



HAL
open science

Mécanismes et modélisation mécanique de la déformation, de l'endommagement et de la rupture du PolyAmide 11 pur et renforcé choc

Guillaume Boisot

► **To cite this version:**

Guillaume Boisot. Mécanismes et modélisation mécanique de la déformation, de l'endommagement et de la rupture du PolyAmide 11 pur et renforcé choc. Sciences de l'ingénieur [physics]. École Nationale Supérieure des Mines de Paris, 2009. Français. NNT : 2009ENMP1635 . tel-00422223

HAL Id: tel-00422223

<https://pastel.hal.science/tel-00422223>

Submitted on 6 Oct 2009

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 DES MINES
DE PARIS

ED n°432 : Sciences des Métiers de l'Ingénieur

N° attribué par la bibliothèque
/ _ / _ / _ / _ / _ / _ / _ / _ / _ / _ / _ / _ / _ / _ / _ /

THÈSE

pour obtenir le grade de

DOCTEUR DE L'ÉCOLE NATIONALE SUPÉRIEURE DES MINES DE PARIS

Spécialité Sciences et Génie des Matériaux

Présentée et soutenue publiquement par

Guillaume BOISOT

le 30 Juin 2009

**Mécanismes et modélisation mécanique
de la déformation, de l'endommagement et de la rupture
du PolyAmide 11 pur et renforcé choc**

Directeurs de thèse : Lucien LAIARINANDRASANA, Christophe FOND

Jury

M. Thomas PARDOEN	Rapporteur	UCL Louvain, Belgique
M. Christopher PLUMMER	Rapporteur	EPFL Lausanne, Suisse
M ^{me} Sylvie CASTAGNET	Examinateur	ENSMA Poitiers, France
M. Gilles HOCHSTETTER	Examinateur	ARKEMA, France
M. André PINEAU	Examinateur	MINES ParisTech, France
M. Viggo TVERGAARD	Examinateur	DTU, Danemark
M. Jacques BESSON	Examinateur invité	MINES ParisTech, France
M. Robert SCHIRRER	Examinateur invité	ICS Strasbourg, France
M. Christophe FOND	Directeur de thèse	ICS Strasbourg, France
M. Lucien LAIARINANDRASANA	Directeur de thèse	MINES ParisTech, France

A mon père...

"Every day you may make progress. Every step may be fruitful. Yet there will stretch out before you an ever-lengthening, ever-ascending, ever-improving path. You know you will never get to the end of the journey. But this, so far from discouraging, only adds to the joy and glory of the climb."

Sir Winston Churchill

REMERCIEMENTS

JE n'aurais jamais cru rencontrer autant de difficultés à ce stade du manuscrit pour écrire les remerciements. Certes, je n'ai pas été confronté à d'énormes problèmes lors de la rédaction du mémoire mais cette fois, je reste improductif devant ma page vierge L^AT_EX. Cependant, conformément à la coutume, je me dois de remercier l'ensemble des personnes sans qui cette thèse n'aurait pas été une réussite, autant sur le plan scientifique que personnel, et passer outre mes carences littéraires.

La particularité de cette thèse, conjointe à deux laboratoires de recherche que sont le Centre des Matériaux de l'Ecole des Mines de Paris et l'Institut Charles Sadron, m'a donné l'occasion de rencontrer de nombreux individus. Dès lors, cette page dédiée aux remerciements s'avère des plus périlleuses étant donné qu'il s'agit de n'oublier personne. . .

En premier lieu, je tiens à remercier particulièrement les membres de mon jury qui ont accepté de lire et corriger les 400 et quelques pages de ce mémoire. Leurs remarques ont été très pertinentes et m'ont permis de prendre encore un peu plus de recul sur les travaux qui ont bercé trois années de ma vie. Merci donc à **Viggo Tvergaard** pour avoir présidé mon jury, **Thomas Pardoën** et **Christopher Plummer** pour avoir rapporté mon manuscrit et enfin, **Sylvie Castagnet**, **Jacques Besson** et **André Pineau** pour avoir examiné mon travail.

Ensuite, je souhaiterais adresser mes sincères remerciements à Jean-Pierre Trottier et son successeur Esteban Busso, directeurs du centre des matériaux de l'école des Mines de Paris qui m'ont offert la chance d'apprécier les connaissances scientifiques délivrées au centre et qui m'ont fait partager un environnement, tant savant qu'humain.

Cette thèse fut l'objet d'une convention CIFRE, donc financée par un groupe industriel en l'occurrence **ARKEMA**. Ainsi, je remercie **ARKEMA** de m'avoir fait confiance et plus particulièrement Gilles Hochstetter d'**ARKEMA CERDATO** pour l'intérêt qu'il a porté à l'étude, son aide précieuse et ses remarques toujours appropriées. Je me dois également de remercier Lionel Hugon et Patrick Coupart pour l'aide apportée au cours de cette aventure.

Il est maintenant temps de me consacrer à mes deux Directeurs de thèse **Lucien Laiarinandrasana** et **Christophe Fond**.

Lucien Laiarinandrasana, derrière ce nom imprononçable – d'ailleurs une astuce pour ses prochains doctorants qui seront certainement amenés à citer son nom en conférence par exemple ; il s'agit de décomposer comme suit : Laia-rinan-drasana ou pour ceux qui ont plus de facilité : laiari-nandrasana – se cache une personne non seulement compétente mais

également agréable et souriante, avec laquelle j'ai eu un plaisir certain à travailler. Merci Lucien pour ces trois années passées en ta compagnie et de m'avoir transmis une bribe de tes connaissances. J'ai adoré l'ensemble des discussions qu'elles soient scientifiques ou non, que nous avons pu partager et je te répète une dernière fois que les barrières autour du CdM ne servent strictement à rien!! Enfin je ne peux pas ne pas souligner ton impressionnante disponibilité...

Christophe Fond, merci Christophe pour ton initiation à la rupture dynamique et à la micromécanique des polymères chargés! J'ai vraiment beaucoup apprécié tes méthodes de travail. J'espère que le terme "entaillé" ne te procure plus des maux de ventre... Sinon, je n'oublie pas non plus nos nombreuses discussions sur le sport et la bourse, vive Natixis!

Christophe & Lucien : votre complémentarité était idéale car les méthodes de travail différentes. Ce duo, que vous avez formé, m'a donc permis de m'épanouir et de quitter le statut d'ingénieur pour découvrir celui de docteur.

Je remercie également l'ensemble du personnel du centre des matériaux qui m'ont donné la possibilité d'accomplir la tâche qui m'incombait : Bertrand Briot et Julie Heurtel pour la réalisation des essais et leur bonne humeur permanente ; Anne Laurent pour les heures de MEB passées en sa compagnie et l'apprentissage de la microtomie ; l'ensemble de l'équipe de l'atelier mécanique sans qui le centre ne serait pas ce qu'il est!! ; Grégory Sainte Luce et Olivier Delhomme qui m'ont apporté leur aide concernant l'informatique, Linux et les cluster ; Odile qui trouve les articles introuvables ; Françoise Di Rienzo pour sa formation ZéBuLoN ; Laurent Corté pour ses remarques lors de la dernière ligne droite ; l'équipe administrative (les deux Véro, Saro, Konaly, Catherine...); et l'ensemble des thésards que j'ai eu l'occasion de croiser avec en particulier Cédric (alors l'OM enfin champion en 2010??), Florian (Starobrnno forever, <http://www.starobrnno.cz>), Aurélie (eh oui, en effet, super le fameux DEPOS 2007), Clémence, Angélique, Jean-Yves et tous ceux que je n'ai pas cités...

Un grand merci à Jacques Besson qui m'a non seulement souvent prodigué des conseils avisés concernant ZéBuLoN, mais également débarrassé pas mal de situations. J'adresse également mes remerciements à Monsieur Pineau avec lequel j'ai toujours apprécié nos discussions autour de thèmes divers et variés mais toujours des plus passionnants.

Au cours de ce dernier paragraphe, je tiens à remercier l'ensemble du personnel de l'Institut Charles Sadron situé à Strasbourg et plus particulièrement, Robert Schirrer et Christian Gauthier, respectivement ancien et nouveau chef de l'équipe "Mécanique Physique des Polymères Solides", équipe qui m'a accueilli durant la seconde partie de ma thèse. J'ai eu la chance de travailler avec une équipe très stimulante à laquelle je témoigne toute ma gratitude. Je remercie donc l'ensemble des membres qui la composent... et particulièrement, merci à Hervé Pelletier d'avoir toléré mes blagues scabreuses si tôt le matin, merci à Vincent Le Houerou d'avoir accru mes connaissances musicales (que notre blog vive longtemps!) et merci à Katerina Vysochina.

Je remercie très sincèrement Damien Favier aka Daminou, Super Da-

mien, etc, ingénieur de l'équipe MPPS, pour sa patience, sa disponibilité, son professionnalisme, son efficacité et également pour ses chemises noires, sa mirabelle qui décoiffe et qui nous fait faire des bêtises et enfin pour le nombre incalculable de fois où il a eu la gentillesse de me ramener chez moi !

Merci également à toute la bande de l'ICS avec laquelle j'ai partagé bon nombre de soirées, de discussions diverses, de rire! Céline "MCA" Desvignes (Quel stage extincteur, n'est ce pas!!?), Merci donc à Thibaud "en tout bien tout honneur" Chatel, Mathieu "cours Forrest" Solar (une date pour la crémaillère?), Guillaume Klein (je reste sur ma position : Grand corps malade n'est pas Baudelaire!!), Christelle "Cricri" Vergnat (bon courage pour la rédaction), Bonzini et évidemment Magali "Mam'S-tras" Meyer (simplement merci pour tout, sinon la thèse ferait 500 pages et encore navré pour la portière). Je n'oublie pas Elodie O., merci sœurlette et Eric Charrault (Don't f**k with Canadian elks!!).

Je ne peux conclure sans remercier Pierre Petit, éminent chercheur certes, mais également talentueux joueur de baby-foot qui a eu la patience de m'initier à cet art!

Enfin, je remercie ma famille pour leur soutien et particulièrement ma mère et mon frère pour tout ce qu'ils ont pu faire pour moi, leurs conseils avisés et leur simple présence à mes côtés.

Strasbourg, le 26 août 2009.

"La clef de toutes les sciences est sans contredit le point d'interrogation ; nous devons la plupart des grandes découvertes au comment ? Et la sagesse dans la vie consiste peut-être à se demander, à tout propos, pourquoi ?"

Honoré de Balzac.

"Le danger qui menace les chercheurs aujourd'hui serait de conclure qu'il n'y a plus rien à découvrir."

Pierre Joliot, *La Recherche passionnément.*

TABLE DES MATIÈRES

REMERCIEMENTS	v
TABLE DES MATIÈRES	ix
LISTE DES FIGURES	xvii
LISTE DES TABLEAUX	xxxii
NOTATIONS	xxxv
PRÉFACE	1
I Introduction générale	3
1 UN THERMOPLASTIQUE SEMI-CRISTALLIN : LE POLYAMIDE 11	5
1.1 LES POLYMÈRES SEMI-CRISTALLINS	7
1.1.1 Structure des polymères semi-cristallins	7
1.1.1.1 États amorphe et cristallin	7
1.1.1.2 Le réseau cristallin	7
1.1.1.3 L'indice de cristallinité	7
1.1.2 Morphologie des polymères semi-cristallins	9
1.1.2.1 Les ordres de grandeur	9
1.1.2.2 La lamelle cristalline	9
1.1.2.3 Le sphérolite	10
1.1.3 La température de transition vitreuse	11
1.2 MISE EN FORME DES POLYMÈRES	12
1.2.1 L'extrusion	12
1.2.2 Injection	13
1.2.3 Les autres...	13
1.3 LE POLYAMIDE 11 : QUELQUES GÉNÉRALITÉS	14
1.3.1 Structure du polyamide 11	14
1.3.1.1 Synthèse du PA11	14
1.3.1.2 Morphologie cristallographique	15
1.3.1.3 Structures lamellaires et sphérolitiques	16
1.3.2 Le vieillissement du PA11	16
1.3.2.1 Le vieillissement physique du PA11	17
1.3.2.2 Le vieillissement chimique du PA11	18
1.3.3 Quelques propriétés chimiques et mécaniques	19
1.3.4 Domaines d'application	19
2 DÉFORMATION, ENDOMMAGEMENT ET RUPTURE	21

2.1	DÉFORMATION DES POLYMÈRES SEMI-CRISTALLINS	23
2.1.1	Loi de comportement mécanique	23
2.1.1.1	Introduction	23
2.1.1.2	Comportement aux petites déformations	24
2.1.1.3	Comportement aux grandes déformations	26
2.1.2	Mécanismes microscopiques de déformation	30
2.1.2.1	Déformation des cristaux	30
2.1.2.2	Déformation des empilements de lamelles	31
2.1.2.3	Déformation des sphérolites	32
2.1.2.4	Déformation du polymère massif en traction	33
2.2	ENDOMMAGEMENT PAR CAVITATION	34
2.2.1	Germination, croissance et coalescence de vides	34
2.2.1.1	Germination des cavités	34
2.2.1.2	Croissance des cavités	35
2.2.1.3	Coalescence des cavités	35
2.2.2	Suivi de l'endommagement par rétro-diffusion cohérente	36
2.2.2.1	Mécanismes d'endommagement et diffuseurs de lumière	37
2.2.2.1.1	Les mécanismes d'endommagement	37
2.2.2.1.2	Les diffuseurs de lumière	38
2.2.2.2	La technique des petits déchargements rapides	39
2.2.2.2.1	Procédure expérimentale	39
2.2.2.2.2	Propriétés optiques au cours des déchargements	40
2.2.3	Modélisation de l'endommagement par cavitation	43
2.2.3.1	Le modèle de Rousselier	44
2.2.3.1.1	Equations générales	44
2.2.3.1.2	Prise en compte de la visco-plasticité	45
2.2.3.1.3	Extension à la germination	45
2.2.3.2	Le modèle de Steenbrink	45
2.2.3.2.1	Le modèle de Boyce modifié par Wu et van der Giessen	45
2.2.3.2.2	Le modèle de Gurson modifié par Becker et Needleman	47
2.2.3.3	Conclusion	51
2.3	MÉCANIQUE DE LA RUPTURE	51
2.3.1	Généralités	51
2.3.2	Mécanique linéaire de la rupture	53
2.3.2.1	Concentration des contraintes	53
2.3.2.2	Le taux de restitution d'énergie G	55
2.3.2.3	Relation entre K et G	55
2.3.2.4	Critère de rupture	56
2.3.2.5	Plasticité confinée	56
2.3.3	Mécanique non linéaire de la rupture - Plasticité étendue	60
2.3.3.1	L'intégrale de contour J	60
2.3.3.2	Le champ H.R.R.	61
2.3.3.3	Déchirure ductile $J - \Delta a$	61
2.3.4	Rupture par craquelage	62
2.3.4.1	Généralité des craquelures	62

2.3.4.2	Genèse, croissance	63
2.3.4.3	Mécanique élémentaire de la craquelure . .	65
2.3.4.4	Modélisation de la craquelure par le mo- dèle de zone cohésive	67
3	LES POLYMÈRES RENFORCÉS	73
3.1	RENFORCER : POURQUOI, COMMENT ?	75
3.1.1	Contexte	75
3.1.2	Distances interparticulaires, tailles de particules et frac- tions volumiques.	75
3.1.2.1	La distance interparticulaire un paramètre critique?	77
3.1.2.2	La taille des particules est-elle bornée? . . .	80
3.1.2.2.1	Existe-il une taille maximale de particule?	80
3.1.2.2.2	Existe-il une taille minimale de particule?	82
3.1.3	Transition ductile-fragile	82
3.1.4	Cavitation vs décohésion à l'interface	85
3.1.5	Critères de cavitation	86
3.1.5.1	Le critère de Lazzeri-Bucknall	87
3.1.5.2	Le critère de Dompas-Groeninckx	89
3.1.5.3	Le critère de Fond-Lobrecht-Schirrer	92
3.2	DÉFORMATION, ENDOMMAGEMENT ET RUPTURE À L'ÉCHELLE MICROSCOPIQUE, LES MÉCANISMES DU RENFORCEMENT	97
3.2.1	La théorie du recouvrement des champs de contraintes .	97
3.2.2	La théorie des couches orientées	98
3.2.3	Une théorie plus récente : le modèle de Corté	103
3.2.4	Conclusion	105
3.3	MODÉLISATION MICROMÉCANIQUE DES POLYMÈRES RENFORCÉS	105
3.3.1	Quelques outils préliminaires.	105
3.3.1.1	Arrangement anti-parallèle des cellules . .	106
3.3.1.2	Le critère d'écoulement anisotrope de Hill .	107
3.3.2	Le modèle de Tzika	108
3.3.2.1	Réponse macroscopique de la cellule	109
3.3.2.2	Comportement de la matrice	110
3.3.2.3	Directions locales du matériau	110
3.3.2.4	Conditions de chargement	111
3.3.2.5	Résultats	112
3.3.2.6	Conclusions	113
3.3.3	Le modèle de van Dommelen	114
3.3.3.1	Présentation de l'étude	114
3.3.3.2	Conclusions	115
II	Les matériaux	117
4	LE POLYAMIDE 11 NON VIEILLI	119
4.1	GÉNÉRALITÉS	121
4.2	SPECTROMÉTRIE MÉCANIQUE	122
4.2.1	Dynamic Mechanical Analysis	122

