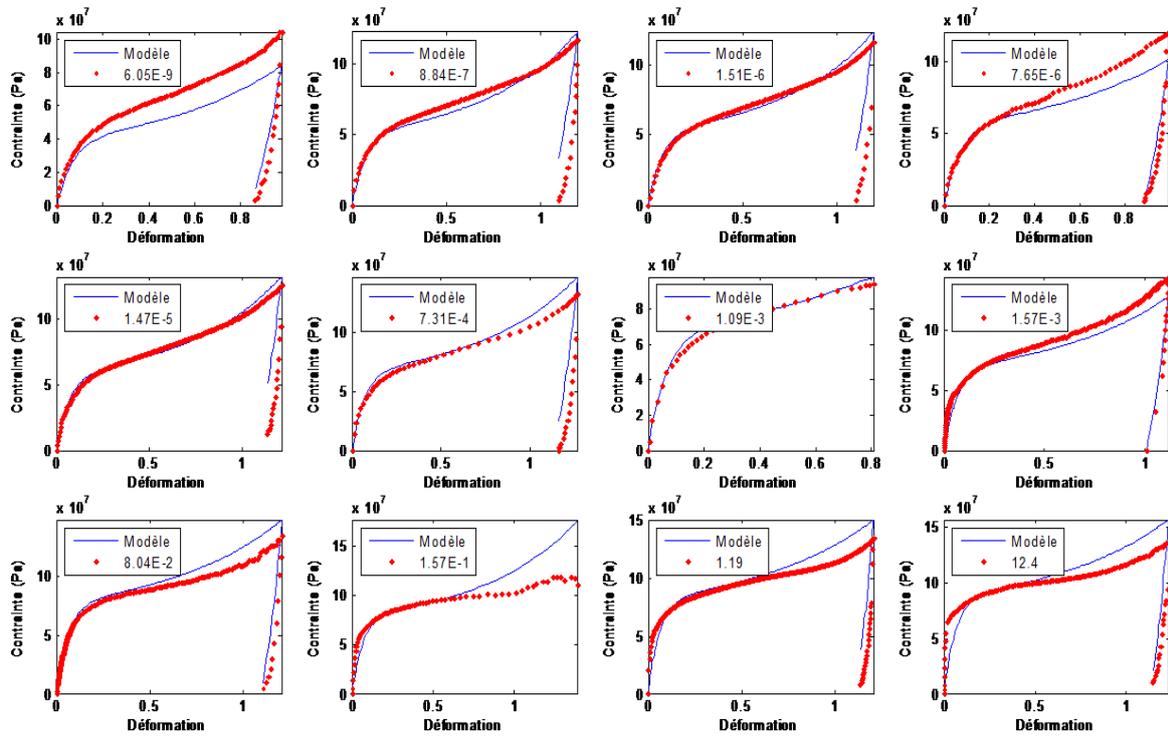


Figure 5.31 – Courbes contrainte déformation en traction après optimisation. En rouge sont tracées les courbes expérimentales en fonction de $a_{T\dot{\epsilon}_{eq}}$, en bleu est tracé le modèle de comportement respectif calculé