4.2.2	Procédure expérimentale	122
4.2.3	Résultats	122
4.3	CRYOFRACTOGRAPHIE	123
4.3.1	Principe de la cryofractographie	123
4.3.2	Observation du PA11	124
5	LES MATÉRIAUX VIEILLIS	127
5.1	LES MATÉRIAUX	129
5.1.1	Description des matériaux	129
5.1.2	Description des renforts	129
5.1.3	Le vieillissement	130
5.2	SPECTROMÉTRIE MÉCANIQUE	130
5.2.1	Introduction	130
5.2.2	Résultats	130
5.3	OBSERVATIONS MICROSCOPIQUES	135
5.3.1	Cryofractographie	135
5.3.2	Distances interparticulaires	137
 III Mise en évidence de l'élasto-visco-plasticité		139
6	TRACTION UNIAXIALE SUR DES ÉPROUVETTES LISSES	141
6.1	LA MATRICE : LE POLYAMIDE 11	143
6.1.1	Première série d'essais	143
6.1.1.1	Protocole opératoire	143
6.1.1.2	Les échantillons	143
6.1.1.3	Dispersion des résultats	143
6.1.1.4	Un comportement élasto-visco-plastique	144
6.1.2	Seconde série d'essais	144
6.1.2.1	Protocole opératoire	144
6.1.2.2	Les échantillons	145
6.1.2.3	Les résultats	145
6.2	LES MATÉRIAUX VIEILLIS	146
6.2.1	Protocole opératoire	146
6.2.2	La matrice plastifiée et vieillie : "aged P40"	147
6.2.3	Avec renforts : "aged P20 EPR"	148
6.3	CONCLUSIONS	149
7	TRACTION UNIAXIALE SUR DES ÉPROUVETTES ENTAILLÉES	151
7.1	INTRODUCTION	153
7.2	MÉCANIQUE DES ÉPROUVETTES ENTAILLÉES	153
7.3	LA MATRICE NON VIEILLIE À 0°C	155
7.3.1	Protocole opératoire	155
7.3.1.1	Choix des essais	155
7.3.1.2	Géométrie des échantillons	156
7.3.1.3	Conditions expérimentales	157
7.3.2	Effet du taux de triaxialité sur le comportement mécanique	157
7.4	LES MATÉRIAUX VIEILLIS	159
7.4.1	Choix de la géométrie	159
7.4.2	Résultats et analyses	159
7.5	CONCLUSIONS	161

8	SIMULATIONS NUMÉRIQUES DU COMPORTEMENT MÉCANIQUE	165
8.1	MODÉLISATION DU COMPORTEMENT MÉCANIQUE	167
8.1.1	Modélisation de l'élasto-visco-plasticité	167
8.1.2	Modélisation du rhéodurcissement	168
8.1.3	Conclusions	168
8.2	MODÉLISATION DU COMPORTEMENT DE LA MATRICE	168
8.2.1	Maillage et conditions aux limites	168
8.2.2	Identification des paramètres élastiques	170
8.2.3	Identification des paramètres visco-plastiques	170
8.3	MODÉLISATION DU COMPORTEMENT DE LA MATRICE PLASTIFIÉE ET VIEILLIE	172
8.4	MODÉLISATION DU COMPORTEMENT DU "AGED P20 EPR"	174
8.5	CONCLUSIONS	177

IV Germination, croissance et coalescence ou quand l'endommagement s'en mêle **179**

9	ÉTUDE DE L'ENDOMMAGEMENT PAR CROISSANCE DE CAVITÉS DU PA11	181
9.1	ENDOMMAGEMENT À FAIBLES TAUX DE TRIAXIALITÉ DES CONTRAINTES	183
9.1.1	Introduction	183
9.1.2	Mode opératoire	183
9.1.3	Mesure de densité par pycnométrie	183
9.1.3.1	Définition	183
9.1.3.2	Théorie	184
9.1.4	Résultats & analyses	184
9.1.5	Informations complémentaires par rétro-diffusion cohérente	186
9.2	INFLUENCE DE LA TRIAXIALITÉ SUR L'ENDOMMAGEMENT	187
9.2.1	Protocole opératoire	187
9.2.2	Observations microscopiques	188
9.2.2.1	Géométrie NT_4	188
9.2.2.2	Géométrie $NT_{1.6}$	189
9.2.2.3	Géométrie $NT_{0.8}$	190
9.2.3	Conclusions	192
9.3	MODÉLISATION DE L'ENDOMMAGEMENT : LE MODÈLE GTN	193
9.3.1	Le critère de plasticité macroscopique de Gurson	193
9.3.2	Le critère de plasticité macroscopique de Gurson (Leblond et Perrin 1996)	197
9.3.3	Extension du modèle de Gurson	198
9.3.3.1	Cas d'une matrice écrouissable	198
9.3.3.2	Croissance des cavités	198
9.3.3.3	Germination des cavités	198
9.3.3.4	Interactions entre cavités et coalescence	199
9.3.3.5	Notion de contrainte scalaire effective	200
9.4	RÉSULTATS DE LA MODÉLISATION	200
9.4.1	Expression de q_2	200
9.4.2	Evolution de la porosité en cours de déformation	201
9.4.3	Evolution de la triaxialité sur NT_4	203

9.4.4	Evolution de la contrainte dans les éprouvettes <i>NT</i>	204
9.4.5	Calculs cellulaires	206
9.5	CONCLUSIONS	208
10	ÉTUDE DE L'ENDOMMAGEMENT DES MATÉRIAUX VIEILLIS	211
10.1	INTRODUCTION	213
10.2	OBSERVATIONS MICROSCOPIQUES	213
10.2.1	Faciès de rupture	213
10.2.1.1	A 0°C	213
10.2.1.2	A -60°C	214
10.2.2	Essais interrompus à 0°C et 3 <i>mm.s</i> ¹	214
10.2.2.1	"Aged P40"	214
10.2.2.2	"Aged P20 EPR"	216
10.2.2.3	"Aged P20 NBR"	217
10.2.3	Cavitation des nodules	219
10.3	ÉTUDE DE L'ENDOMMAGEMENT DU "AGED P20 EPR" PAR RÉTRO-DIFFUSION COHÉRENTE	221
10.3.1	Mode opératoire	221
10.3.2	Mesure de densité par pycnométrie	221
10.3.3	Résultats	222
10.4	DEUX MÉCANISMES D'ENDOMMAGEMENT À 0°C	224
10.5	QUELQUES RÉSULTATS NUMÉRIQUES.	225
10.5.1	Aged P40	225
10.5.2	Aged P20 EPR	227
10.5.3	Conclusions	229
10.6	CONCLUSIONS	229
11	ÉTUDE DE LA RUPTURE DU POLYAMIDE	235
11.1	RUPTURE DUCTILE DES ÉPROUVETTES ENTAILLÉES À 0°C	237
11.1.1	Le PA11	237
11.1.2	Le PA11 plastifié et vieilli : le "aged P40"	239
11.1.3	Le PA11 plastifié, renforcé et vieilli : le "aged P20 EPR" et le "aged P20 NBR"	240
11.2	FLEXION 3 POINTS SUR ÉPROUVETTES FISSURÉES DE PA11	241
11.2.1	Protocole expérimental	241
11.2.2	Résultats	242
11.2.3	Observations faciès de rupture	244
11.3	MODÉLISATION DE LA RUPTURE	246
11.3.1	Introduction	246
11.3.2	Calculs en 3 Dimensions	246
11.3.2.1	Maillage et conditions aux limites	246
11.3.2.2	Résultats	246
11.3.2.3	Le modèle de Rousselier étendu	247
11.3.3	Calculs en 2 Dimensions avec le modèle GTN	248
11.3.3.1	Maillage et conditions aux limites	248
11.3.3.2	Résultats	249
11.3.4	Approche globale : détermination de la ténacité <i>J_{IC}</i>	251
11.3.5	Modélisation de la fissuration fragile	252
11.4	CONCLUSIONS	254

V Mise en valeur et prise en compte de l'auto-échauffement de la matrice	257
12 MISE EN ÉVIDENCE DE L'AUTO-ÉCHAUFFEMENT	259
12.1 INTRODUCTION	261
12.2 AUTO-ÉCHAUFFEMENT EN TRACTION UNIAXIALE	261
12.2.1 Eprouvettes lisses	261
12.2.2 Eprouvettes entaillées NT_4	262
12.2.2.1 PA11	262
12.2.2.2 Aged P20 EPR et Aged P20 NBR	264
12.3 AUTO-ÉCHAUFFEMENT EN POINTE DE FISSURE	266
12.3.1 Introduction	266
12.3.2 Essais avec caméra thermique	266
12.3.2.1 Protocole expérimental	266
12.3.2.2 Résultats	266
12.3.3 Conclusions	268
12.4 CONCLUSIONS	268
13 QUELQUES CALCULS THERMO-MÉCANIQUES	271
13.1 INTRODUCTION	273
13.2 TROIS MÉTHODES DE DÉTERMINATION DE LA VARIATION DE TEMPÉRATURE	274
13.2.1 Par post-processeur	274
13.2.2 En cours de calcul mécanique	274
13.2.3 Simulations avec couplage faible thermo-mécanique	274
13.2.4 Commentaire	275
13.3 DÉTERMINATION DES PARAMÈTRES EN FONCTION DE LA TEMPÉRATURE	275
13.3.1 Présentation de la méthode	275
13.3.2 Résultats des essais	275
13.3.3 Lois de variation des paramètres en fonction de la température	276
13.4 SIMULATIONS NUMÉRIQUES SUR ÉPROUVETTES NT	277
13.4.1 Premiers résultats	277
13.4.2 Détermination du coefficient β	278
13.4.3 Simulations numériques actualisées	279
13.5 SIMULATIONS NUMÉRIQUES EN FLEXION 3 POINTS	283
13.5.1 Calculs adiabatiques	283
13.5.2 Calculs thermo-mécaniques à couplage faible	285
13.6 CONCLUSIONS	288
VI Micromécanique des polymères chargés	291
14 MICROMÉCANIQUE DES POLYMÈRES CHARGÉS	293
14.1 QUELQUES CALCULS NUMÉRIQUES PRÉLIMINAIRES EN ÉLASTICITÉ LINÉAIRE...	295
14.1.1 Méthode de calculs	296
14.1.1.1 Les bilans d'énergie	296
14.1.1.1.1 Préambule	296
14.1.1.1.2 Notations	296

14.1.1.1.3	Méthodes de calculs	297
14.1.2	Résultats des simulations numériques	298
14.1.3	Conclusion	299
14.2	LA TENSION DE SURFACE	299
14.2.1	Détermination de la taille minimale de la cavité	299
14.2.2	Simulations numériques	301
14.2.2.1	Vérification du calcul analytique	302
14.2.2.2	Préambule	303
14.2.2.3	En élasticité linéaire	304
14.2.2.4	En élasto-plasticité	305
14.2.2.5	En élasto-visco-plasticité	307
14.2.2.6	Rôle du rhéodurcissement	310
14.2.2.7	Si les nodules de caoutchouc cavitent.	312
14.3	COMPLÉMENTS : LIAISON ENTRE LA DYNAMIQUE MOLÉCULAIRE ET LA MÉCANIQUE DES MILIEUX CONTINUS	318
14.4	CONCLUSIONS	321
 Conclusions & perspectives		327
 BIBLIOGRAPHIE		333
 Annexes		353
A	LA THÉORIE DE LA DIFFUSION MULTIPLE DE LA LUMIÈRE	353
A.1	DIFFUSION SIMPLE	353
A.2	DIFFUSION MULTIPLE DE LA LUMIÈRE	354
A.3	RÉTRODIFFUSION COHÉRENTE DE LA LUMIÈRE	354
B	ANALYSES DMA SUR DES BANDES EXTRUDÉES DE PA11	357
C	MONTAGE EXPÉRIMENTAL DES ESSAIS DE TRACTION SUR ÉPROUVETTES ENTAILLÉES	359
D	TRACTION UNIAXIALE SUR DES MATÉRIAUX VIEILLIS À -10°C	361
E	ANISOTROPIE ET FISSURATION DES ÉPROUVETTES DE FLEXION 3 POINTS	363
F	MICROMÉCANIQUE, COMPLÉMENTS. . .	367
F.1	EN VISCO-ÉLASTO-PLASTICITÉ	367
F.2	EN VISCO-ÉLASTO-PLASTICITÉ AVEC RHÉODURCISSEMENT	367

LISTE DES FIGURES

1.1	Notions de réseau et de motif dans un cristal bidimensionnel (Haudin et G'sell 1995).	8
1.2	L'expérience de Friedrich et Knipping (Haudin et G'sell 1995).	9
1.3	Schématisation de l'organisation en lamelles cristallines formées des repliements des chaînes macromoléculaires. Les lamelles sont séparées par une phase amorphe interlamellaire composée de chaînes liés, de chaînes libres, de bouts de chaînes et de tout ce qui n'a pas pu cristalliser (Haudin et G'sell 1995).	10
1.4	Observation de la croissance de sphérolites dans du PET par microscopie optique en transmission en lumière polarisée (Lefebvre 2002). Au cours de la croissance, les sphérolites présentent une symétrie sphérique. Lorsqu'ils entrent en contact, leur enveloppe externe finit par devenir polygonale.	10
1.5	Observation de deux sphérolites en croissance de diamètre $150 \mu m$ par microscopie optique en transmission en lumière polarisée. L'observation est faite entre polariseurs croisés (Haudin et G'sell 1995).	11
1.6	Schéma général de la mise en œuvre des polymères thermoplastiques (Haudin 2006).	12
1.7	Schéma de principe d'une extrudeuse monovis (Haudin 2006).	13
1.8	Les différentes phases du cycle d'injection (Haudin 2006).	14
1.9	Synthèse de l'acide ω -amino undécanoïque (Kohan 1973).	15
1.10	Réaction de polycondensation du PA11.	15
1.11	Conformations théoriques possibles des chaînes macromoléculaires dans les polyamides (exemple du PA6) : (a) conformation parallèle ; (b) conformation anti-parallèle.	16
1.12	Empilement des plans selon deux structures : (a) structure α ; (b) structure β	17
1.13	Maille cristalline du PA11 (Jolly <i>et al.</i> 2002). L'axe c est orienté selon la chaîne macromoléculaire ; les liaisons hydrogène sont orientées dans la direction a	17
1.14	Observation des sphérolites du PA 11 en lumière polarisée avec polariseur et analyseur croisés (Magill 1969).	18
1.15	Modèle de lamelles torsadées en métal proposé par Breedon <i>et al.</i> (1973).	18
1.16	Comparaison des densités de différents matériaux (source : ARKEMA).	19
1.17	Exemples d'application du PA11.	20

1.18	Utilisation des matériaux fournis par ARKEMA dans le domaine automobile en 2005.	20
2.1	Différentes géométries d'essais mécaniques (G'Sell 1995).	24
2.2	Comportement typique des polymères (G'Sell 1995).	26
2.3	Critères de plasticité et de craquelage (Sternstein et Ongchin 1969).	26
2.4	Développement de la striction dans le polyéthylène (G'Sell 1995).	27
2.5	Influence de la vitesse d'allongement sur l'auto-échauffement induit par la traction dans le polyéthylène (Marquez-Lucero <i>et al.</i> 1989).	28
2.6	Différentes échelles de caractérisation de la déformation (G'Sell 1995).	28
2.7	Courbes contrainte vraie-déformation vraie de divers polymères obtenues à 25°C avec la méthode vidéométrique (G'Sell 1995).	29
2.8	Influence de la température sur le comportement plastique du polyéthylène et du polycarbonate ($\dot{\epsilon} = 10^{-4}s^{-1}$) (G'Sell 1995).	30
2.9	Les deux types de direction de glissement (Haudin 1995).	31
2.10	Mécanismes de déformation de la phase amorphe dans les polymères semi-cristallins (Haudin 1995) : a) état non déformé (modèle à deux phases); b) glissement interlamellaire ; c) séparation inter-lamellaire ; d) cas des lamelles cristallines torsadées : séparation lamellaire en A et glissement inter-lamellaire en B.	32
2.11	Les trois types de régions à l'intérieur d'un sphérolite (Haudin 1995) : (1) régions équatoriales ; (2) régions diagonales ; (3) régions polaires.	33
2.12	Schéma général de la déformation en traction d'un polymère semi-cristallin (Peterlin 1971).	33
2.13	Cavitation localisée dans la phase amorphe d'une lamelle cristalline : (1) Phase cristalline ; (2') : Phase amorphe libre ; (2'') Phase amorphe confinée (Castagnet 1998).	34
2.14	Modèle schématique de la cavitation d'un polymère semi-cristallin soumis à une déformation de tension (Peterlin 1972).	36
2.15	Processus de déformation et mécanismes hypothétiques d'endommagement dans une particule de caoutchouc et dans une particule core-shell (Géhant et Schirrer 1999).	37
2.16	Eprouvette de rétro-diffusion et capteurs permettant de déduire la variation de volume	39
2.17	Chargement appliqué lors des essais de rétro-diffusion	40
2.18	Système optique pour la rétro-diffusion cohérente	40
2.19	Schémas de la courbe de traction, de la variation de volume et parcours optique libre moyen extrapolés pour un chargement nul	42
2.20	A gauche : configuration initiale de la cellule axisymétrique - A droite : maillage de la cellule dans le cas $a_0/b_0 = 0.2$ (Steenbrink <i>et al.</i> 1997).	46

2.21	Courbes de résultats pour différentes triaxialités Σ_m/Σ_e pour $h/s_0 = 5.15$ et $f_0 = 0.083$ en fonction de la déformation effective (Steenbrink <i>et al.</i> 1997) : a) Contrainte macroscopique effective ; b) variation de la fraction volumique des cavités ; c) évolution de la déformation surfacique.	48
2.22	Cartographies du taux de cisaillement plastique à des déformations effectives équivalentes (≈ 0.14) pour trois taux de triaxialité (Steenbrink <i>et al.</i> 1997) : a) $\Sigma_m/\Sigma_e = 1/3$; b) $\Sigma_m/\Sigma_e = 1$; c) $\Sigma_m/\Sigma_e = 3$	49
2.23	Comparaisons des prédictions basées sur le modèle de Guron modifié et les calculs de cellule pour trois taux de triaxialité Σ_m/Σ_e pour $\alpha = 0$, $h/s_0 = 0$ (absence d'adoucissement), $C^R/s_0 = 0$ (absence de rhéodurcissement) et $f_0 = 0.083$ en fonction de la déformation effective (Steenbrink <i>et al.</i> 1997) : (a) Contrainte macroscopique effective ; (b) variation de la fraction volumique des cavités.	50
2.24	Comparaisons des prédictions basées sur le modèle de Guron modifié et les calculs de cellule pour trois taux de triaxialité Σ_m/Σ_e pour $\alpha = 0.08$, $h/s_0 = 5.15$, $C^R/s_0 = 0.059$ et $f_0 = 0.083$ en fonction de la déformation effective (Steenbrink <i>et al.</i> 1997) : (a) Contrainte macroscopique effective ; (b) variation de la fraction volumique des cavités.	51
2.25	Modes de rupture suivant la température et le taux de déformation (Schultz 1984).	52
2.26	Les différents types d'endommagement dans les polymères (Schirrer 1995).	53
2.27	Les trois modes utilisés pour contrôler la propagation d'une fissure.	53
2.28	Plaquette contenant une fissure de longueur $2a$	54
2.29	Avancée et fermeture virtuelle d'une fissure (François <i>et al.</i> 1993).	56
2.30	Schéma de principe des contraintes en pointe de fissure en plasticité confinée (François <i>et al.</i> 1993).	57
2.31	Zone plastifiée en pointe de fissure par le modèle d'Irwin en contrainte plane.	58
2.32	Modèle de Dugdale-Barenblatt.	59
2.33	Fissure ouverte dans le modèle de Dugdale-Barenblatt.	59
2.34	Notions adoptées pour définir J	60
2.35	Détermination de J par la méthode de la complaisance.	61
2.36	Exemple d'une courbe $J - \Delta a$ (François <i>et al.</i> 1993).	62
2.37	Microstructure d'une craquelure : (a) sans fissure (Schirrer 1995) ; (b) avec fissure (Kausch 1976) : (A) zone déformée élastiquement ; (B) zone de germination de cavités et de fibrilles ; (C) croissance du craze par extension des fibrilles ; (D) transformation du craze en fissure.	63
2.38	Mécanisme d'extraction de matière par une fibrille qui s'allonge : les paramètres pertinents sont le seuil d'écoulement plastique σ_c , la tension de surface du polymère, le diamètre des fibrilles D et l'épaisseur h de la zone active fluide (Schirrer 1995).	64

2.39	Mécanisme d'instabilité de ménisque d'avancée du front de la craquelure montrant la formation de nouvelles fibrilles (Argon et Salama 1977).	65
2.40	Schéma d'une craquelure repliée puis étendue; courbe ouverture-contrainte mettant en valeur la raideur des fibrilles (Schirrer 1995).	65
2.41	Mode de rupture aléatoire et ordonnée des fibrilles de la craquelure en fonction de la température par rapport à la température de transition secondaire T_{β} (Schirrer 1995).	66
2.42	Modèle de Dugdale d'une fissure en équilibre prolongée par deux zones plastiques équilibrées par des forces de refermeture (Echalier 1989).	66
2.43	a) Description d'une structure de craquelage supposée; b) description d'une craquelure idéalisée (Kramer et Berger 1990); c) description d'une craquelure par la CZM (Estevez et al. 2000, Tijssens et al. 2000).	68
2.44	Evolution de la zone endommagée pour du PE, courbe de traction-séparation (Ivankovic et al. 2004).	70
2.45	Représentation schématique de la loi d'ouverture en traction des surfaces cohésives (Estevez et al. 2000) : (1) pas de craquelure; (2) élargissement du craze - (a) réponse avec écrouissage - (b) réponse avec adoucissement - (c) rupture à $\Delta_n = \Delta_n^{cr}$ et formation d'une fissure.	70
3.1	Schémas illustrant le mouton pendulaire Charpy (1904) utilisé pour les tests de choc Ward et Hadley (1993) et position des échantillons entaillés pour les essais Charpy (a.) et Izod (b.).	76
3.2	Résilience (Izod) en fonction de la température pour des mélanges renforcés de PA-6/EPDM (Borggreve et al. 1987) : (a) la fraction volumique d'élastomère et l'adhésion interfaciale sont constantes, taille moyenne des particules en μm ; (b) la taille des particules et l'adhésion interfaciale sont constantes, la fraction volumique en élastomère en %.	76
3.3	Resilience (Izod), KV, à 20°C en fonction de la taille moyenne de particules d : (a) et de la fraction volumique ϕ_r ; (b) pour différents systèmes PA-6/EPDM (Borggreve et al. 1987).	77
3.4	Diamètre critique des particules de renfort en fonction de la fraction volumique de caoutchouc. Comparaison des résultats expérimentaux (\circ) avec les modèles théoriques (—), (\dots), ($---$) (Wu 1985).	78
3.5	Force d'impact relevant d'essais Izod sur du PA-6,6 renforcé en fonction de la distance interparticulaire moyenne (Wu 1985).	79
3.6	Courbe maîtresse de l'évolution de l'énergie d'essais Izod sur du PE renforcé avec différentes particules en fonction de l'épaisseur moyenne du ligament formé par la matrice entre les particules (Bartczak et al. 1999b).	80

3.7	Fractographie MEB de la région près de l'entaille d'un échantillon de PA-6 soumis à un essai d'impact Izod (Cohen et Argon 2003) : (a) un amas de particules a engendré une propagation fragile; (b) La même particule agrandie montrant qu'il s'agit bien d'un amas de particules rigides.	81
3.8	Résilience vs taille de particule dans le cas d'essais Izod sur du PA-6 renforcé (Oostenbrink <i>et al.</i> 1990).	82
3.9	Schéma du volume contraint autour d'une particule de renfort (Jiang <i>et al.</i> 1998).	84
3.10	Résilience Izod en fonction de la température pour les 4 différents matériaux PVC-MBS (Dompas <i>et al.</i> 1995) : (a) cavitation interne; (b) cavitation interne; (c) décohésion; (d) décohésion.	86
3.11	(a) Observation au MET d'une bande de dilatation d'un échantillon soumis à un essai Charpy; (b) représentation schématique d'une bande de dilatation (Lazzeri et Bucknall 1993).	87
3.12	Schéma d'un élément composite sphérique avant cavitation (a) et après (b) (Bucknall <i>et al.</i> 1994).	90
3.13	Représentation schématique étape par étape de la cavitation d'un élastomère (Dompas et Groeninckx 1994).	90
3.14	Energie de déformation, énergie surfacique et énergie totale associées à la cavitation de l'élastomère en fonction du diamètre de la particule (Dompas et Groeninckx 1994).	91
3.15	Situations élémentaires correspondant à une particule de caoutchouc placée dans une matrice soumise à une force externe (Fond <i>et al.</i> 1996).	93
3.16	Schéma d'une surface de rupture définie par 4 plans à 109°5 dans une particule sphérique. Trois des quatre plans de propagation sont montrés ici (Fond <i>et al.</i> 1996).	94
3.17	Représentation schématique d'une croissance de cavité dans un élastomère (Fond <i>et al.</i> 1996).	95
3.18	Schéma de la préparation de films minces de PA-6 obtenus par spin-coating et confinés entre deux couches de substrats avec n la normale au plan du film. (Muratoğlu <i>et al.</i> 1995a).	99
3.19	Micrographie MET de la structure cristalline de type "discoïde" dans un film mince de PA-6 d'épaisseur 0.15 μm) confinée entre deux couches de polystyrène. Le faisceau d'électron détruit les cristaux ce qui produit un contraste dû aux variations d'épaisseur entre zones amorphes et zones cristallines détruites (Muratoğlu <i>et al.</i> 1995a).	100
3.20	Modèle proposé par Muratoğlu <i>et al.</i> (1995a) pour décrire l'organisation des lamelles d'un film très mince de PA-6. L'axe des chaînes et les plans (001) sont parallèles à l'interface avec le substrat.	101
3.21	Micrographie MET de polyamide 6 modifié avec de l'EPDR-g-MA	101
3.22	Schéma des mécanismes de déformation d'une morphologie idéalisée sous tension uniaxiale	102

3.23	Représentation schématique de la structure des mélanges renforcés	102
3.24	a) Distribution de la contrainte en front d'entaille soumise à une contrainte de traction σ_1^∞ ; b) état des contraintes au niveau de la "process zone"; c) distribution locale des contraintes au voisinage d'une particule cavité; d) schéma des processus de déformation dans les systèmes renforcés ($L = \Lambda$ et $L_c = \Lambda_c$) : apparition de zones plastiques en gris et de microfissures dans la matrice élastique (Corté et Leibler 2007).	104
3.25	Calculs de la microstructure basés sur des observations MET et maillage et calculs pour atteindre les propriétés macroscopiques liées à la nature des micro-interactions entre les constituants de l'élastomère (Jean 2009).	106
3.26	(a) VER axisymétrique; (b) VER irrégulier en déformation plane; (c) VER en 3D.	106
3.27	Shéma d'un arrangement de cellules anti-parallèles	107
3.28	Schéma de la morphologie matricielle	108
4.1	Evolution de la température en cœur d'échantillons en fonction de la déformation lors d'essais de compression (Rittel 2000) : (a) PC; (b) PMMA.	121
4.2	Evolutions du module de Young et du facteur de perte $\tan\delta$ en fonction de la température et de la fréquence obtenues par analyse DMA sur du PA11 neuf.	123
4.3	Observation au microscope électronique à effet de champ après attaque chimique d'une surface rompue dans l'azote liquide de PA11 neuf (*10000) (Lefebvre 2002).	124
4.4	Observation au microscope électronique à balayage d'une surface rompue dans l'azote liquide de PA11 neuf (*3000) mettant en évidence l'existence d'une porosité initiale.	125
5.1	Formulations des élastomères : (a) EPR; (b) NBR.	129
5.2	Evolutions du module d'Young et du facteur de perte $\tan\delta$ en fonction de la température et de la fréquence obtenues par analyse DMA : (a) "aged P40"; (b) "aged P20 EPR".	131
5.3	Influence du vieillissement et du taux de plastifiant sur le module d'Young et la température de transition vitreuse ($f = 0.05$ Hz).	132
5.4	Observations MEB d'une surface de "aged P40" obtenue par cryofractographie : (a) *1000; b) *30000).	135
5.5	Observations MEB d'une surface de "aged P20 EPR" obtenue par cryofractographie : a) *1000; b) *50000).	135
5.6	Observations MEB d'une surface de "aged P20 EPR" (source : ARKEMA) : (a) avant extraction *4000; (b) après extraction *4000; (c) *8000.	136
5.7	Observations MEB d'une surface de "aged P20 NBR" obtenue par cryofractographie : (a) *3000; (b) *10000.	136
5.8	Observations MEB d'une surface de "aged P20 NBR" (source : ARKEMA) : (a) *2500; (b) *5000; (c) *10000.	136

6.1	Géométrie des éprouvettes lisses.	143
6.2	Courbes contrainte nominale-déformation nominale à 0°C pour des éprouvettes lisses de PA11 jusqu'à striction de l'éprouvette.	144
6.3	Courbes contrainte nominale-déformation nominale à 0°C pour des éprouvettes lisses de PA11 jusqu'à striction de l'éprouvette.	145
6.4	Courbes contrainte nominale-déformation nominale à 0°C pour des éprouvettes lisses de PA11 jusqu'à rupture de l'éprouvette.	146
6.5	Courbes contrainte nominale-déformation nominale à 0°C pour des éprouvettes lisses de "aged P40".	147
6.6	Courbes contrainte nominale-déformation nominale à 0°C pour des éprouvettes lisses de "aged P20 EPR".	148
6.7	Courbes contrainte nominale-déformation nominale à 0°C pour des éprouvettes lisses de PA11, "aged P40" et "aged P20 EPR" pour : a) $\dot{\epsilon} = 0.001 \text{ s}^{-1}$; b) $\dot{\epsilon} = 0.01 \text{ s}^{-1}$; (c) $\dot{\epsilon} = 0.1 \text{ s}^{-1}$	150
6.8	Traction uniaxiale à 0°C sur éprouvettes lisses : a) Contrainte maximale ; b) Déformation à rupture.	150
7.1	Schéma d'une éprouvette axisymétrique entaillée.	154
7.2	Répartition des contraintes axiales (σ_{zz}), radiales (σ_{rr}) et tangentielles ($\sigma_{\theta\theta}$) dans une éprouvette entaillée selon le calcul de Bridgman (trait plein) et de Davidenkov et Spiridonova en pointillé pour deux valeurs de R/a	155
7.3	Géométries des éprouvettes axisymétriques entaillées de PA11.	156
7.4	Evolution du taux de triaxialité maximal des contraintes en fonction du rapport adimensionnel $\Phi_0/2R$	157
7.5	Extensomètres à couteaux et à tiges pour mesurer la réduction du diamètre de la section minimale d'éprouvettes axisymétriques entaillées.	157
7.6	Courbes contrainte nominale-réduction diamétrale pour les 4 géométries.	158
7.7	Evolution de la contrainte nominale et de la réduction diamétrale en fonction du temps à 0°C et 0.05 mm.s^{-1} pour une NT_4	159
7.8	Courbes contrainte- $(-\Delta\Phi/\Phi_0)$ à 0°C : a) 0.05 mm.s^{-1} , b) 3 mm.s^{-1}	160
7.9	A -60°C : a) Courbes contrainte- $(-\Delta\Phi/\Phi_0)$ à 3 mm.s^{-1} ; b) Courbes contrainte-LVDT à 200 mm.s^{-1}	161
7.10	Evolution de la contrainte nominale et de la réduction diamétrale pour les 4 grades de PA11 en fonction du temps (0°C, 0.05 mm.s^{-1} , NT_4).	162
7.11	Evolution de la contrainte nominale et de la réduction diamétrale pour les 4 grades de PA11 en fonction du temps (0°C, 3 mm.s^{-1} , NT_4).	162
7.12	Traction uniaxiale à 0°C sur éprouvettes entaillées NT_4 : a) Contrainte maximale ; b) Déformation à rupture.	163

8.1	Maillage et conditions aux limites pour : a) une éprouvette lisse ; b) et c) une éprouvette entaillée de type $NT_{1,6}$	169
8.2	Détermination graphique de R_0 à partir d'un essai de traction uniaxiale à 0°C et $\dot{\epsilon} = 1 \text{ s}^{-1}$	170
8.3	Comparaison des courbes contrainte-déformation expérimentales (symboles) et numériques (trait plein) en traction uniaxiale sur éprouvettes lisses à 0°C pour le PA11.	171
8.4	Comparaison des courbes contrainte-déformation expérimentales (symboles) et numériques (trait plein) en traction uniaxiale sur éprouvettes entaillées à 0°C pour le PA11.	172
8.5	Comparaison des courbes contrainte-déformation expérimentales (symboles) et numériques (trait plein) en traction uniaxiale sur éprouvettes lisses à 0°C pour le "aged P40".	173
8.6	Comparaison des courbes contrainte-déformation expérimentales (symboles) et numériques (trait plein) en traction uniaxiale sur éprouvettes entaillées à 0°C pour le "aged P40".	174
8.7	Comparaison des courbes contrainte-déformation expérimentales (symboles) et numériques (trait plein) en traction uniaxiale sur éprouvettes lisses à 0°C pour le "aged P20 EPR".	175
8.8	Comparaison des courbes contrainte-déformation expérimentales (symboles) et numériques (trait plein) en traction uniaxiale sur éprouvettes entaillées à 0°C pour le "aged P20 EPR".	176
9.1	Variation volumique du PA11 à 0°C et $\dot{\epsilon} = 0.001\text{s}^{-1}$ en traction uniaxiale sur une éprouvette lisse.	186
9.2	Analyse du cône de rétro-diffusion et détermination de $I(q)$	186
9.3	Analyse de la courbe $I(q)$ et détermination de la taille et de la densité des cavités.	187
9.4	Traction uniaxiale à 0°C et 0.05 mm.s^{-1} interrompue pour un déplacement de 3 mm sur du PA11 : (a) courbe contrainte-déformation ; (b) échantillon NT_4 après surfacage par microtomie (grossissement *20).	188
9.5	Cartographie de la porosité en cœur d'une éprouvette NT_4 de PA11 (grossissement *200).	189
9.6	Observation et analyse d'images du cœur d'une éprouvette NT_4 de PA11 (grossissement *200).	189
9.7	Observation du cœur d'une éprouvette NT_4 de PA11 à plus fort grossissement : à gauche grossissement *2000 ; à droite *10000.	189
9.8	Traction uniaxiale à 0°C et 0.05 mm.s^{-1} interrompue pour un déplacement de 3 mm sur du PA11 : (a) courbe contrainte-déformation ; (b) échantillon $NT_{1,6}$ après surfacage par microtomie (grossissement *30).	190
9.9	Cartographie de la porosité en cœur d'une éprouvette $NT_{1,6}$ de PA11 (grossissement *500).	190
9.10	Observation du cœur d'une éprouvette $NT_{1,6}$ de PA11 à plus fort grossissement (grossissement *1000).	190