5.5.0.2 Résultats mécaniques en cisaillement

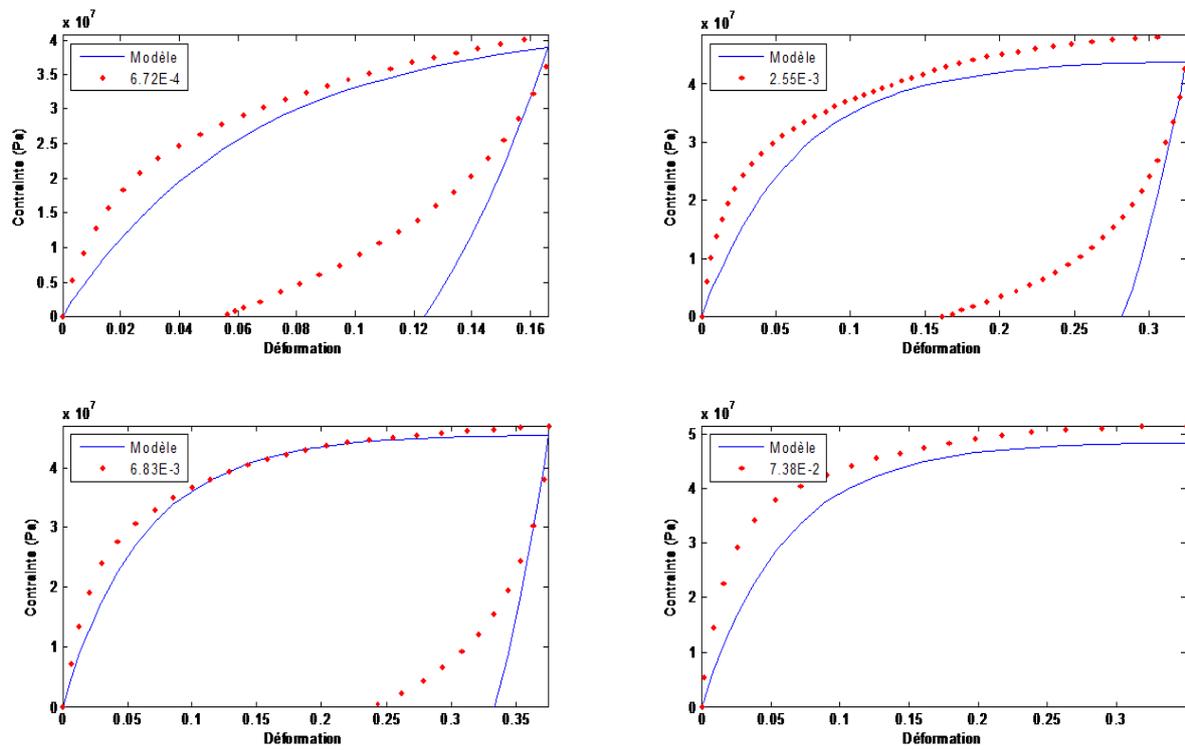


Figure 5.32 – Courbes contrainte déformation en cisaillement après optimisation. En rouge sont tracés les courbes expérimentales en fonction de $a_T \epsilon_{eq}$, en bleu est tracé le modèle de comportement respectif calculés

5.6 Conclusion

Si l'on tient compte de la largeur de la gamme expérimentale, et du faible nombre de paramètres, la correspondance entre les données expérimentales et la modélisation est tout à fait acceptable. La prise en compte des couplages thermomécaniques forts améliore la prévision du module initial, justifiant nos efforts. En effet, en prenant en compte l'adoucissement thermique du matériau dès les faibles niveaux de déformation, il apparaît un comportement initial rigide, qui s'adoucit ensuite rapidement avec l'augmentation de la température due aux dissipations thermiques.

Jusqu'à des niveaux de déformation de 0,5, la correspondance du modèle avec les données expérimentales est bonne sur toute la gamme en vitesse et température analysées.

Ce constat est valable pour les résultats en traction et cisaillement.

Au-delà de ce niveau de déformation, le modèle prédit des niveaux de contraintes plus forts pour les hautes vitesses équivalentes, et des niveaux de contraintes plus faibles pour les vitesses équivalentes inférieures à $10^{-6} s^{-1}$. Une dissipation thermique trop forte aux faibles vitesses, et/ou une dissipation trop faible aux fortes vitesses pourraient expliquer ces écarts de prévision dans le comportement.

Notons toutefois que notre approche thermique est encore simplifiée, en ce sens que la température est supposée uniforme dans l'épaisseur de nos éprouvettes au niveau du calcul, et comparée à la température de surface, expérimentale.

Pour conclure, nous avons développé une approche purement visco-hyperélastique, qui nous permet de reproduire l'ensemble du comportement thermomécanique de notre matériau sur une gamme large en vitesse de déformation et température, avec un nombre réduit de paramètres.

Une sophistication reste possible pour améliorer les résultats mais la faisabilité de la démarche semble pleinement acquise.

Cette approche finalement simplifiée de la modélisation du comportement ouvre une porte à un formalisme cohérent avec la physique sous jacente, et où le fort couplage entre chacun des paramètres matériaux utilisés ressort physiquement.

CHAPITRE 6

CONCLUSION ET PERSPECTIVES

Notre étude portait sur une matrice polyamide 6.6, utilisée dans les matériaux renforcés de fibres de verres courtes, et consistait en la mise en place d'une modélisation thermomécanique.

La première étape a été la mise en évidence du comportement thermomécanique de notre matériau sur une large gamme de sollicitations autour de sa zone de transition α .

La seconde étape a consisté à développer un modèle de comportement thermomécanique, physiquement fondé, utilisant les modèles de type statistique de chaîne, s'appuyant au mieux sur les équivalentes en temps / température.

L'approche ainsi développée a été confrontée à la base expérimentale dans une approche globale.

Afin de mettre en évidence le comportement mécanique de la matrice polyamide, nous avons mis en place une campagne d'essais mécanique en traction et cisaillement non monotone. Les conditions expérimentales atteintes, soit une gamme de températures comprises entre -10 et 60 degrés, et une gamme de vitesses de déformations comprise entre 10^{-4} et 10 s^{-1} , représentent en fait 21 décades de vitesse équivalente à la température de référence, $a_T \dot{\epsilon}_{eq}$.

Un effort important a porté sur le protocole expérimental nous garantissant une qualité des mesures mécaniques et thermiques optimale. Des moyens pyrométriques et de caméra infrarouge ont été utilisés pour les mesures thermiques.

Concernant les mesures mécaniques, nous avons utilisé deux types d'extensomètres optiques. Le premier étant un suivi de marqueurs par un système vidéométrique, et le second étant un suivi de mouchetis aléatoires, puis une analyse des déformations par corrélation d'images. L'utilisation de mesures non-monotones nous a permis de définir les types de comportements mécaniques mis en jeu aux différents niveaux de déformations. Un tel dispositif expérimental est rarement déployé dans le domaine des polymères. Il nous a assuré, quant à nous, de la validité de nos observations et conclusions.

Le comportement du polymère que nous avons envisagé est fortement sensible à la vitesse de déformation et à la température. Si nous devons le caractériser par des voies classiques il serait : viscoélastique, viscoplastique présentant un écrouissage combiné isotrope et cinématique, et un certain endommagement. A ceci s'ajouterait l'existence d'une forte dissipation thermique, rendant nécessaire

la modélisation de couplage thermomécanique fort, dès les basses vitesses.

L'analyse bibliographique nous a enseigné que, prendre en compte un tel comportement de manière classique conduirait à de très nombreux paramètres, sans pour autant garantir une grande pertinence.