9.11	Traction uniaxiale à 0°C et 0.05 mm.s ⁻¹ interrompue pour un déplacement de 2.5 mm sur du PA11 : (a) courbe contrainte-déformation; (b) échantillon NT _{0.8} après surfacage par microtomie (grossissement *20).	191
9.12	Cartographie de la porosité en cœur d'une éprouvette NT _{0.8} de PA11 (grossissement *500).	191
9.13	Cartographie de la porosité en cœur d'une éprouvette NT _{0.8} de PA11 pour le demi-ligament (grossissement *500).	191
9.14	Observation du cœur d'une éprouvette NT _{0.8} de PA11 à plus fort grossissement (grossissement *3000).	192
9.15	Observation du cœur d'une éprouvette NT _{0.8} de PA11 à plus fort grossissement (grossissement *3000).	192
9.16	Comparaison de la porosité sur le ligament en cœur d'éprouvette dans le cas du PA11.	192
9.17	a) Représentation des critères de Tresca et von Mises dans le plan perpendiculaire à la diagonale principale Δ du système d'axes principaux du tenseur des contraintes; b) la variation de la pression hydrostatique équivaut à se déplacer sur la droite Δ et engendre la variation du seuil de plasticité (Perez 2001).	195
9.18	Comparaison du critère de Gurson (trait plein) et des critères exacts, déterminés numériquement, d'une sphère creuse, pour des conditions de taux de déformation homogène au bord (triangles) et de contrainte homogène au bord (cercles).	196
9.19	Fonction f_* (Tanguy 2001)	199
9.20	Evolution de q_2 en fonction de p_1	201
9.21	Evolution de la porosité en fonction de la distance par rapport au centre de l'échantillon au niveau de la section minimale; comparaison des résultats expérimentaux (symbole) et numériques (trait plein).	201
9.22	Evolution du taux de triaxialité des contraintes et de la porosité en fonction du temps en cœur d'échantillon.	202
9.23	a) Courbes contrainte-réduction diamétrale d'un essai de traction uniaxiale sur NT ₄ mené à rupture; b) évolution du taux de triaxialité des contraintes au niveau de la demi-section minimale à différents instants critiques.	204
9.24	a) Courbes contrainte-réduction diamétrale d'un essai de traction uniaxiale sur NT ₄ mené à rupture; b) évolution de σ_{22} au niveau de la demi-section minimale à différents instants critiques.	205
9.25	Comparaison de l'évolution de σ_{22} (symboles) et de la contrainte σ_{zz} (trait plein) déterminée selon Bridgman (1944) : a) NT ₄ ; b) NT _{1.6} ; c) NT _{0.8}	206
9.26	Modification du maillage afin d'inclure un cellule en cœur.	207
9.27	Comparaison de l'évolution de la porosité en fonction du temps entre la cellule (symbole) et le modèle de Gurson (trait plein) pour trois géométries.	207
9.28	Evolution de la forme de la cavité placé en cœur du maillage de l'éprouvette de NT ₄	208

9.29	Influence du taux de triaxialité des contraintes sur les valeurs des paramètres q_1 et q_2 (Kim <i>et al.</i> 2004).	209
10.1	Faciès de rupture à 0°C et 3 mm.s ⁻¹ (*30) : a) "aged P40"; b) "aged P20 EPR"; c) "aged P20 NBR".	213
10.2	Faciès de rupture à -60°C : a) "aged P40" à 3 mm.s ⁻¹ ; b) "aged P20 EPR" à 3 mm.s ⁻¹ ; c) "aged P20 NBR" à 200 mm.s ⁻¹	214
10.3	"Aged P40" en traction uniaxiale à 0°C et 3 mm.s ⁻¹ : a) courbes contrainte-réduction diamétrale; b) striction et blanchiment de la section minimale; c) observation MEB d'une surface obtenue par microtomie d'un échantillon obtenu après un essai interrompu (*30); d) profilométrie de l'échantillon (surface de 2490 * 2490 μm ² avec un pas de 10 μm).	215
10.4	"aged P40" en traction uniaxiale à 0°C et 3 mm.s ⁻¹ (découpe microtome dans le sens de traction) : a) cavités sphériques loin de la fissure (*3000); b) élongation et orientation des cavités aux extrémités de la fissure (*500).	216
10.5	"aged P20 EPR" en traction uniaxiale à 0°C et 3 mm.s ⁻¹ : a) essai interrompu avant le plateau de contrainte; b) essai interrompu pendant le plateau de contrainte.	216
10.6	"Aged P20 EPR" en traction uniaxiale à 0°C et 3 mm.s ⁻¹ (découpe microtome perpendiculaire au sens de traction) : a) courbes Contrainte-réduction diamétrale; b) observation MEB du cœur d'une surface obtenue par microtomie d'un échantillon obtenu après un essai interrompu avant rhéodurcissement (*2000); c) après rhéodurcissement (*2000); d) cœur de l'échantillon 5 (après rhéodurcissement), germination de microcavités (*50000).	217
10.7	"Aged P20 NBR" en traction uniaxiale à 0°C et 3 mm.s ⁻¹ : a) striction de la section minimale; b) légère propagation de la striction.	218
10.8	"Aged P20 NBR" en traction uniaxiale à 0°C et 3 mm.s ⁻¹ : a) courbes Contrainte-déplacement; b) observation MEB du cœur d'une surface obtenue par microtomie de l'échantillon 3 (*30); c) fissure macroscopique observée pour l'échantillon 5 (*50).	218
10.9	Cavités sphériques présentes en cœur de l'échantillon 4; cavités étirées et orientées (direction de la plus grande contrainte principale) présentes en cœur de l'échantillon 3.	219
10.10a)	Extrémité de la fissure observée dans l'échantillon 5 (*3000); b) schéma présentant la distribution et l'orientation des cavités en pointe d'une fissure (Muratoğlu <i>et al.</i> 1995b).	219
10.11	Profilométrie de l'échantillon (surface de 2190 * 2190 μm ² avec un pas de 10 μm).	219
10.12	Observations MET de la cavitation des nodules d'élastomère en cœur d'une éprouvette lisse de "aged P20 EPR"; traction uniaxiale à 0°C et 0.1 s ⁻¹	220

10.13	Observations MET de la cavitation des nodules d'élastomère d'une surface perpendiculaire à la surface de rupture d'une éprouvette NT_4 de "aged P20 NBR"; traction uniaxiale à 0°C et 3 mm.s^{-1}	220
10.14	Analyse du cône de rétro-diffusion et détermination de $I(q)$	222
10.15	Analyse de la courbe $I(q)$ et détermination de la taille et de la densité des nodules détruits.	222
10.16	Evolution du taux de triaxialité des contraintes (symbole) et de la porosité (trait plein) en cœur d'une éprouvette NT_4 de "aged P40" pour trois vitesses de traction (0.05, 1 et 3 mm.s^{-1}) à 0°C ; la valeur initiale de la porosité est prise égale à 0.5%.	226
10.17	Courbes contrainte - réduction diamétrale de la section minimale d'une éprouvette NT_4 de "aged P40" (3 mm.s^{-1} et 0°C) : données expérimentales (symbole) et numériques (trait plein).	226
10.18	Répartition du taux de triaxialité des contraintes à des temps caractéristiques au niveau de la section minimale d'une éprouvette NT_4 de "aged P40" (3 mm.s^{-1} et 0°C).	227
10.19	Répartition de différentes valeurs à des temps caractéristiques au niveau de la section minimale d'une éprouvette NT_4 de "aged P40" (3 mm.s^{-1} et 0°C) : a) contrainte dans la direction de traction (σ_{22}) ; b) déformation plastique principale maximale p_1 (symbole) et de la fraction volumique de cavités (trait plein).	228
10.20	Evolution du taux de triaxialité des contraintes (symbole) et de la porosité (trait plein) en cœur d'une éprouvette NT_4 de "aged P20 EPR" pour trois vitesses de traction (0.05, 1 et 3 mm.s^{-1}) à 0°C	229
10.21	Courbes contrainte - réduction diamétrale de la section minimale d'une éprouvette NT_4 de "aged P20 EPR" (3 mm.s^{-1} et 0°C) : données expérimentales (symbole) et numériques (trait plein).	230
10.22	Répartition du taux de triaxialité des contraintes à des temps caractéristiques au niveau de la section minimale d'une éprouvette NT_4 de "aged P20 EPR" (3 mm.s^{-1} et 0°C).	231
10.23	Répartition de différentes valeurs à des temps caractéristiques au niveau de la section minimale d'une éprouvette NT_4 de "aged P20 EPR" (3 mm.s^{-1} et 0°C) : a) contrainte dans la direction de traction (σ_{22}) ; b) déformation plastique principale maximale p_1 (symbole) et de la fraction volumique de cavités (trait plein).	232
10.24a)	Schéma de l'évolution de l'endommagement par croissance de cavités ; b) Schéma de la micro-cavitation aux extrémités d'une cavité.	232
11.1	Valeurs de p_1 et f pour une éprouvette NT_4 de PA11 à 0°C et 0.05 mm.s^{-1} : données expérimentales (\square) et données numériques (\emptyset).	238

11.2	Valeurs de p_1 et f pour une éprouvette $NT_{0.8}$ de PA11 à 0°C et 0.05 $mm.s^{-1}$: données expérimentales (\square) et données numériques (\emptyset).	239
11.3	Valeurs de p_1 et f pour trois éprouvettes NT_4 à 0°C à différentes vitesses de traction et présentation de la fissure obtenue en fin de simulation numérique.	240
11.4	Schéma des échantillons fissurés.	242
11.5	Montage de flexion 3 points.	242
11.6	Courbes charge-ouverture à 0°C pour 3 vitesses de déflexion.	243
11.7	Courbes charge-ouverture à 0°C et 50 $mm.min^{-1}$	243
11.8	Observations de l'ouverture et avancée d'une fissure, d'une éprouvette de flexion à 0°C et 50 $mm.min^{-1}$	244
11.9	Faciès de rupture à 0°C et 50 $mm.min^{-1}$	245
11.10	Faciès de rupture à 0°C et 200 $mm.min^{-1}$	245
11.11	Profilométrie des faciès de rupture à 0° : a) 50 $mm.s^{-1}$; b) 100 $mm.s^{-1}$; a) 200 $mm.s^{-1}$	245
11.12	Maillage de l'éprouvette fissurée en 3D.	246
11.13	Courbes CTOD-Charge expérimentale et numérique en 3D à 0°C et 50 $mm.min^{-1}$ avec le modèle de GTN.	247
11.14	Courbes CTOD-Charge expérimentale et numérique en 3D à 0°C et 50 $mm.min^{-1}$ avec le modèle de Rousselier étendu par Tanguy et Besson (2002).	248
11.15	Courbes CTOD-Charge expérimentale et numérique en 3D à 0°C et 100 $mm.min^{-1}$ avec le modèle de Rousselier étendu par Tanguy et Besson (2002).	249
11.16	Maillage de l'éprouvette fissurée en 2D.	250
11.17	Courbes CTOD-Charge expérimentale et numériques en 2D à 0°C et 50 $mm.min^{-1}$	250
11.18	Evolution de la charge et de l'intégrale de contour J après simulation numérique en contraintes planes avec le modèle GTN d'un essai de flexion 3 points à 0°C et 50 $mm.s^{-1}$	252
11.19a)	description d'un craze par la CZM (Estevez <i>et al.</i> 2000, Tijssens <i>et al.</i> 2000) ; b) Représentation schématique de la loi d'ouverture en traction des surfaces cohésives(Estevez <i>et al.</i> 2000).	253
11.20	Courbes CTOD-Charge expérimentale et numérique à 0°C et 100 $mm.min^{-1}$ avec un modèle de zone cohésive.	253
12.1	Représentation de la pointe d'une craquelure subissant un mécanisme de décohésion thermique (Leevers 1995b).	261
12.2	Evolution de la contrainte nominale en fonction du déplacement LVDT à 0°C et 0.001 s^{-1} pour une éprouvette lisse.	262
12.3	Observations de l'auto-échauffement au niveau de la striction d'une éprouvette lisse à 0°C et 0.001 s^{-1}	262
12.4	Evolution de la contrainte, de la réduction diamétrale et de la température maximale en fonction du temps pour une éprouvette NT_4 de PA11 à 0°C et 0.05 $mm.s^{-1}$	263
12.5	Observations de l'auto-échauffement au niveau de la striction pour une éprouvette NT_4 de PA11 à 0°C et 0.05 $mm.s^{-1}$	264

12.6	Observations de l'auto-échauffement au niveau de la striction pour une éprouvette NT_4 de PA11 à 0°C et 3 $mm.s^{-1}$ juste avant la rupture (Im 01) et juste après (Im 02).	265
12.7	Evolution de la contrainte, de la réduction diamétrale et de la température maximale en fonction du temps pour une éprouvette NT_4 de "Aged P20 EPR" à 0°C et 0.05 $mm.s^{-1}$	265
12.8	Evolution de la contrainte, de la réduction diamétrale et de la température maximale en fonction du temps pour une éprouvette NT_4 de "Aged P20 NBR" à 0°C et 0.05 $mm.s^{-1}$	266
12.9	Observations de l'auto-échauffement en pointe de fissure d'une éprouvette de flexion de PA11 à 0°C et 100 $mm.min^{-1}$ ($a/W=0.2$).	267
12.10	Observations de l'auto-échauffement en pointe de fissure d'une éprouvette de flexion de PA11 à 0°C et 50 $mm.min^{-1}$ ($a/W=0.192$).	267
12.11	Evolution de la force et de la température maximale en fonction du temps pour une éprouvette de PA11 en flexion 3 points, à 0°C et 50 $mm.min^{-1}$	268
13.1	Courbes contrainte-déformation obtenues par traction uniaxiale sur NT_4 de 0°C à 100°C : a) en fonction de la déformation axiale ; b) en fonction de la réduction du diamètre de la section minimale.	276
13.2	Résultats des simulations numériques adiabatiques : courbes contrainte-déformation obtenues par traction uniaxiale sur éprouvettes NT à 0°C et 0.05 $mm.s^{-1}$ pour des essais interrompus avec $\beta = 0.9$	277
13.3	Isovaleurs de la porosité avec $\beta = 0.9$ pour les quatre géométries NT considérées à 0°C et 0.05 $mm.s^{-1}$	278
13.4	Comparaison expérimentale et numérique de l'augmentation de la température en surface en fonction du coefficient de transformation de travail en chaleur β lors d'un essai de traction à 0.05 $mm.s^{-1}$ à 0°C sur une éprouvette NT_4	279
13.5	Résultats des simulations numériques adiabatiques : courbes contrainte-déformation obtenues par traction uniaxiale sur éprouvettes NT à 0°C et 0.05 $mm.s^{-1}$ pour des essais interrompus avec $\beta = 0.2$	280
13.6	Isovaleurs de la porosité avec $\beta = 0.2$ pour les quatre géométries NT considérées à 0°C et 0.05 $mm.s^{-1}$	280
13.7	Evolution numérique de la température en cœur et en surface d'éprouvettes NT à 0°C en fonction du temps avec $\beta = 0.2$	281
13.8	Isovaleurs de la température au niveau de l'entaille des éprouvettes NT à 0°C pour $\beta = 0.2$	282
13.9	Comparaison des isovaleurs expérimentale (à droite) et numérique (à gauche) de la température au niveau de l'entaille pour une éprouvette NT_4 (0°C et $\beta = 0.2$).	282
13.10	Comparaison des isovaleurs numériques de la déformation plastique principale maximale et de la température au niveau de l'entaille pour une éprouvette NT_4	283

13.11	Courbes charge-ouverture expérimentale et numériques (3D) à 0°C et 50 mm.min ⁻¹	284
13.12	Isovaleurs de σ_{11} , f_g et T à l'amorçage avec $\beta = 0.3$: à gauche le modèle GTN et à droite le modèle de Rousselier étendu.	285
13.13	Courbes charge-ouverture expérimentale et numériques (3D et $\beta = 1$) à 0°C et 50 mm.min ⁻¹	287
13.14	Isovaleurs à l'amorçage de la contrainte d'ouverture, de la porosité et de l'auto-échauffement adiabatique à 0°C et 50 mm.min ⁻¹ avec le modèle de Rousselier étendu.	288
13.15	Isovaleurs à l'amorçage de la contrainte d'ouverture, de la porosité et de l'auto-échauffement adiabatique à 0°C et 50 mm.min ⁻¹ avec le modèle GTN.	289
14.1	Volume élémentaire considéré lors des simulations numériques	295
14.2	Présentation schématique des deux méthodes de calcul utilisées : a) cas idéalisé de la MMC, décharge de l'énergie élastique contenue dans le domaine \mathcal{D}_2 par formation d'une surface interne et d'une surface externe, associée à une décharge dans le domaine \mathcal{D}_1 ; b) cas plus réel avec création d'une unique surface et relâchement de la dépression couplée à un cisaillement intense.	296
14.3	Propagation des craquelures dans un système vitreux soumis à une traction triaxiale à différentes déformations (Schnell 2006) : a) $\epsilon_z = 0.2$; b) $\epsilon_z = 0.275$; c) $\epsilon_z = 0.3$; d) $\epsilon_z = 0.5$	297
14.4	Courbes contrainte-déformation d'un volume élémentaire sous tension uniaxiale pour différentes déformations à laquelle apparaît de la cavitation (Géhant <i>et al.</i> 2003)	298
14.5	Les différentes échelles de taille d'une cavité avec les outils numériques associés.	302
14.6	Calcul en élasticité linéaire sur du PA11 : a) maillage de la cellule; b) isovaleurs de σ_{eq} pour une cavité de 1 nm; c) isovaleurs de σ_{eq} pour une cavité de 0.1 nm.	303
14.7	Calcul en élasticité linéaire sur du PA11 contenant un nodule : a) maillage de la cellule; b) isovaleurs de σ_{eq} pour une cavité de 1 nm; c) isovaleurs de σ_{eq} pour une cavité de 0.1 nm.	304
14.8	Variation du volume de la cavité en fonction de la fraction volumique en élasticité linéaire.	306
14.9	Isovaleurs de la contrainte équivalente de von Mises pour chaque maillage en élasto-plasticité dans le cas RT-PA11 (cavité et nodule en bleu); la contrainte équivalente de von Mises maximale et la variation de volume de la cavité sont écrites pour chaque maillage.	307