Nous avons donc choisi un modèle de comportement thermomécanique alternatif. Les modèles de statistique de chaîne modifiés, particulièrement le modèle d'Edwards-Vilgis, ont permis de décrire, dans le cadre formel de la thermodynamique des processus irréversibles, un comportement visco-hyperélastique.

L'introduction d'un processus de relaxation d'une partie de l'énergie élastique emmagasinée dans le réseau comme source d'anélasticité entropique a été validée par confrontation avec la base expérimentale.

Le modèle offre un cadre pour prendre en compte les effets thermiques, ou énergétiques, sur le comportement global, et reproduit, avec un jeu de paramètres réduit, les résultats expérimentaux.

Le modèle, qui est maintenant écrit dans un cadre rigoureux et dans sa forme tridimensionnelle, ne nécessite que des enrichissements physiques pour mieux rendre compte, encore, du comportement des polymères.

Ainsi, il ne prend pas explicitement en compte l'aspect semi-cristallin de notre polymère. Cette prise en compte représente une perspective évidente.

Deux hypothèses de modélisation future sont envisageables pour la suite de l'étude :

- Une partie amorphe indépendante de la phase cristalline. Dans cette hypothèse, les déformations ressenties par les deux phases seraient équivalentes, et on ne mettrait pas en jeu d'interactions entre l'amorphe et le cristal.
- Les deux phases interagissant ensemble, liées au niveau des déformations. Au sens micro-mécanique, on pourrait considérer une inclusion de phase amorphe, enrobée par une phase cristalline [7]. Cette modélisation apportant un plus grand sens physique.

Lever les hypothèses d'incompressibilité est une deuxième voie d'amélioration.

Enfin, le couplage thermomécanique, si il est possible, nécessite encore quelques études expérimentale et théoriques, pour produire un modèle physique.

BIBLIOGRAPHIE

- [1] G. Mollard, "Polyamide 6-6," *Techniques de l'ingénieur*, vol. TI-J6515, 1987.
- [2] Rhodia, "<http://www.rhodia.com>," *Site internet*, 2009.
- [3] N. Billon *J. App. Polym. Sci.*, a paraitre, 2012.
- [4] E. Gorlier, *Caractérisation rhéologique et structurale d'un PET. Application au procédé de bi-étirage soufflage de bouteilles*. PhD thesis, Ecole Nationale Supérieure des Mines de Paris, 2001.
- [5] A. Erner, *Etude expérimentale du thermoformage assisté par poinçon d'un mélange de polystyrènes*. PhD thesis, Ecole Nationale Supérieure des Mines de Paris, 2005.
- [6] M. Picard, *Evolution de la microstructure d'un PET lors du bi-étirage soufflage - Corrélation au durcissement structural*. PhD thesis, Ecole Nationale Supérieure des Mines de Paris, 2008.
- [7] T. Parenteau, *Modélisation micromécanique de composites thermoplastiques élastomères à matrice polypropylène*. PhD thesis, Université Bretagne Sud, 2009.
- [8] W. Graessley, *Physical Principles of Polymers*. J.E. Mark, Amer. Chem. Soc., Washington, 1984.
- [9] J. Agassant, P. Avenas, J. Sergent, B. Vergne, and M. Vincent, *La mise en forme des matières plastiques*. Techniques et Documentation, 1996.
- [10] N. Temimi, *Comportement thermo mécanique et rupture de polypropylènes*. PhD thesis, Ecole Nationale Supérieure des Mines de Paris, 2006.
- [11] C. G'Sell, J. Hiver, and A. Dahoun, "Experimental characterization of deformation damage in solid polymers under tension, and its interrelation with necking," *Int. J. of Solids and Structures*, vol. 39, pp. 3857–3872, 2002.
- [12] L. Bradley, C. Bowen, and B. McEnaney, "Shear properties of a carbon/carbon composite with non-woven felt and continuous fibre reinforcement layers," *Carbon*, vol. 45, pp. 2178–2187, 2007.
- [13] L. Chevalier, S. Calloch, F. Hild, and Y. Marco, "Digital image correlation used to analyze the multiaxial behavior of rubber-like materials," *Eur. J. Mech. A/Solids*, vol. 20, pp. 169–187, 2001.
- [14] N. Billon, "Thermal effects during mechanical characterisation of solid polymers," *Mec. Ind*, vol. 4, pp. 357–364, 2003.

- [15] G. mbH, *User Manual software, Aramis v6*. GOM, 2007.
- [16] V. Miri, O. Persyn, J. Lefebvre, and R. Seguela, “Effect of water absorption on the plastic deformation behavior of nylon 6,” *Eur. Polymer J.*, vol. 45, pp. 757–762, 2009.
- [17] R. Zhao, W. Luo, H. Xiao, and G. Wu, “Water-absorptivity and mechanical behaviors of PTFE/PA6 and PTFE / PA66 blends,” *Trans. Nonferrous Met. Soc. China*, vol. 16, pp. 498–503, 2006.
- [18] J. Lemaitre and J. Chaboche, *Mécanique des matériaux*. Dunod, 1985.
- [19] I. D. Baere, W. V. Paepegem, and J. Degrieck, “Design of a modified three-rail shear test for shear fatigue of composites,” *Polymer Testing*, vol. 27, pp. 346–359, 2008.
- [20] F. Pierron and A. Vautrin, “Measurement of in-plane shear strenghts of unidirectional composites with the iosipescu test,” *Composites Science and Technology*, vol. 57, pp. 1653–1660, 1997.
- [21] U. Khashaba, “In-plane shear properties of cross-ply composite laminates with different off-axis angles,” *Composites Structures*, vol. 65, pp. 167–177, 2004.
- [22] K. Petterson and J. Neumeister, “A tensile setup for the IDNS composite shear test,” *Composite : Part A*, vol. 37, pp. 229–242, 2006.
- [23] J. Lamèthe, *Etude de l’adhésion de composite thermoplastique semi-cristallins; Application à la mise en oeuvre par soudure*. PhD thesis, Université Pierre et Marie Curie, 2004.
- [24] N. Billon, “Hyper elasticity and strain rate dependence of behaviour in amorphous polymer in stretch-blow moulding and thermoforming,” in *Cluj-Napoca (Roumania), PROC. 8th Int. ESA-FORM Conf. on Material Forming*, pp. 787–790, 2005.
- [25] N. Billon, “Hyperelasticity and strain-rate sensitivity in amorphous near PET α transition,” in *Kerkrade (Pays Bas), Proc. 13th Int. Conf. On Deformation Yield and Fracture of Polymers*, pp. 227–229, 2006.
- [26] N. Billon, M. Picard, and E. Gorlier, “Strain induced crystallisation in amorphous PET and mechanical strain hardening,” in *Kerkrade (Pays Bas), Proc. 14th Int. Conf. On Deformation Yield and Fracture of Polymers*, pp. 133–136, 2009.
- [27] A. Baille, A. Burr, and N. Billon, “Visco hyper elastic behaviour of an amorphous polymer. an experimental study,” in *Kerkrade (Pays Bas), Proc. 13th Int. Conf. On Deformation Yield and Fracture of Polymers*, pp. 231–234, 2006.

- [28] R. Lin, W. Brocks, and J. Betten, “On internal dissipation inequalities and finite strain inelastic constitutive laws : Theoretical and numerical comparisons,” *Int. J. of Plasticity*, vol. 22, pp. 1825–1857, 2006.
- [29] C. Miehe and J. Keck, “Superimposed finite elastic-viscoelastic-plastoelastic stress response with damage in filled rubbery polymers. experiments, modelling and algorithmic implementation,” *J. of the Mech. and Ph. of Solids*, vol. 48, pp. 323–365, 2000.
- [30] Y. Marco, *Caractérisation multi-axiale du comportement et de la micro-structure d’un semi-cristallin : application au cas du PET*. PhD thesis, Ecole Nationale Supérieure de Cachan, 2003.
- [31] J. Bikard, *Un modèle de comportement visco-élastique plastique endommageable pour les élastomères chargés*. PhD thesis, Université de la méditerranée Aix-Marseille II, Ecole supérieure de mécanique de Marseille, 2002.
- [32] A. Pawlak and A. Galeski, “Plastic deformation of crystalline polymers : The role of cavitation and crystal plasticity,” *Macromolecules*, vol. 38, pp. 9688–9697, 2005.
- [33] V. Bellenger, A. Tcharkhtchi, and P. Castaing, “Thermal and mechanical fatigue of a PA66/glass fibers composite material,” *Int. J. of Fatigue*, vol. 28, pp. 1348–1352, 2006.
- [34] D. Samios, S. Tokumoto, and E. Denardin, “Investigation of the large plastic deformation of IPP induced by plane strain compression,” *Int. J. of Plasticity*, vol. 22, pp. 1924–1942, 2006.
- [35] B. Wattrisse, J. Muracciole, and A. Chrysochoos, “Thermomechanical effects accompanying the localized necking of semi-cristalline polymers,” *Int. J. of Thermal Sc.*, vol. 41, pp. 422–427, 2002.
- [36] J. Yang, Z. Zhang, A. Schlarb, and K. Friedrich, “On the characterization of tensile creep resistance of polyamide 66 nanocomposites. part i experimental results and general discussions,” *Polymer*, vol. 47, pp. 2791–2801, 2006.
- [37] J. Bonet and R. Wood, *Non linear continuum mechanics for finite element analysis*. Cambridge University Press, 1997.
- [38] G. Holzapfel, *Nonlinear Solid Mechanics*. John Wiley and Sons, 2000.
- [39] A. Chrysochoos and R. Peyroux, “Analyse expérimentale et modélisation numérique des couplages thermomécaniques dans les matériaux solides,” *Rev. Gen. Therm.*, vol. 37(7), pp. 582–606, 1998.
- [40] B. Wattrisse, J. Muracciole, and A. Chrysochoos, “Effets thermomécaniques accompagnant la striction localisée de polymères semi-cristallins,” *Int. J. of Therm. Sc.*, vol. 41, p. 2002, 422-427.