14.10 Isovaleurs de la contrainte équivalente de von Mises pour chaque maillage en élasto-visco-plasticité sans rhéodurcissement dans le cas RT-PA11 pour $r_c = 1 \text{ nm}$ (cavité et nodule en bleu); la contrainte équivalente de von Mises maximale et la variation de volume de la cavité sont écrites pour chaque maillage.	309
14.11 Isovaleurs de la contrainte équivalente de von Mises pour chaque maillage en élasto-visco-plasticité avec rhéodurcissement dans le cas RT-PA11 pour $r_c = 1 \text{ nm}$ (cavité et nodule en bleu); la contrainte équivalente de von Mises maximale et la variation de volume de la cavité sont écrites pour chaque maillage.	311
14.12 Isovaleurs de la contrainte équivalente de von Mises pour chaque maillage en élasto-visco-plasticité avec rhéodurcissement dans le cas RT-PA11 avec cavitation totale des nodules pour $r_c = 1 \text{ nm}$ (cavité et nodule en bleu); la contrainte équivalente de von Mises maximale et la variation de volume de la cavité sont écrites pour chaque maillage.	313
14.13 Isovaleurs du taux de triaxialité des contraintes pour chaque maillage en élasto-visco-plasticité avec rhéodurcissement dans le cas RT-PA11 avec cavitation totale des nodules pour $r_c = 1 \text{ nm}$ (cavité et nodule en bleu); le taux de triaxialité maximal et la variation de volume de la cavité sont écrits pour chaque maillage.	314
14.14 Répartition du taux de triaxialité des contraintes en fin de calcul numérique le long de l'axe de symétrie et en particulier, au niveau du ligament séparant la cavité et le nodule cavité, pour chaque maillage en élasto-visco-plasticité avec rhéodurcissement dans le cas RT-PA11 avec cavitation totale des nodules pour $r_c = 1 \text{ nm}$	315
14.15 Isovaleurs de la contrainte de cisaillement σ_{12} pour chaque maillage en élasto-visco-plasticité avec rhéodurcissement dans le cas RT-PA11 avec cavitation totale des nodules pour $r_c = 1 \text{ nm}$; la contrainte maximale de cisaillement et la variation de volume de la cavité sont écrites pour chaque maillage.	316
14.16 Isovaleurs de la déformation plastique cumulée p pour chaque maillage en élasto-visco-plasticité avec rhéodurcissement dans le cas RT-PA11 avec cavitation totale des nodules pour $r_c = 1 \text{ nm}$; la déformation plastique cumulée maximale et la variation de volume de la cavité sont écrites pour chaque maillage.	317
14.17 Variation de volume de la boîte considérée et évolution du rayon de la cavité en fonction de la déformation : r le rayon de la cavité et r_0 le rayon de cette même cavité après déchargement.	319
14.18 Courbes contrainte-déformation obtenues en DM (pointillés) et MMC (trait plein).	319
14.19 Le potentiel de Lennard-Jones.	320

A.1	Propagation aléatoire du faisceau lumineux à travers les dif- fuseurs du matériau	354
A.2	Courbe typique $I(q)$ pour un matériau opaque	355
B.1	Spectroscopie sur des bandes extrudées et tube extrudé de PA11 : a) évolution de du coefficient de Poisson ; b) évolu- tion du module de Young ; c) évolution de $\tan(\delta)$	357
C.1	Schéma des têtes de l'éprouvettes avec une demi-coquille Lafarge (2004)	359
D.1	Courbes contrainte nominale-réduction diamétrale à -10°C après TU sur des éprouvettes NT_4	361
D.2	Courbes contrainte nominale-déformation axiale à -10°C après TU sur des éprouvettes NT_4	362
E.1	Schéma des échantillons de flexion 3 points.	363
E.2	Courbes Force-LVDT obtenues en Flexion 3 points après sol- licitation dans les 4 directions de l'échantillon.	364
E.3	Montage de préfissuration (Lafarge 2004)	365
E.4	Schéma de la préfissuration d'éprouvettes courbées Lafarge (2004)	365
F.1	Isovaleurs de la contrainte équivalente de von Mises pour chaque maillage en élasto-visco-plasticité sans rhéodurcis- sment dans le cas RT-PA11 pour $r_c = 0.1 \text{ nm}$ (cavité et nodule en bleu).	368
F.2	Isovaleurs de la contrainte équivalente de von Mises pour chaque maillage en élasto-visco-plasticité avec rhéodurcis- sment dans le cas RT-PA11 pour $r_c = 0.1 \text{ nm}$ (cavité et nodule en bleu).	369

Liste des tableaux

1.1	Structures et morphologies des polymères, les différents ordres de grandeur (Haudin et G'sell 1995).	9
3.1	Acronymes et symboles utilisés par Tzika <i>et al.</i> (2000).	112
4.1	Quelques propriétés clés du polyamide 11 - Données four- nies par ARKEMA.	121
5.1	Propriétés de l'Ethylene-Propylene and Nitrile Butadiene Rubber (EPR et NBR) (IISRP 2005), (RRP 2005).	129
5.2	Résumé de quelques propriétés du PA11, "aged P40" et "aged P20 EPR" obtenues par spectrométrie mécanique.	134

5.3	Mesure de la distance interparticulaire du P20 EPR (source : ARKEMA).	137
6.1	Contrainte maximale et déformation axiale dans la zone strictionnée à rupture après traction uniaxiale à 0°C sur des éprouvettes lisses.	146
6.2	Contrainte maximale et déformation axiale relevée dans la zone strictionnée à rupture après traction uniaxiale à 0°C sur des éprouvettes lisses.	147
6.3	Contrainte maximale et déformation axiale dans la zone strictionnée à rupture après traction uniaxiale à 0°C sur des éprouvettes lisses.	148
7.1	Taux de triaxialité des contraintes pour chaque rayon d'entaille selon Bridgman (1944).	156
7.2	Contrainte nominale maximale et réduction diamétrale à rupture pour les quatre géométries.	158
8.1	Caractéristiques des maillages des éprouvettes lisse et entaillées.	169
8.2	Coefficients décrivant le comportement mécanique du PA11 à 0°C.	172
8.3	Coefficients décrivant le comportement mécanique du "aged P40" à 0°C.	174
8.4	Coefficients décrivant le comportement mécanique du "aged P20 EPR" à 0°C.	177
8.5	Récapitulatifs des paramètres à 0°C pour le PA11, le "aged P40" et le "aged P20 EPR".	178
9.1	Résultats des mesures de variation de volume par pycnométrie.	185
9.2	Densité et rayon moyen des cavités avec pour hypothèse $1 \mu m < \bar{R} < 10 \mu m$.	187
9.3	Coefficients des paramètres d'endommagement pour le PA11 à 0°C.	202
10.1	Résultats des mesures de variation de volume par pycnométrie.	221
10.2	Densité de nodules endommagés et fraction de vide dans un nodule.	223
10.3	Tableau récapitulatif des informations collectées à partir d'essais de traction uniaxiale sur NT ₄ à 0°C.	233
11.1	Coefficients des paramètres d'endommagement pour le "aged P40" à 0°C et $f_0 = 0.5\%$.	240
11.2	Coefficients des paramètres d'endommagement pour le "aged P20 EPR" à 0°C.	241
11.3	Récapitulatif des essais de flexion présentés à 0°C.	243
11.4	Coefficients des paramètres d'endommagement pour le PA11 à 0°C.	247
13.1	Quelques propriétés physiques et thermiques du PA11.	273

13.2	Variation des coefficients décrivant le comportement mécanique du PA11 en fonction de la température.	277
14.1	Bilan d'énergie pour les 9 simulations (méthode 1).	299
14.2	Bilan d'énergie pour les 9 simulations (méthode 2).	299
14.3	Variations de volume de la cavité dans le cas d'une cellule de PA11 comportant une cavité en élasticité linéaire.	305
14.4	Variations de volume de la cavité dans le cas d'une cellule de PA11 comportant deux nodules de caoutchouc et une cavité en élasticité linéaire.	305
14.5	Variations de volume de la cavité dans les deux cas pour $r_c = 1 \text{ nm}$ en élasto-plasticité.	306
14.6	Variations de volume de la cavité dans les deux cas pour $r_c = 1 \text{ nm}$ en élasto-visco-plasticité.	308
14.7	Variations de volume de la cavité dans les cas PA11 et RT-PA11 en visco-élasto-plasticité avec prise en compte du rhéodurcissement.	310
14.8	Variations de volume de la cavité dans le RT-PA11 sans et avec cavitation des nodules en visco-élasto-plasticité avec prise en compte du rhéodurcissement.	312
14.9	Variations de volume du nodule dans le RT-PA11 avec cavitation des nodules en visco-élasto-plasticité avec prise en compte du rhéodurcissement.	312
14.10	Valeurs moyennées de la contrainte de von Misès et de la contrainte hydrostatique dans le domaine \mathcal{D}_2 dans le cas d'un RT-PA11 sans cavité avec nodule non cavité et cavité en élasticité.	322
F.1	Variations de volume de la cavité dans les deux cas pour $r_c = 0.11 \text{ nm}$	367
F.2	Variations de volume de la cavité dans les cas PA11 et RT-PA11 en visco-élasto-plasticité avec prise en compte du rhéodurcissement.	367

NOTATIONS

Notations [unité] Signification

Symboles

$\Delta\Phi$ [mm]	Variation diamétrale de la section minimale des éprouvettes NT
Φ_0 [mm]	Diamètre initial de la section minimale d'une éprouvette NT
σ_n [MPa]	Contrainte nominale
σ_v [MPa]	Contrainte vraie
σ_0 [MPa]	Limite d'élasticité
σ_y [MPa]	Limite d'écoulement
σ_{ij} [MPa]	Composante du tenseur des déformations
$\underline{\underline{\sigma}}$ [MPa]	Tenseur des contraintes de Cauchy
$\underline{\underline{\sigma}}_d$ [MPa]	Déviateur des contraintes
σ_{kk} [MPa]	Trace du tenseur des contraintes
σ_{eq}, Σ_{eq} [MPa]	Contrainte équivalente de Von Misès
σ_m, Σ_m [MPa]	Contrainte moyenne
σ_* [MPa]	Contrainte effective
ϵ_n [-]	Déformation nominale
ϵ_v [-]	Déformation vraie
ϵ_{ij} [-]	Composante du tenseur des déformations
ϵ_L [-]	Déformation axiale
ϵ_l [-]	Déformation dans le sens de la largeur
ϵ_e [-]	Déformation dans le sens de l'épaisseur
$\underline{\underline{\epsilon}}$ [-]	Tenseur des déformations
$\underline{\underline{\epsilon}}^e$ [-]	Tenseur des déformations élastiques
$\underline{\underline{\epsilon}}^p$ [-]	Tenseur des déformations plastiques
$\underline{\underline{\epsilon}}^{vp}$ [-]	Tenseur des déformations visco-plastiques
$\underline{\underline{\dot{\epsilon}}}$ [s^{-1}]	Tenseur des taux de déformations
$\underline{\underline{\dot{\epsilon}}}^p$ [s^{-1}]	Tenseur des taux de déformations plastiques
$\underline{\underline{\dot{\epsilon}}}^{vp}$ [s^{-1}]	Tenseur des taux de déformations visco-plastiques
$\underline{\underline{\mathcal{L}}}$ [MPa]	Tenseur standard d'ordre 4 des modules élastiques
$\underline{\underline{\dot{\gamma}}}_{eq}^p$ [s^{-1}]	Taux de cisaillement plastique
τ_{eq} [MPa]	Contrainte de cisaillement équivalente
R [MPa]	Contrainte d'écoulement de la matrice
R_0 [MPa]	Seuil visco-plastique de la matrice
R_p [MPa]	Limite d'élasticité du matériau

ϕ	Potentiel d'écoulement plastique
Φ	Critère de plasticité macroscopique
$K [MPa.s^{-1/n}]$	Intensité de la vitesse de déformation (Loi de Norton)
n	Indicateur de la non-linéarité du comportement visco-plastique (Loi de Norton)
$Q [MPa]$	Paramètre de l'écrouissage isotrope
b	Paramètre de l'écrouissage isotrope
$A [MPa]$	Paramètre du rhéodurcissement
B	Paramètre du rhéodurcissement
q_1	Paramètre d'endommagement du modèle GTN
q_2	Paramètre d'endommagement du modèle GTN
f	Porosité
f_0	Valeur initiale de la porosité
f_*	Porosité effective
f_c	Porosité critique du début de coalescence
$\dot{f}_t [s^{-1}]$	Taux d'endommagement
$\dot{f}_g [s^{-1}]$	Vitesse de croissance des cavités
$\dot{f}_n [s^{-1}]$	Vitesse de germination des cavités
$\dot{f}^e [s^{-1}]$	Taux de dilatation élastique
δ	Pente d'accélération de la croissance de la porosité (modèle GTN)
p	Déformation plastique effective
$\dot{p} [s^{-1}]$	Vitesse de déformation plastique effective
p_1	Déformation plastique principale maximale
$\tau_\sigma [-]$	Taux de triaxialité des contraintes
$\tau_{oct} [MPa]$	Contrainte octaédrale
$KV [J.m^{-2}]$	Résilience
$K_I [MPa\sqrt{m}]$	Facteur d'intensité des contraintes en mode I
κ	Coefficient dépendant des conditions de contrainte plane ou déformation plane
$G [J.m^{-2}]$	Taux de libération d'énergie
$G_c [J.m^{-2}]$	Taux de libération d'énergie critique
$E_p [J]$	Energie potentielle
$E_u [J]$	Energie potentielle des forces appliquées
$E_{el} [J]$	Energie élastique emmagasinée
$E_s [J]$	Energie surfacique
$E_c [J]$	Energie cinétique
$\gamma_s [N.m^{-1}]$	Tension de surface
$J [J.m^{-2}]$	Intégrale de Rice
δ	Ouverture de la fissure (CTOD)
Δa	Avancée infinitésimale d'une fissure de longueur a
$\dot{\Delta}_n^c$	Vitesse d'élargissement d'une craquelure

N_c	Densité critique des particules de renfort
ϕ_r	Fraction volumique des particules de renfort
Λ	Distance interparticulaire
Λ_c	Distance interparticulaire critique
ρ^*	Concentration de fissures (Modèle de Corté)
ξ^*	Distance moyenne entre deux microfissures (Modèle de Corté)
r_y	Taille de la zone plastique
$d, d_c [\mu m]$	Diamètre et diamètre critique des particules de renfort
$A_c [\mu m^{-1}]$	Aire interfaciale critique par unité de volume
$N_c [\mu m^{-3}]$	Densité critique des particules de renfort
$R [J.mol^{-1}.K^{-1}]$	Constante des gaz parfaits
$E_0(\tau)$	Spectre de temps de relaxation

Caractéristiques matériaux

$E [MPa]$	Module de Young
$k_m [MPa]$	Module de compressibilité de la matrice
$\mu_m [MPa]$	Module de cisaillement de la matrice
$k_r [MPa]$	Module de compressibilité du renfort
$\mu_r [MPa]$	Module de cisaillement du renfort
ν	Coefficient de Poisson
$D [m^2.s^{-1}]$	Diffusivité thermique
$C_p [J/g.K]$	Capacité calorifique
$\lambda [W.m^{-1}.K^{-1}]$	Conductivité thermique
$\rho [kg.m^{-3}]$	Masse volumique
x_c	Taux de cristallinité
M_c	Masse de la phase cristalline
V_c	Volume de la phase cristalline
M	Masse de l'échantillon
V	Volume de l'échantillon
$T_g [^{\circ}C]$	Température de transition vitreuse
$T_{BD} [^{\circ}C]$	Température de transition ductile-fragile
$T_{\beta} [^{\circ}C]$	Température de transition secondaire

La rétro-diffusion cohérente

a	Rayon de la particule core-shell
d	Largeur de l'échantillon en rétrodiffusion cohérente
$I(d)$	Intensité du faisceau transmis
I_0	Intensité initiale du faisceau
I_{incoh}	Intensité de la lumière incohérente
L	Parcours libre moyen
L_0	Parcours libre moyen à chargement nul
L^*	Parcours libre moyen de transport
L_0^*	Parcours libre moyen de transport à chargement nul
n_0	Indice optique du matériau

n	Indice optique des diffuseurs
$\langle n \rangle$	Indice optique homogénéisé d'un vide contenant des particules
N	Nombre de particules de caoutchouc par unité de volume
q	Vecteur de diffusion
R	Surface de réflexion
r	Rayon des diffuseurs
v_f	Fraction de vide dans une particule
v_0	Volume initial d'une particule
$\Delta V/V$	Variation de volume macroscopique totale
$[\Delta V/V]_v$	Porosité macroscopique
$[\Delta V/V]_0$	Porosité macroscopique à chargement nul
$\epsilon_0 [-]$	Déformation résiduelle à chargement nul
λ	Longueur d'onde dans le matériau
λ_0	Longueur d'onde dans le vide
θ	Angle en coordonnée polaire
$\rho [\mu m^{-3}]$	Nombre de diffuseurs (particules cavités) par unité de volume
s_d	Section de diffusion
$\sigma_x [MPa]$	Contrainte dans la direction de traction
Ω	Angle solide

Grandeurs géométriques

$B [mm]$	Épaisseur de l'échantillon
$W [mm]$	Largeur de l'échantillon
$L [mm]$	Longueur de l'échantillon
$L_0 [mm]$	Longueur utile
$l_0 [mm]$	Longueur utile du capteur de déformation

Abréviations

CGM	Coarse-grained model
CP	Contrainte plane
CZM	Cohesive zone model
DP	Déformation plane
EPDM	Éthylène propylène diène monomère
EPR	Ethylene propylene rubber
GTN	Gurson-Tvergaard-Needleman
HRR	Hutchinson-Rice-Rosengren
iPP	Polypropylène isotactique
LJu	Lennard-Jones unity
MBS	Methyl methacrylate butadiène styrène
MD	Molecular dynamics
MEB	Microscope électronique à balayage
MEF	Méthode des éléments finis
MET	Microscope électronique à transmission
MLR	Mécanique linéaire de la rupture
MMC	Mécanique des milieux continus

MNLR	Mécanique non linéaire de la rupture
PA	Polyamide
PC	Polycarbonate
PE	Polyéthylène
PEHD	Polyéthylène haute densité
PMMA	Polyméthacrylate de méthyle (Polymethyl Methacrylate)
PP	Polypropylène
PVC	Polyvinyl chloride
PVDF	Polyfluorure de vinylidène
NBR	Nitrile butadiene rubber

e	Elastique
ve	Visco-élastique
vp	Visco-plastique
evp	Elasto-visco-plastique
th	Thermique
0	Valeur initiale

Notations mathématiques

$\underline{\underline{a}}$	Tenseur d'ordre 2
$\underline{\underline{\underline{a}}}$	Tenseur d'ordre 4
$Tr(-)$	Trace

PRÉFACE

MAIS quel point commun peut-il bien exister entre des milieux si différents que sont l'automobile, l'aéronautique, le sport, l'industrie vestimentaire, l'industrie pharmaceutique, l'industrie alimentaire ou encore la pétrochimie ? Il s'agit tout simplement des polymères qui, depuis quelques temps, voient leurs utilisations croître et leurs domaines d'application se diversifier. La facilité de mise en œuvre, leurs faibles coûts de production, leurs poids et leurs caractéristiques mécaniques variées leur confèrent des atouts indicibles et expliquent pourquoi l'industrie leur tend les bras.

Depuis plusieurs années, un nouveau type de polymère a fait son apparition ; ce nouveau matériau consiste en un mélange caractérisé par l'ajout d'une seconde phase de type élastomère à une matrice en polymère. L'ajout de nodules de caoutchouc est une technique bien connue afin d'améliorer la résistance à la rupture d'un polymère. Cette thèse s'intéresse à l'étude des mécanismes de déformation, d'endommagement et de rupture pour quatre polyamides 11 dont deux sont renforcés par des nodules de caoutchouc. L'approche développée a été, dans un premier temps, d'étudier le comportement mécanique et l'endommagement de la matrice de polyamide 11 pour ensuite, s'atteler aux matériaux renforcés. Pour ce faire, deux axes ont été menés de front : un axe expérimental caractérisé par de nombreux essais à différentes températures et vitesses pour des géométries et sollicitations différentes couplés à des observations microscopiques ; un axe numérique correspondant à la simulation des essais effectués et la détermination d'un modèle rendant compte du comportement endommageable des matériaux.

La *première partie* expose de manière non-exhaustive l'état de l'art concernant quelques généralités des polymères. Ainsi le premier chapitre s'attache à présenter le matériau de l'étude, c'est-à-dire le polyamide 11. Au cours d'un deuxième chapitre, les notions de déformation, d'endommagement et de rupture sont abordées. Le troisième chapitre s'intéresse aux matériaux renforcés, qui constituent une partie de l'étude. Ce dernier s'efforce à tenter de caractériser les conditions nécessaires à un bon renforcement, de présenter les mécanismes sous-jacents et introduit quelques modèles par éléments finis.

La *seconde partie* présente les matériaux de l'étude sur lesquels ont été entreprises des analyses de spectrométrie mécanique ainsi que des observations microscopiques de surfaces de rupture obtenues par cryofractographie.

La *troisième partie* concerne la mise en évidence du comportement élasto-visco-plastique des matériaux à travers des essais de traction uniaxiale sur éprouvettes lisses et entaillées et introduit le modèle de calcul

par éléments finis utilisé pour modéliser le comportement mécanique des matériaux.

La *quatrième partie* traite de l'endommagement des matériaux de l'étude. Pour ce faire, de nombreuses observations de coupes, obtenues par microtomie, d'échantillons résultant d'essais interrompus, ont été effectuées à l'aide d'un microscope électronique à balayage. On s'intéresse, dans le cas du polyamide 11, à l'effet du taux de triaxialité des contraintes sur l'endommagement (par croissance de cavités) ainsi qu'à sa prise en compte lors des simulations numériques. Concernant les matériaux vieilliss et renforcés, l'accent est mis sur les mécanismes d'endommagement et l'influence du vieillissement toujours en se basant sur des observations microscopiques auxquelles s'ajoutent un suivi de l'endommagement en cours d'essai par rétro-diffusion cohérente et des mesures de densité par pycnométrie.

La *cinquième partie* s'intéresse à la mise en évidence de l'auto-échauffement à travers des essais mécaniques suivis par caméra infrarouge. Cet auto-échauffement pouvant être conséquent selon les sollicitations, des calculs mécaniques avec prise en compte de la température et thermo-mécaniques à couplage faible sont effectués afin de rendre compte de l'évolution de la température en cours de déformation et des modifications comportementales qu'elle pourrait engendrer.

La *sixième partie* consiste en une approche micromécanique plus globale dans le sens où elle ne se focalise pas spécifiquement aux matériaux de l'étude. Elle est dédiée aux conditions de naissance d'une craquelure en pointe de fissure en fonction de la taille et la distance interparticulaire principalement en élasticité linéaire au sens de la dissipation d'énergie mécanique.

Première partie

Introduction générale

UN THERMOPLASTIQUE SEMI-CRISTALLIN : LE POLYAMIDE 11

1

SOMMAIRE

1.1	LES POLYMÈRES SEMI-CRISTALLINS	7
1.1.1	Structure des polymères semi-cristallins	7
1.1.2	Morphologie des polymères semi-cristallins	9
1.1.3	La température de transition vitreuse	11
1.2	MISE EN FORME DES POLYMÈRES	12
1.2.1	L'extrusion	12
1.2.2	Injection	13
1.2.3	Les autres...	13
1.3	LE POLYAMIDE 11 : QUELQUES GÉNÉRALITÉS	14
1.3.1	Structure du polyamide 11	14
1.3.2	Le vieillissement du PA11	16
1.3.3	Quelques propriétés chimiques et mécaniques	19
1.3.4	Domaines d'application	19

CE chapitre a la vocation de présenter succinctement les polymères à travers leurs morphologies et les différents procédés de mise en forme. Un intérêt particulier est porté sur le matériau de l'étude qu'est le Polyamide 11 (PA11).

1.1 LES POLYMÈRES SEMI-CRISTALLINS

1.1.1 Structure des polymères semi-cristallins

1.1.1.1 États amorphe et cristallin

Généralement, la matière se trouve dans deux états principaux. Le premier s'appelle l'état désordonné ou amorphe qui consiste en une disposition aléatoire des atomes, molécules et que l'on retrouve dans des matériaux tels que les gaz, les liquides et les solides amorphes. Le second est l'état solide, cristallin qui est un état ordonné où les constituants (atomes, molécules) sont répartis de façon périodique. Ainsi, il en résulte que, pour constituer des cristaux, les chaînes macromoléculaires doivent présenter une régularité dans leur structure chimique (Haudin et G'sell 1995).

1.1.1.2 Le réseau cristallin

Un cristal peut être décrit par un réseau caractérisé par une périodicité dans les trois directions de l'espace et un motif. La figure 1.1 présente un exemple de milieu périodique à deux dimensions (Haudin et G'sell 1995). Un réseau peut posséder différents éléments de symétrie rendant possible leur classement : triclinique, monoclinique, orthorhombique, quadratique, cubique, rhomboédrique, hexagonal. Enfin, en cristallographie, pour repérer toute famille de rangées ou de plans réticulaires, sont utilisés les indices de Miller notés $[uvw]$ (où u , v et w sont premiers entre eux) et nommés "directions" dans le cas des rangées et notés (hkl) (où h , k et l sont des entiers relatifs, premiers entre eux) et nommés "indices du plan" dans le cas des plans réticulaires.

Le motif permet de décrire le contenu matériel du cristal, par opposition au réseau, qui ne décrit que la géométrie périodique. Il est ainsi directement lié aux liaisons interatomiques assurant la cohésion du cristal. Ces constituants élémentaires peuvent être des atomes, des ions, des molécules ou des fragments de molécules selon la nature du cristal.

1.1.1.3 L'indice de cristallinité

Les cristaux ont la propriété de diffracter les rayons X et ainsi la diffraction des rayons X semble être une bonne méthode pour étudier la cristallinité d'un matériau et a fortiori d'un polymère. Pour appréhender la diffraction, il suffit de s'intéresser à une expérience menée par Friedrich et Knipping en 1912, présentée figure 1.2. Cette expérience consiste à envoyer sur une lame de blende monocristalline ZnS, un faisceau polychromatique issu d'un tube de rayon X. Après développement, sur une plaque photographique placée derrière l'échantillon, ils obtinrent une tache centrale intense (le faisceau incident) couplée à de multiples taches moins intenses correspondant aux faisceaux diffractés. Une méthode expérimentale couramment employée en diffraction à rayon X est la diffractométrie à compteur utilisée dans le cas des polymères en transmission.

Les structures cristallines, déterminées par diffraction des rayons X, montrent que les systèmes cristallins des polymères sont de faible degré

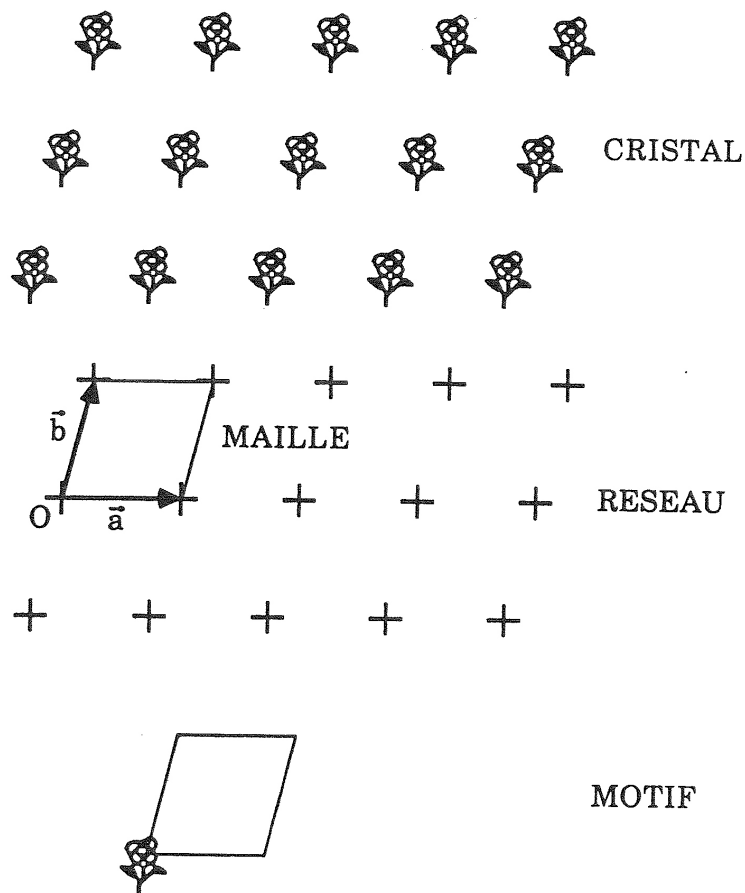


FIGURE 1.1 – Notions de réseau et de motif dans un cristal bidimensionnel (Haudin et G'sell 1995).

de symétrie et que les tailles des mailles varient de quelques dixièmes de nanomètres à 1 – 2 nanomètres. De plus, si les liaisons à l'intérieur des macromolécules sont covalentes donc fortes, des liaisons faibles existent également entre les chaînes : van der Waals dans le cas du polyéthylène ou hydrogène dans les cas du polyamide. Cela a pour conséquence d'engendrer une forte anisotropie des cristaux polymères et de leurs propriétés tant mécaniques qu'optiques.

Le taux de cristallinité permet de quantifier la proportion de phases cristallines dans un échantillon donné. Si l'on fait l'hypothèse d'un matériau ne comportant qu'une seule phase cristalline et une seule phase amorphe c'est-à-dire un modèle à deux phases, le taux de cristallinité s'exprime en masse (x_c) et en volume (v_c) comme suit :

$$x_c = \frac{M_c}{M} \text{ et } v_c = \frac{V_c}{V} \quad (1.1)$$

où M_c et V_c sont la masse et le volume de la phase cristalline et M et V la masse et le volume de l'échantillon. Le taux de cristallinité se mesure par les rayons X en utilisant par exemple la méthode de Hermans et Weidinger en comparant les intensités des raies cristallines et de l'halo amorphe. D'autres existent comme les mesures de densité et l'analyse calorimétrique différentielle à balayage (differential scanning calorimetry ou DSC).

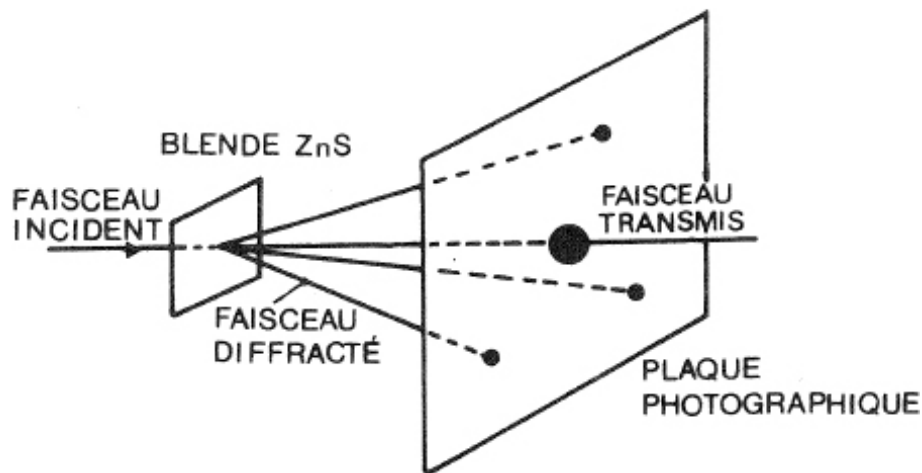


FIGURE 1.2 – L'expérience de Friedrich et Knipping (Haudin et G'sell 1995).

1.1.2 Morphologie des polymères semi-cristallins

1.1.2.1 Les ordres de grandeur

Les polymères peuvent être décrits à plusieurs niveaux, niveaux correspondants à des ordres de grandeurs et répertoriés dans le tableau 1.1 (Haudin et G'sell 1995). Dans les polymères amorphes non orientés, la structure de l'état désordonné peut être caractérisée par le rayon des pelotes statistiques en faisant intervenir le rayon de giration. Enfin, concernant les semi-cristallins, doivent être considérés la lamelle cristalline de l'ordre de 10 nm , et le sphérolite, à l'échelle du micromètre.

TABLEAU 1.1 – Structures et morphologies des polymères, les différents ordres de grandeur (Haudin et G'sell 1995).

Ordre de grandeur	Etat cristallin	Etat amorphe
0.1 nm	1 liaison dans la chaîne macromoléculaire	1 liaison dans la chaîne macromoléculaire
$0.1\text{ à }1 - 2\text{ nm}$	maille cristalline	–
10 nm	épaisseur de la lamelle cristalline	rayon des pelotes
$1\text{ }\mu\text{m}$	arrangement de cristaux (sphérolites)	–

1.1.2.2 La lamelle cristalline

Les monocristaux de polymères furent découverts en 1957 (Fischer 1957, Keller 1957, Till 1957). Grâce à une procédure expérimentale particulière, un cristal de polymère a pu être isolé et étudié de la même manière qu'un cristal minéral ou un grain dans un matériau métallique. Ainsi, il a été possible de vérifier que ces monocristaux étaient effectivement des lamelles cristallines, d'une épaisseur de l'ordre de 10 nm . Dans le cas des polymères semi-cristallins, il est admis qu'ils sont constitués localement d'un arrangement périodique de lamelles cristallines séparées par la phase

amorphe et reliées entre elles par les molécules de liaison (Haudin et G'sell 1995) comme présenté figure 1.3.

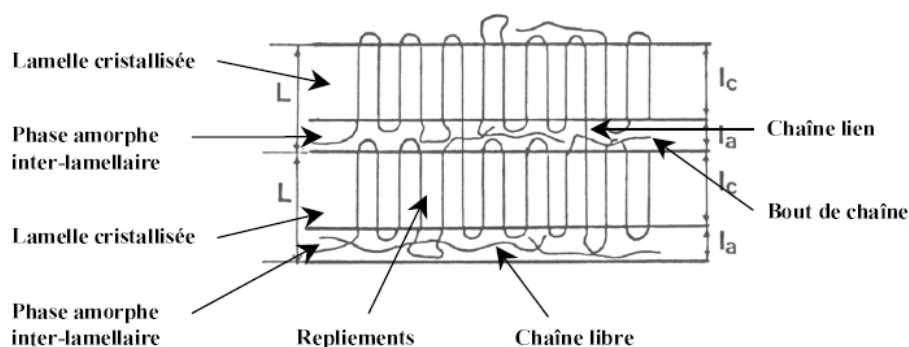


FIGURE 1.3 – Schématisation de l'organisation en lamelles cristallines formées des repliements des chaînes macromoléculaires. Les lamelles sont séparées par une phase amorphe inter-lamellaire composée de chaînes liens, de chaînes libres, de bouts de chaînes et de tout ce qui n'a pas pu cristalliser (Haudin et G'sell 1995).