- [41] F. Maquin, *Méthodologie expérimentale d'étude du comportement thermomécanique des matériaux sous sollicitation cycliques*. PhD thesis, ENSAM, 2006.
- [42] J. Chaboche, "Thermodynamic formulation of constitutive equations and application to the viscoplasticity and viscoelasticity of metals and polymers," *Int. J. Solids Structures*, vol. 34[18], pp. 2239–2254, 1997.
- [43] N. Brusselle, *Comportement viscoélastoplastique d'un polymère semi-cristallin avant la striction*. PhD thesis, UTC Compiègne, 2000.
- [44] J. Maire, O. Lesné, and C. Petipas, "A new approach to time-dependent behaviour of organic composites," Journées nationales sur les composites No10, Paris , FRANCE (29/10/1996).
- [45] A. Khan, O. Lopez-Pamies, and R. Kazmi, "Thermo-mechanical large deformation response and constitutive modeling of viscoelastic polymers over a wide range of strain rates and temperatures," *Int. J. of Plasticity*, vol. 22, pp. 581–601, 2006.
- [46] S. Moreau, A. Chrysochoos, J. Muracciole, and B. Wattrisse, "Analysis of thermoelastic effects accompanying the deformation of PMMA and PC polymers," *Comptes Rendus Mécanique*, vol. 333, pp. 648–653, 2005.
- [47] P. Germain, Q. Nguyen, and P. Suquet, "Continuum thermodynamics," *Journal of Applied Mechanics*, vol. 50, pp. 1010–1020, 1983.
- [48] D. Lai, I. Yakimets, and M. Guignon, "A non-linear viscoelastic model developed for semi-crystalline polymer deformed at small strains with loading and unloading paths," *Mat. Sci. and Engineering A*, vol. 405, pp. 266–271, 2005.
- [49] E. Roguet, S. Castagnet, J. Grandidier, J. Gacougnolle, and G. Hochestetter, "Comportement mécanique des thermoplastiques semi-cristallin au-dessus de leur transition vitreuse," *17^{ème} congrès français de mécanique, Troyes*, 2005.
- [50] E. Roguet, *Caractérisation expérimentale et modélisation de l'état relaxé dans le polyamide 11 à hautes température*. PhD thesis, ENSMA Poitiers, 2006.
- [51] B. Miled, I. Doghri, and L. Delannay, "Coupled ve-vp modeling of homogeneous and isotropic polymers : numerical algorithm and analytical solutions," *Computer Methods in App. Mec and Eng*, 2011.
- [52] Chambaudet. PhD thesis, INPL, 2001.

- [53] G'Sell and J. Jonas *Mat. Sci.*, vol. 14, pp. 583–591, 1979.
- [54] A. Khan, Y. Suh, and R. Kazmi, “Quasi-static and dynamic loading responses and constitutive modeling of titanium alloys,” *Int. J. of Plasticity*, vol. 20, pp. 2233–2248, 2004.
- [55] A. Drozdov, S. Agarwal, and R. Gupta, “Linear thermo-viscoelasticity of isotactic polypropylene,” *Comp. Mat. Sc.*, vol. 29, pp. 195–213, 2004.
- [56] A. Drozdov, “A model for the mechanical response of composites with thermoplastic-elastomer matrices,” *Composites Science and Technology*, vol. 66, pp. 2648–2663, 2006.
- [57] S. Bardenhagen, M. Stout, and G. Gray, “Three-dimensional, finite deformation, viscoplastic constitutive models for polymeric materials,” *Mechanics of Materials*, vol. 25, pp. 235–253, 1997.
- [58] L. Cangémi and Y. Meimon, “Une approche meso-macro continue pour la modélisation du comportement des polymères à usage structural,” *Mec and Industrie*, vol. 3, pp. 557–570, 2002.
- [59] A. Drozdov and J. Christiansen, “Viscoelasticity and viscoplasticity of semicrystalline polymers : Structure-property relations for high-density polyethylene,” *Comput. Mat. Sci.*, vol. 39, pp. 729–751, 2007.
- [60] J. Bikard and T. Désoyer, “Finite viscoelasticity, plasticity and damage of a class of filled elastomers : Constitutive model,” *Mechanics Research Communications*, vol. 28 (6), pp. 693–702, 2001.
- [61] S. Meo, A. Boukamel, and O. Debordes, “Analysis of a thermoviscoelastic model in large strain,” *Computer and Structure*, vol. 80, pp. 2085–2098, 2002.
- [62] A. Andriyana and E. Verron, “Prediction of fatigue life improvement in natural rubber using configurational stress,” *International Journal of Solids and Structures*, vol. 44 (7-8), pp. 2079 – 2092, 2007.
- [63] E. Verron, J.-B. L. Cam, and L. Gornet, “A multiaxial criterion for crack nucleation in rubber,” *Mechanics Research Communications*, vol. 33 (4), pp. 493 – 498, 2006.
- [64] E. Arruda and M. Boyce, “A three-dimensional constitutive model for the large stretch behavior of rubber elastic model,” *J. Mech. Phys. Solids*, vol. 41, pp. 389–412, 1993.
- [65] E. Arruda, M. Boyce, and R. Jayachandran, “Effects of strain rate, temperature and thermomechanical coupling on the finite strain deformation of glassy polymers,” *Mechanics of Materials*, vol. 19, pp. 193–212, 1995.

- [66] S. Raha and P. Bowden, "Birefringence of plastically deformed polymethylmethacrylate," *Polymer*, vol. 13, pp. 174–183, 1972.
- [67] M. Boyce, *Large inelastic deformation of glassy polymer*. PhD thesis, The Massachusetts Institute of Technology, 1986.
- [68] K. Urayama, T. Kawamura, and S. Kohjiya, "Multiaxial deformations of end-linked poly (dimethylsiloxane) networks. 2. experimental tests of molecular entanglement models of rubber elasticity," *Macromolecules*, vol. 34, pp. 8261–8269, 2001.
- [69] K. Urayama, K. Yokoyama, and S. Kohjiya, "Viscoelastic relaxation of guest linear poly (dimethylsiloxane) in end-linked poly(dimethylsiloxane) networks," *Macromolecules*, vol. 34, pp. 4513–4518, 2001.
- [70] K. Urayama, T. Kawamura, and S. Kohjiya, "Structure-mechanical property correlations of model siloxane elastomers with controlled network topology," *Polymer*, vol. 50, pp. 347–356, 2009.
- [71] P. T. X. Chen and R. Wang, "Nonequilibrium statistical thermodynamic theory for viscoelasticity of polymers," *J. Mech . Phys. Solids*, vol. 46, pp. 139–152, 1998.
- [72] S. F. Edwards and T. Vilgis, "The effect of entanglements in rubber elasticity," *Polymer*, vol. 27, pp. 483–492, 1986.
- [73] R. Ball, M. Doi, S. Edwards, and M. Warner, "Elasticity of entangled networks," *Polymer*, vol. 22, pp. 1010–1018, 1981.
- [74] J. Sweeney and I. M. Ward, "Rate dependent and network phenomena in the multiaxial drawing of PVC," *Polymer*, vol. 36, pp. 299–308, 1995.
- [75] J. Sweeney, T. Collins, P. Coates, and I. Ward, "Application of an elastic model to the large deformation, high temperature stretching of polypropylene," *Polymer*, vol. 38, pp. 5991–5999, 1997.
- [76] J. Sweeney, T. Collins, P. Coates, A. Unwin, R. Duckett, and I. Ward, "Application of a large deformation model to unstable tensile stretching of polyethylene," *Int. J. of Plasticity*, vol. 18, pp. 399–414, 2002.
- [77] J. Sweeney, "A comparison of three polymer network models in current use," *Comput. and Th. Polymer Sc.*, vol. 9, pp. 27–33, 1999.

- [78] B. Meissner and L. Matejka, “Comparison of recent rubber-elasticity theories with biaxial stress-strain data : the slip-link theorie of edwards and vilgis,” *Polymer*, vol. 43, pp. 3803–3809, 2002.
- [79] C. Buckley and D. Jones, “Glass-rubber constitutive model for amorphous polymers near the glass transition,” *Polymer*, vol. 36, pp. 3301–3312, 1995.
- [80] C. Buckley, D. Jones, and D. Jones, “Hot-drawing of PET under biaxial stress : application of a three-dimensional glass-rubber constitutive model,” *Polymer*, vol. 37, pp. 2403–2414, 1996.
- [81] N. Billon, “Constitutive model for HIPS in thermoforming range,” in *Lyon, Proc. 11th Int. ESA-FORM Conf. On Material Forming*, 2008.
- [82] N. Billon, “Visco-hyperelastic modelling for amorphous polymers close to their α transition,” in *Monterey (California), Proc. XVth International Congress on Rheology*, 2008.
- [83] N. Billon, “Visco hyperelastic constitutive model for polymer stretch blow moulding,” in *Barcelona (Spain) , Proc. Computational plasticity X; Fundamental and Applications*, 2008.
- [84] N. Billon, “Hyperelasticity and strain-rate sensitivity in amorphous polymer near α transition,” in *AERC 2006, 27-29 April*, 2006.
- [85] N. Billon, “Visco-hyperelastic modelling for amorphous polymers close to their α transition,” in *ICR 2008, 3-8 August*, 2008.
- [86] J. Lagarias, J. Reeds, M. Wright, and P. Wright, “Convergence properties of the nelder-mead simplex method in low dimensions,” *Siam J. Optim.*, vol. 9, pp. 112–147, 1998.
- [87] K. McKinnon, “Convergence of the nelder-mead simplex method to a nonstationary point,” *Siam J. Optim.*, vol. 9, pp. 148–158, 1998.

Annexe I

Annexe 1

I.1 Simplification de la dissipation intrinsèque

Soit l'expression suivante de la dissipation intrinsèque, obtenue par 5.17 :

$$\phi_{int} = \boldsymbol{\sigma} : \left(\mathbb{D}_e + (\mathbf{F}_e \mathbf{l}_v \mathbf{F}_e^{-1})_{sym} \right) - \left(\frac{\partial w}{\partial \mathbf{C}_e} : (2\mathbf{F}_e^T \mathbb{D}_e \mathbf{F}_e) + \frac{\partial w}{\partial \eta} \dot{\eta} + \frac{\partial w}{\partial T} \dot{T} + \rho_0 s \dot{T} \right) \geq 0 \quad (\text{I.1})$$

Par respect du postulat de Boltzmann, On a l'égalité suivante :

$$\frac{\partial w}{\partial T} \dot{T} = -\rho_0 s \dot{T} \quad (\text{I.2})$$

L'expression I.1 prend la forme suivante après simplification des termes thermiques, et regroupement des termes d'origine élastique et anélastique :

$$\phi_{int} = \boldsymbol{\sigma} : \mathbb{D}_e - \frac{\partial w}{\partial \mathbf{C}_e} : (2\mathbf{F}_e^T \mathbb{D}_e \mathbf{F}_e) + \boldsymbol{\sigma} : (\mathbf{F}_e \mathbf{l}_v \mathbf{F}_e^{-1})_{sym} - \frac{\partial w}{\partial \eta} \dot{\eta} \geq 0 \quad (\text{I.3})$$

Calcul tensoriel :

$$\frac{\partial w}{\partial \mathbf{C}_e} : (2\mathbf{F}_e^T \mathbb{D}_e \mathbf{F}_e) = 2 \frac{\partial w}{\partial \mathbf{C}_e} : (\mathbf{F}_e^T \mathbb{D}_e \mathbf{F}_e) \quad (\text{I.4})$$

$$= 2 \frac{\partial w}{\partial \mathbf{C}_e} \mathbf{F}_e^T : \mathbf{F}_e^T \mathbb{D}_e \quad (\text{I.5})$$

$$= 2 \left(\mathbf{F}_e \frac{\partial w}{\partial \mathbf{C}_e} \mathbf{F}_e^T \right) : \mathbb{D}_e \quad (\text{I.6})$$