1.1.2.3 Le sphérolite

Un sphérolite (figure 1.5) est un arrangement polycristallin constitué de cristallites radiales séparées par la phase amorphe qui croissent à partir d'un centre pour occuper l'ensemble de l'espace offert (Haudin et G'sell 1995). La figure 1.3 décrit l'arrangement local des lamelles cristallines et des zones interlamellaires. L'aspect cylindrique ou sphérique des sphérolites se maintient jusqu'à la rencontre avec d'autres sphérolites. Une fois la cristallisation terminée, les sphérolites ont un contour d'aspect polygonal 1.4.

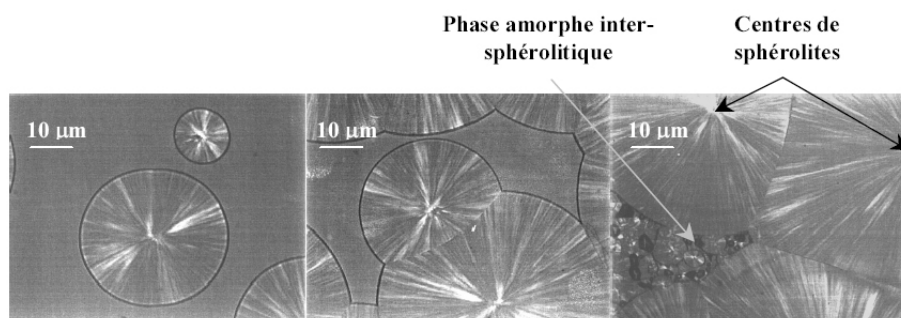


FIGURE 1.4 – Observation de la croissance de sphérolites dans du PET par microscopie optique en transmission en lumière polarisée (Lefebvre 2002). Au cours de la croissance, les sphérolites présentent une symétrie sphérique. Lorsqu'ils entrent en contact, leur enveloppe externe finit par devenir polygonale.

La direction radiale (direction de croissance des sphérolites) correspond à une direction cristallographique bien particulière. Cette organisation, associée à un caractère fortement anisotrope des cristaux polymères leur confèrent des propriétés optiques intéressantes. En effet, observés en microscopie optique entre polariseur et analyseur croisés, ils présentent

généralement des extinctions en forme de croix de Malte selon les axes du polariseur et de l'analyseur (1.5).

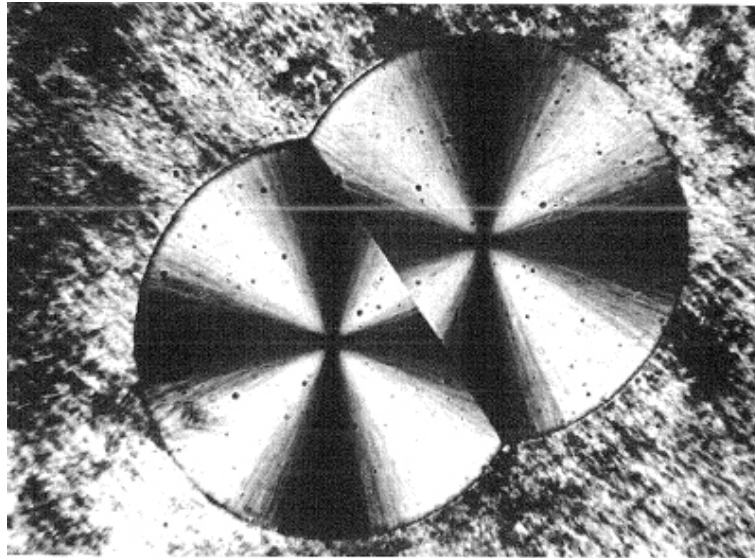


FIGURE 1.5 – Observation de deux sphérolites en croissance de diamètre 150 μm par microscopie optique en transmission en lumière polarisée. L'observation est faite entre polariseurs croisés (Haudin et G'sell 1995).

1.1.3 La température de transition vitreuse

De par son caractère désordonné, la phase amorphe offre au polymère un certain degré de liberté fortement dépendant de la température. En effet, une zone de températures, nommée zone de températures de transition vitreuse (notée T_g), existe et permet de distinguer les deux régimes : vitreux et caoutchoutique. Lorsque la température d'étude est inférieure à celle de la transition vitreuse, l'agitation thermique est insuffisante pour permettre le mouvement coopératif des molécules dans la phase amorphe ; il s'agit de l'état vitreux. Au dessus de T_g , un mouvement interne, engendré par l'agitation thermique, s'opère au sein de la phase amorphe ; on parle alors d'état caoutchoutique. Les polymères semi-cristallins, lorsque la température est supérieure à la zone de température de transition vitreuse, admettent des déformations bien plus importantes. Ceci s'explique par le fait que la phase amorphe à l'état caoutchoutique permet de supporter des déformations de grandes amplitudes. En dessous de T_g , la phase amorphe se déforme très peu et peut, selon les cas, être plus fragile que la phase cristalline.

La température de transition vitreuse peut être déterminée par DSC ou viscoanalyseur (Dynamic Mechanical Analysis, DMA). Dans la suite de l'étude, afin d'alléger l'écriture, nous mentionnerons la zone de température de transition vitreuse par, simplement, température de transition vitreuse.

1.2 MISE EN FORME DES POLYMÈRES

Les polymères peuvent être mis en œuvre à partir de poudres, de solutions ou d'émulsions (peintures, colles, adhésifs, fibre Kevlar), de l'état fondu ou caoutchoutique, et de l'état solide (usinage de pièces mécaniques, prothèses articulaires). Concernant les thermoplastiques de grande diffusion (PE, PP, PS, PVC) et techniques (polyamides), la mise en œuvre la plus fréquemment rencontrée est celle à partir de l'état fondu.

La figure 1.6 présente la mise en œuvre des polymères thermoplastiques. Le polymère est mélangé à différents produits (stabilisants, lubrifiants, plastifiants, ignifugeants, charges, renforts. . .) dans le but d'élaborer une formulation présentée généralement sous forme de poudre ou granulés. La formulation obtenue est ensuite fondue dans le cas des polymères semi-cristallins, ou plastifiée dans le cas des polymères amorphes, à la fois par conduction thermique et par dissipation d'énergie mécanique. Cette matière liquide et très visqueuse est alors forcée dans un outillage afin de donner une première forme au produit : tube, jonc, film, pièce injectée. . . Cette matière thermoplastique est refroidie, parfois étirée voire bi-étirée, pour obtenir le produit final. La microstructure du polymère et donc ses propriétés dépendent du processus de mise en forme, des paramètres d'étirage et de refroidissement.

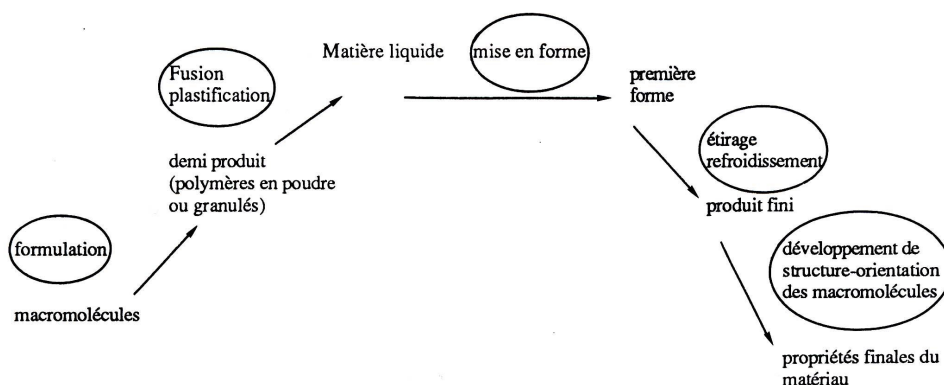


FIGURE 1.6 – Schéma général de la mise en œuvre des polymères thermoplastiques (Haudin 2006).

1.2.1 L'extrusion

L'extrusion est probablement le procédé le plus répandu. Une extrudeuse est constituée d'une vis sans fin en rotation à l'intérieur d'un fourreau chauffé comme décrit figure 1.7. Ce système est issu de l'industrie alimentaire et de l'industrie du caoutchouc et assure les trois fonctions suivantes :

- une fonction de convoyage : le polymère sous forme de poudre ou granulés est compacté et convoyé (principe de la vis d'Archimède) ;
- une fonction de plastification : passage de l'état solide à l'état liquide progressif par conduction de la chaleur et dissipation d'énergie de cisaillement ;

- une fonction de pompage : augmentation successive du diamètre de la vis engendrant la mise sous pression du polymère et l'obtention d'un débit régulier dans la filière.

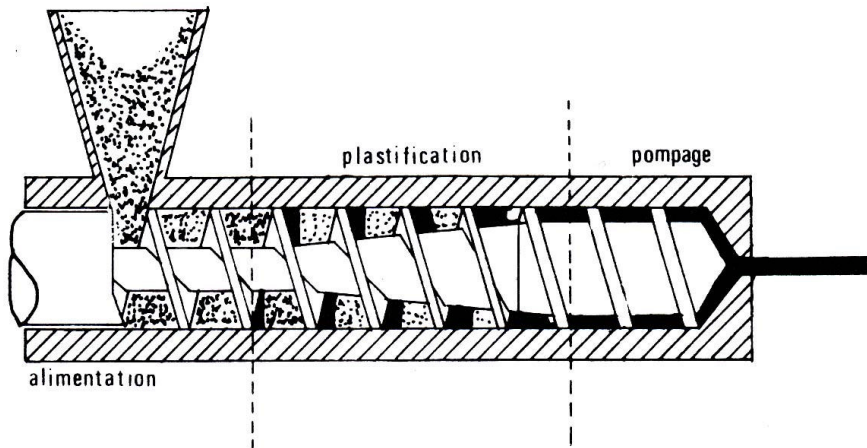


FIGURE 1.7 – Schéma de principe d'une extrudeuse monovis (Haudin 2006).

En sortie d'extrudeuse, le polymère passe à travers une filière qui a pour but de répartir le flux de matière et de le faire passer à travers un orifice qui donne une forme au produit : joncs, feuilles, plaques, films, tubes, gainages de câbles ou profilés. Il est également possible d'obtenir une forme de feuilles et films dits primaires, destinés au monoétirage, biétirage ou thermoformage.

1.2.2 Injection

L'injection permet de fabriquer des pièces de géométrie complexe en une seule opération. Les phases successives se déroulent comme suit (figure 1.8) :

- Le polymère est d'abord fondu dans un dispositif vis-fourreau similaire à celui rencontré pour l'extrudeuse monovis (la vis possède cependant un mouvement supplémentaire).
- La buse située à l'extrémité du fourreau étant obturée, le polymère fondu s'accumule en tête de vis alors que la vis tourne en reculant.
- Lorsque la quantité nécessaire de polymère a été fondue, la buse s'ouvre, transformant la vis en piston qui injecte, à grande vitesse, le polymère chaud dans un moule fermé et froid : il s'agit de la phase de remplissage.
- Le polymère ayant une faible conductivité thermique, son refroidissement est lent. Pour compenser une éventuelle variation de volume, le polymère est injecté en continu : c'est la phase de compactage.
- Une fois le compactage terminé (le canal reliant la buse au moule étant solidifié), la pièce continue à se refroidir dans le moule, puis, après éjection, à l'extérieur du moule.

1.2.3 Les autres...

D'autres procédés de mise en œuvre existent comme :

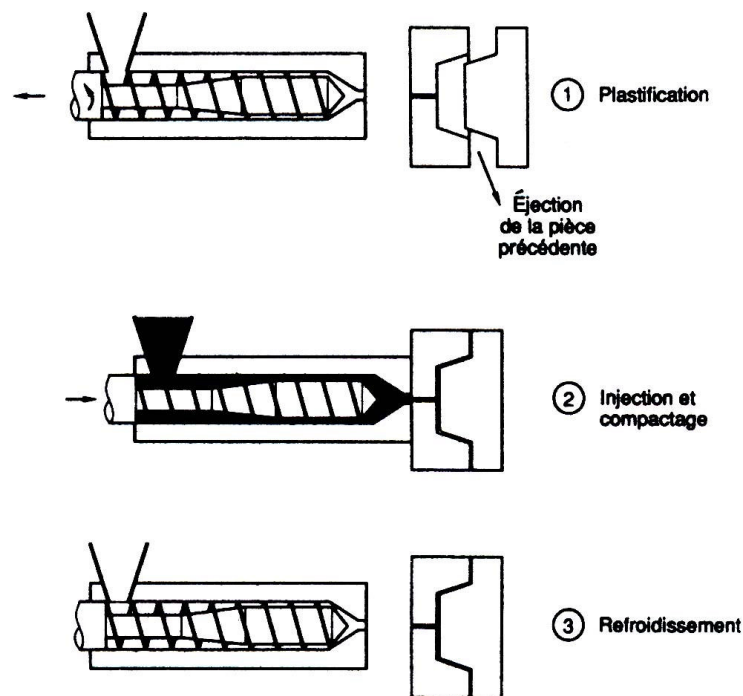


FIGURE 1.8 – Les différentes phases du cycle d'injection (Haudin 2006).

- le soufflage de gaine (ou extrusion-gonflage) utilisé par exemple pour obtenir des films de polyéthylène ;
- l'extrusion-soufflage pour fabriquer des bouteilles, des flacons, des réservoirs ;
- l'injection-soufflage (ou biétirage-soufflage) pour fabriquer des bouteilles pourvues de bouchons et résistant à la pression (eau, boisson gazeuse) ;
- le filage textile ;
- le calandrage, procédé réservé au caoutchouc et au PVC.

1.3 LE POLYAMIDE 11 : QUELQUES GÉNÉRALITÉS

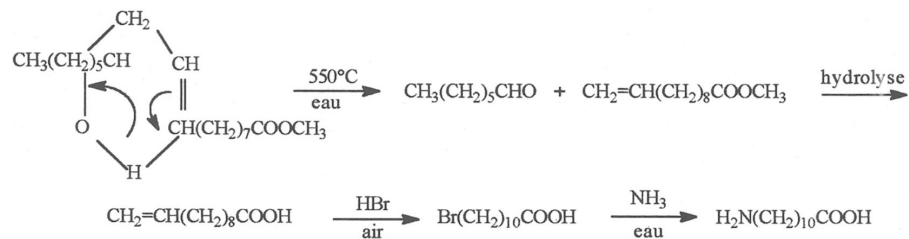
1.3.1 Structure du polyamide 11

1.3.1.1 Synthèse du PA11

En 1935, Carothers synthétise pour la première fois le polyamide 11 ; 20 ans plus tard, sa production à l'échelle industrielle commence en France. Le PA11 également connu sous le nom de Rilsan ou Nylon 11 a pour formule développée :



Le monomère est obtenu à partir de l'huile de ricin puis traité par du méthanol et oxydé en acide undécyclénique. Ce dernier subit des réactions successives et enfin permet d'obtenir l'acide ω -amino undécanoïque (Kohan 1973) comme décrit figure 1.9.

FIGURE 1.9 – Synthèse de l'acide *w*-amino undécanoïque (Kohan 1973).

Le PA11 est ensuite préparé par condensation de l'acide sous azote à une température de 250°C (figure 1.10).

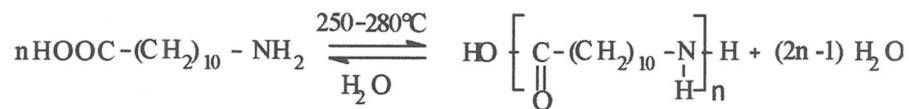


FIGURE 1.10 – Réaction de polycondensation du PA11.

1.3.1.2 Morphologie cristallographique

Il a été écrit précédemment que la cristallisation était une étape critique dans la processus de création d'un polymère car c'est au cours de celle-ci que le polymère obtient sa morphologie cristallographique, les chaînes macromoléculaires s'arrangeant pour atteindre le niveau d'énergie le plus favorable. Organisées en feuillets afin de former des plans réticulaires, plus ou moins de chaînes ont la possibilité de cristalliser selon les conditions de cristallisation. Deux conformations des chaînes macromoléculaires existent concernant les polyamides (figure 1.11) :

- la conformation parallèle : les chaînes se décalent toujours dans la même direction d'une distance fixe. Il s'agit de la conformation observée dans le PA11.
- la conformation anti-parallèle : les chaînes se décalent alternativement dans une direction et son opposé d'une distance fixe.

Ce sont les liaisons hydrogène entre les groupements -NH d'une chaîne et -CO de sa voisine, qui dictent la morphologie de la conformation. Grâce à la diffraction des rayons X, il a été montré que, concernant le PA11, la conformation parallèle officie (Kinoshita 1959, Slichter 1959).

Il s'en suit alors l'empilement des plans de conformation parallèle qui s'effectue selon deux dispositions principales (figure 1.12) : la structure α et la structure β . Un seul type d'empilement est observé pour le polyamide 11 : la structure α .

Jolly *et al.* (2002) ont identifié la symétrie du réseau du polyamide 11 par diffraction des rayons X comme une symétrie triclinique dont la maille est décrite figure 1.13 et confirme ainsi les réflexions entreprises par Slichter (1959).