On a donc l'égalité suivante sur la partie élastique :

$$\boldsymbol{\sigma} : \mathbb{D}_e = 2 \left(\mathbf{F}_e \frac{\partial w}{\partial \mathbf{C}_e} \mathbf{F}_e^T \right) : \mathbb{D}_e \quad (\text{I.7})$$

Soit l'expression de la contrainte :

$$\boldsymbol{\sigma} = 2 \left(\mathbf{F}_e \frac{\partial w}{\partial \mathbf{C}_e} \mathbf{F}_e^T \right) \quad (\text{I.8})$$

Du fait des hypothèses d'incompressibilité, la contrainte donnée par la thermodynamique est définie à une pression indéterminée près p' . Cette pression est fonction des conditions initiales du problème.

L'expression totale de la contrainte est alors de la forme :

$$\boldsymbol{\sigma}^{\text{TOT}} = \boldsymbol{\sigma} - p'\mathbb{I} \quad (\text{I.9})$$

Une fois les deux premiers termes dans I.3, liés aux déformation élastiques, simplifiés, on obtient la forme réduite de la dissipation intrinsèque :

$$\phi_{int} = \boldsymbol{\sigma} : (\mathbf{F}_e \mathbf{l}_v \mathbf{F}_e^{-1})_{sym} - \frac{\partial W}{\partial \eta} \dot{\eta} \geq 0 \quad (\text{I.10})$$

I.2 Expressions analytiques des dérivées partielles

Les expressions analytiques des dérivées partielles de l'énergie élastique fonction des invariants sont données par :

$$\frac{\partial W}{\partial I_1^e} = \frac{1}{2} k T N_c \left(\frac{T_e}{P_e^2} \right) + \frac{1}{2} k T N_s \left(Q_e \left(\frac{P_e U_e + \alpha_e^2 S_e R_e}{(P_e S_e)^2} \right) + \frac{\eta}{S_e} - \frac{\alpha_e^2}{P_e} \right) \quad (\text{I.11})$$

$$\frac{\partial W}{\partial I_2^e} = \frac{1}{2} k T N_s \left(\frac{\eta V_e Q_e}{S_e^2 P_e} + \frac{\eta^2}{S_e} \right) \quad (\text{I.12})$$

$$\frac{\partial W}{\partial I_3^e} = \frac{1}{2} k T N_s \left(\frac{\eta^2 Q_e O_e}{P_e S_e^2} + \frac{\eta^3}{S_e} \right) \quad (\text{I.13})$$

Avec :

$$O_e = 3 + 2\eta I_1^e + \eta^2 I_2^e$$

$$P_e = (1 - \alpha_e^2 I_1^e)$$

$$Q_e = (1 + \eta)(1 - \alpha_e^2)$$

$$R_e = I_1^e + 2\eta I_2^e + 3\eta^2$$

$$S_e = 1 + \eta I_1^e + \eta^2 I_2^e + \eta^3$$

$$T_e = 1 - 2\alpha_e^2 + \alpha_e^4 I_1^e$$

$$U_e = 1 - \eta^2 I_2^e - 2\eta^3$$

$$V_e = 2 + \eta I_1^e - \eta^3$$

Et l'expression analytique de la dérivée partielle de l'énergie élastique fonction du degré de liberté des chaînes est donnée par :

$$\frac{\partial W}{\partial \eta} = \frac{k T N_s (1 - \alpha^2)}{2 P_e} \left(\frac{R_e}{S_e} + \frac{(R_e + (1 + \eta)(2 I_2^e + 6\eta)) S_e - R_e^2 (1 + \eta)}{S_e^2} \right) \quad (\text{I.14})$$

Annexe II

Annexe 2



3755 - DAMOFIP

Modélisation Mécanique des Composites Polyamide / Fibres de Verre.

Un outil de simulation prédictif du comportement en endommagement et rupture des matériaux composites polyamides injectés.

La réduction du cycle de développement et l'allègement des pièces sont des contraintes fortes dans l'industrie, à l'origine de l'utilisation intensive de la simulation numérique et des prototypes virtuels. Ces approches s'appuient sur des modèles classiques de la métallurgie peu adaptés à la description du comportement des matériaux plastiques et de plus, négligent l'influence des variations d'orientations de fibre.

L'absence d'outils véritablement prédictifs de l'endommagement et du comportement à l'impact des composites polyamide/fibre de verre conduit à un surdimensionnement des pièces et donc un impact négatif sur les coûts.

Ce projet EUREKA est donc articulé autour de la prise en compte numérique de l'endommagement dans les modèles micromécaniques. Notre ambition est de décrire le comportement jusqu'à la rupture.

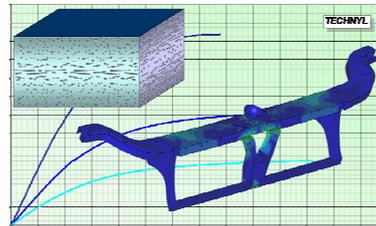
Le partenariat développé entre des expérimentateurs (Rhodia et CEMEF) et des numériciens (UCL, e-Xstream) permettra de bénéficier des compétences requises pour atteindre les objectifs de ce projet. Rhodia se chargera de la mise en œuvre des matières, des caractérisations mécaniques dans les domaines statique et dynamique. Le CEMEF apportera son expertise en ce qui concerne tous les aspects thermomécaniques. Du côté numérique, l'université catholique de Louvain assurera le développement de modèles numériques adaptés. E-Xstream développera une version innovante de son logiciel DIGIMAT, intégrant le produit des recherches des partenaires.

Rhodia Polyamide, un des leaders producteurs mondiaux du polyamide, fournit à l'industrie une large gamme de solutions innovantes, dans quatre activités principales : les intermédiaires polyamides, les plastiques techniques 6.6 et 6, les fils haute ténacité et les fibres pour applications industrielles et textiles. Avec 17 sites industriels et des centres de recherche et développement associés, Rhodia Polyamide sert ses clients partout dans le monde et développe également des produits et des technologies adaptées aux besoins des marchés locaux.

Groupement mondial de chimie de spécialités, acteur engagé dans le développement durable, **Rhodia** détient des positions fortes sur des technologies clés dans les pôles Matériaux de Performance, Chimie d'Applications et Organiques et Services. Rhodia développe une large gamme d'innovations pour les marchés de l'automobile, de l'électronique, de la pharmacie, de l'agrochimie, des produits de consommation, des pneumatiques et des peintures & revêtements, en apportant à ses clients des solutions sur-mesure fondées sur le croisement de ses technologies et de ses marchés. Le Groupe a réalisé un chiffre d'affaires de 5 milliards d'euros en 2005 et emploie aujourd'hui environ 19 500 personnes dans le monde. Il est coté à l'Euronext Paris et au New York Stock Exchange.

« Le label EUREKA et le soutien de l'ANR ont grandement accéléré la mise en place d'une collaboration avec nos partenaires, et ont contribué efficacement à la promotion de ce très ambitieux projet. Sa réussite constituera un pas décisif vers un prototypage virtuel véritablement prédictif. »

Philippe GUINOT



Micro structure, modèle et pièce finale

Contact Presse :

Anne-Elisabeth Mourey – anne-elisabeth.mourey@eu.rhodia.com
Tél. : +33 4 72 89 29 24

Modélisation thermomécanique visco-hyperélastique du comportement d'un polymère semi-cristallin : application au cas d'une matrice polyamide 6.6.

RESUME : Cette étude doctorale porte sur une matrice polyamide 6.6, utilisé dans les matériaux renforcé fibre de verre courtes, et consiste en la mise en place d'une modélisation thermomécanique, autour de la transition mécanique α du polymère.

Une première partie consiste en la mise en évidence expérimentale du comportement thermomécanique du matériau de l'étude. Une campagne d'essais mécanique en traction et cisaillement a été menée, où un effort important sur le protocole expérimental a été mené. Les techniques d'analyse de déformation par corrélation d'images, et de suivi pyrométrique de la température ont, par exemple, été utilisées.

La construction de la base expérimentale met à profit les équivalences vitesses / températures, sur une gamme de température comprise entre -10° et $+60^\circ$, et une gamme de vitesse de déformation comprise entre 10^{-4} et 10 s^{-1} , soit 21 décades suivant la grandeur caractéristique de ces essais, i.e. la vitesse de déformation équivalente à une température de référence.

Une seconde partie consiste en un développement d'un modèle de comportement visco-hyperélastique, décrit dans le cadre formel de la thermodynamique des processus irréversible, et physiquement basé sur les modèles de statistique de chaînes modifiés.

L'introduction d'un processus de relaxation, d'une partie de l'énergie élastique emmagasinée dans le réseau comme source d'anélasticité entropique a été proposée, puis confrontée avec la base expérimentale. Le modèle prend en compte les couplages thermomécaniques forts, et permet, avec un nombre de paramètres réduits, de représenter le comportement global de l'ensemble de nos essais expérimentaux.

Mots clés : Caractérisation thermomécanique, mesures de champs, Mesure infrarouge, polymère semi-cristallin, Edwards-Vilgis, visco-hyperélasticité.

Visco hyperelastic thermo mechanical modelling for the behaviour of a semi-crystalline polymer: application to a Polyamide 6.6 matrix.

ABSTRACT : This study focuses on a Polyamide 6.6 matrix, used in short glass fibre reinforced materials, and consists of the development of a thermo mechanical constitutive model relevant for conditions close to α transition.

First part consists in experimental characterization of thermo mechanical behaviour of the material. Tensile and shear tests were used, where significant effort has been devoted to experimental protocol. Strain field measurements and temperature tracking with pyrometer have been used, for example.

Experimental data base was built taking opportunity from the well-known time-temperature superposition principle. Tests were performed at temperatures ranging from $T_\alpha - 30^\circ$ to $T_\alpha + 30^\circ\text{C}$, and for constant strain-rates ranging from 10^{-4} to 10 s^{-1} . That represents 21 decades, by using an equivalent strain-rate at a reference temperature.

Second part consists in proposing a constitutive model, in a complete thermodynamics framework, physically motivated, using Edwards-Vilgis' network theory. Inelasticity derives from microstructural changes through the evolution of constitutive parameters which is compensated by relaxation of elastic energy. Proposed model takes into account strong thermo-mechanical coupling, and with a reduce number of parameters, allows a good correlation with thermal and mechanical experimental data.

Keywords : Thermo mechanical characterization, full field measurements, Infra-Red measurements, Semi-crystalline polymers, Edwards-Vilgis, Visco hyperelasticity.