Le PA11 est un polymère relativement peu cristallisé, la matière amorphe est souvent présente à plus de 70% en poids.

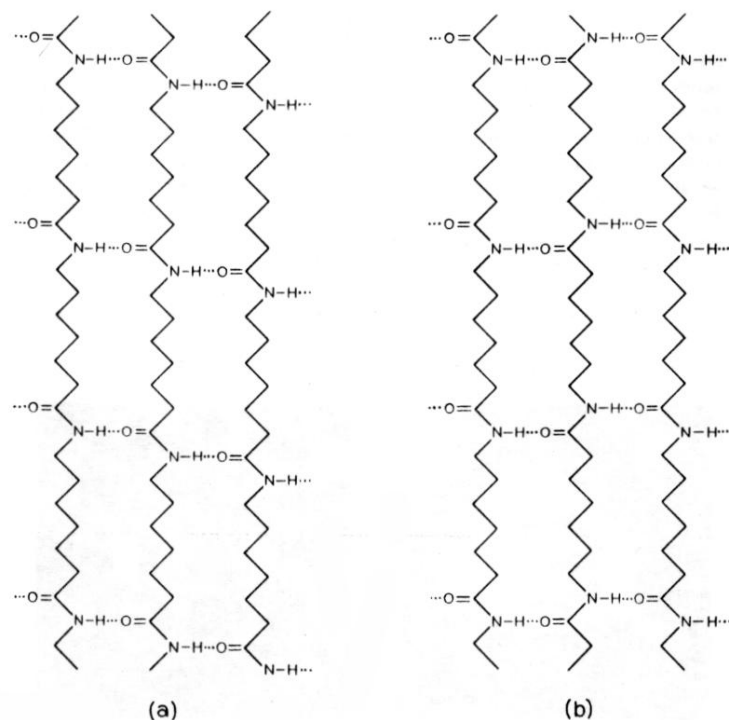


FIGURE 1.11 – Conformations théoriques possibles des chaînes macromoléculaires dans les polyamides (exemple du PA6) : (a) conformation parallèle ; (b) conformation anti-parallèle.

1.3.1.3 Structures lamellaires et sphérolitiques

Les mailles cristallines s'organisent en lamelles qui s'empilent et se replient pour former des sphérolites. Magill (1969) montre que les lamelles sont constituées d'un empilement de plans (010) perpendiculairement au rayon du sphérolite et que la phase amorphe du polyamide 11 se constitue de la phase amorphe inter-lamellaire (25%) et inter-sphérolitique (75%). Magill (1969), afin d'observer les sphérolites du PA11, recristallise un film de faible épaisseur afin de l'observer en microscopie optique en lumière polarisée. Il met ainsi en évidence une particularité des sphérolites du polyamide 11 qui sont annelés (figure 1.14).

Les annelures sont à mettre en relation avec la forme en hélice des lamelles causée par la tension coopérative inter-lamellaire. Breedon *et al.* (1973) propose un modèle qui consiste à relier le pas des hélices à la cinétique de cristallisation du polymère (figure 1.15).

1.3.2 Le vieillissement du PA11

Les molécules d'eau, à la fois petites et polaires, ont tendance à créer des liaisons hydrogène et cela quel que soit leur état solide ou liquide. Cela les rend si particulières à l'égard des polymères et principalement ceux contenant des atomes d'azote ou d'oxygène, soit entre autres le polyamide 11, qui sont dès lors soumis au vieillissement hydrolytique (Verdu 1985). Verdu (1985) montre clairement qu'il est difficile de pouvoir différencier l'influence des différents phénomènes (hydrolyse, action de la température, diffusion d'une molécule) au cours du vieillissement. Ce-

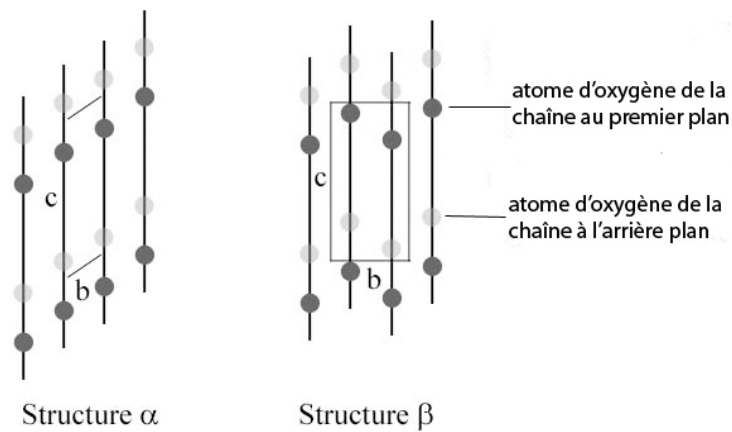


FIGURE 1.12 – Empilement des plans selon deux structures : (a) structure α ; (b) structure β .

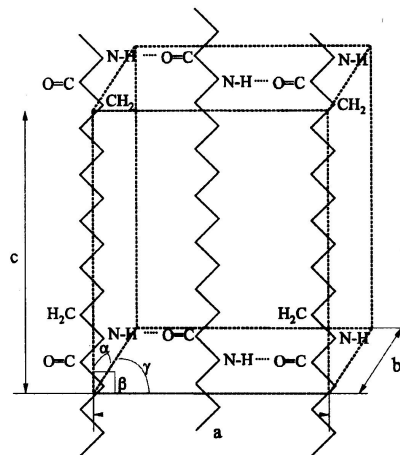


FIGURE 1.13 – Maille cristalline du PA11 (Jolly et al. 2002). L'axe c est orienté selon la chaîne macromoléculaire ; les liaisons hydrogène sont orientées dans la direction a .

pendant, on distingue deux mécanismes d'altération des propriétés des polyamides en présence d'eau (Lefebvre 2002) :

- les mécanismes physiques résultant du lessivage de la microstructure sous l'action de l'eau ;
- Les mécanismes chimiques dans lesquels l'hydrolyse des chaînes a généralement pour conséquence une diminution de la masse molaire et une fragilisation du polymère.

Ces mécanismes sont évidemment accélérés par la température.

1.3.2.1 Le vieillissement physique du PA11

Ce mécanisme de vieillissement se caractérise par la disparition progressive d'un adjuvant, ce qui a pour conséquence l'altération des propriétés du polymère. Verdu (1990) montre l'existence de plusieurs exemples de pertes d'adjuvants. Dans le cas d'une diminution par extraction, Verdu (1985) observe deux stades de vieillissement :

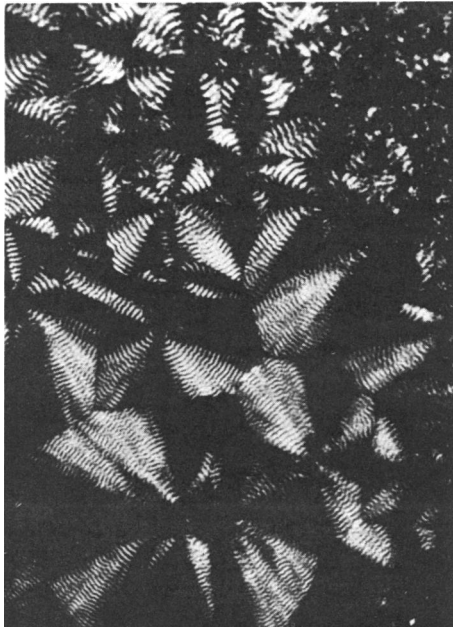


FIGURE 1.14 – Observation des sphérolites du PA 11 en lumière polarisée avec polariseur et analyseur croisés (Magill 1969).

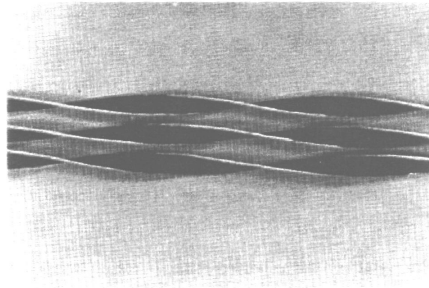


FIGURE 1.15 – Modèle de lamelles torsadées en métal proposé par Breedon et al. (1973).

- consommation du plastifiant qui assure encore un effet sur le comportement mécanique, il s'agit du vieillissement lent ;
- disparition totale du plastifiant entraînant une accélération de la dégradation.

La perte du plastifiant a pour effet de rigidifier le matériau suite au rétablissement de nombreuses liaisons hydrogène entre les chaînes macromoléculaires.

1.3.2.2 Le vieillissement chimique du PA11

Le vieillissement chimique caractérise les conséquences du vieillissement sur le squelette microstructural d'un polymère soit un morcellement du squelette de la macromolécule. Différents mécanismes sont mis en évidence :

- des coupures intramoléculaires menant à une diminution de la masse molaire ou une diminution de la densité de réticulation engendrant une perte des propriétés mécaniques ;
- des réactions de réticulation ;

- des réactions au niveau des groupements latéraux (substitution d'un groupe par un autre, élimination de groupes au profit d'une double liaison. . .).

Ces mécanismes de vieillissement chimique peuvent complètement modifier le comportement d'un polymère, et notamment sa déformation à rupture. En effet, le matériau vieilli perd de sa ductilité et son comportement se rapproche d'un comportement fragile.

1.3.3 Quelques propriétés chimiques et mécaniques

Les polyamides Rilsan® fournissent un mélange unique de propriétés physiques très importantes. En effet, le Rilsan®11 semble être un des seuls polymères à fournir des performances haut de gamme dans différents domaines physiques majeurs, parmi lesquelles la résistance chimique et aux hydrocarbures, la résistance aux chocs, à l'éclatement, à l'abrasion et aux fissures, la flexibilité, une température de service élevée et un vieillissement à long terme. Le PA11 a, par exemple, une densité très faible comparée à celle d'autres matériaux comme résumé figure 1.16.

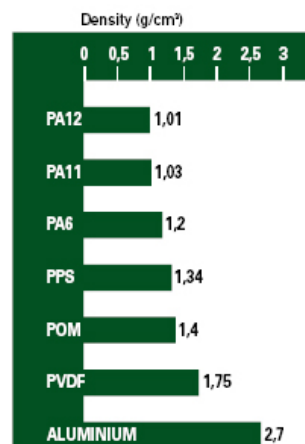


FIGURE 1.16 – Comparaison des densités de différents matériaux (source : ARKEMA).

1.3.4 Domaines d'application

Produit à partir d'une ressource renouvelable (l'huile de ricin), le Rilsan®11 est utilisé dans une large gamme d'application de par ses propriétés : résistance chimique, facilité de mise en œuvre, possibilité d'utilisation dans une large gamme de température (-40°C à $+130^{\circ}\text{C}$)... Le Rilsan®11 se rencontre, entre autres, dans les domaines (figure 1.17) :

- automobile (figure 1.18) : câbles, circuits d'essence, transfert de fluides (refroidissement, frein), connecteur, clip ;
- des véhicules industriels : tuyau hydraulique, câbles, circuits d'essence, connecteur, clip ;
- pneumatique ;
- de l'aérospace : câbles électriques, tuyaux hydrauliques, réservoir d'essence ;
- de l'industrie du câble ;

- du pétrole et du gaz : flexibles, tubes ;
- de l'emballage médical et alimentaire ;
- du textile ;
- du sport : raquettes, semelles de baskets, skis.



FIGURE 1.17 – Exemples d'application du PA11.

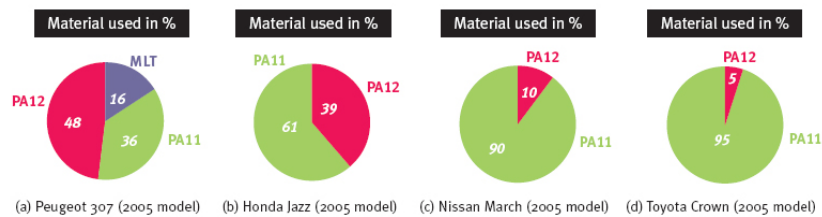


FIGURE 1.18 – Utilisation des matériaux fournis par ARKEMA dans le domaine automobile en 2005.

DÉFORMATION, ENDOMMAGEMENT ET RUPTURE

2

SOMMAIRE

2.1	DÉFORMATION DES POLYMÈRES SEMI-CRISTALLINS	23
2.1.1	Loi de comportement mécanique	23
2.1.2	Mécanismes microscopiques de déformation	30
2.2	ENDOMMAGEMENT PAR CAVITATION	34
2.2.1	Germination, croissance et coalescence de vides	34
2.2.2	Suivi de l'endommagement par rétro-diffusion cohérente	36
2.2.3	Modélisation de l'endommagement par cavitation	43
2.3	MÉCANIQUE DE LA RUPTURE	51
2.3.1	Généralités	51
2.3.2	Mécanique linéaire de la rupture	53
2.3.3	Mécanique non linéaire de la rupture - Plasticité étendue	60
2.3.4	Rupture par craquelage	62

CE chapitre s'intéresse à la description non exhaustive des micromécanismes de déformation conduisant à la mise en place de loi de comportement, aux mécanismes d'endommagement (cavitation, craquelures, bande de cisaillement) menant à la rupture survenant dans les polymères. Ce chapitre est particulièrement dédié aux polymères semi-cristallins tout en présentant des faits communs à l'ensemble des polymères.

2.1 DÉFORMATION DES POLYMÈRES SEMI-CRISTALLINS

2.1.1 Loi de comportement mécanique

2.1.1.1 Introduction

Une très grande diversité caractérise le comportement des polymères. En effet, pour des conditions d'utilisation identique, il est possible de trouver des polymères raides fragiles, ductiles ou encore souples. De ce fait, il existe plusieurs types de comportement comme par exemple visco-élastique, visco-plastique, élasto-visco-plastique, hyper-élastique, durcissant, endommageable... De plus, les conditions d'utilisation ou une modification d'une ou plusieurs des caractéristiques d'un polymère peuvent changer sa réponse. Cependant, cela ne signifie pas que le comportement d'un polymère est incontrôlé mais simplement que les paramètres influents, tout comme les processus envisageables sont concomitants.

Déformer un polymère signifie, à un niveau local, déformer et/ou déplacer ses éléments constitutifs soit les chaînes. En effet, les macromolécules ne sont pas indéformables et une fois leur configuration fixée par la chimie, elles peuvent adopter différentes conformations (arrangement spatial des groupements d'atomes). Le basculement de ces groupements peut être engendré par une sollicitation externe. Il existe deux niveaux de conformation :

- la conformation locale qui définit l'arrangement spatial local des groupements autour de la chaîne ou localement sur son squelette ;
- la conformation globale qui résulte de l'arrangement de tous les segments du squelette et qui est caractérisée, en première approche, par l'écart bout à bout quadratique moyen et le rayon de giration de la chaîne.

Ainsi déformer un polymère revient donc à amorcer des changements de conformations locales qui induiront des changements de conformations globales. Ces changements de conformations locales sont pilotés par des termes énergétiques d'interaction comme par exemple les forces de van der Waals, dans le cas des atomes non liés et par les potentiels de torsion sur les cônes de valence dans le cas des atomes liés. Il apparaît alors que la déformation macroscopique du polymère est thermo-activée et sensible à la vitesse. Le polymère est également un matériau fortement hétérogène dont le comportement ne se résume pas à la juxtaposition des comportements de chacune des phases. Par exemple, un polymère semi-cristallin injecté peut être vu à différentes échelles : une structure stratifiée cœur-peau ou à gradient à l'échelle du millimètre, une structure polyédrale à l'échelle des sphérolites ($1 - 10\mu m$), une structure lamellaire amorphe / cristal à l'échelle sub-sphérolitique ($10 nm$) voire à l'échelle de la dynamique moléculaire en considérant des chaînes de polymère.

Chacun de ces niveaux participe à la réponse mécanique du polymère émergeant à l'échelle macroscopique. De ce fait, ce dernier peut être le siège de divers mécanismes et diverses interactions. De nombreux paramètres influent donc sur le comportement du polymère. Or à ceux décrits précédemment s'ajoutent les conditions de mise en œuvre, de sollicitations et d'environnement (milieu, température, pression) :

- l'architecture du polymère est la première à prendre en compte. En effet, la nature du monomère ainsi que la nature des chaînes, de par les relations physico-chimiques, les taux et longueurs de branchement, la nature des enchaînements (bloc, alterné, statistique)... conditionnent le comportement du polymère ;
- la formulation du polymère par l'intermédiaire d'additifs divers (plastifiants, charges), d'éléments de mélange (constituants, dispersion des phases) ou encore l'existence d'un agent de couplage entre phases ;
- la mise en œuvre peut engendrer des modifications du matériau (nature des chaînes, ramification, réticulation), de la formulation en consommant des additifs, de la microstructure (cristallisation, texturation cristalline, orientation moléculaire) ou encore de l'organisation spatiale des constituants (répartition des charges) ;
- les conditions d'utilisation : type de sollicitation (traction, compression, cisaillement), température, vitesse de sollicitation, pression, taux de déformation, histoire thermomécanique, environnement (taux d'humidité), milieu agressif.

2.1.1.2 Comportement aux petites déformations

Comme pour les matériaux métalliques, différents types d'essais peuvent être entrepris pour caractériser les propriétés mécaniques des polymères, essais répertoriés figure 2.1. Des essais de traction, compression ou encore flexion donnent accès essentiellement aux composantes du tenseur des contraintes σ_{ii} quand des essais de cisaillement s'intéressent aux composantes σ_{ij} . Des essais moins courants s'ajoutent aux précédents comme la traction biaxiale ou encore le compression plane. Les essais peuvent être pilotés à vitesse constante pour accéder aux variations de la contrainte en fonction de la déformation ou à déformation constante pour investiguer des cinétiques de relaxation.

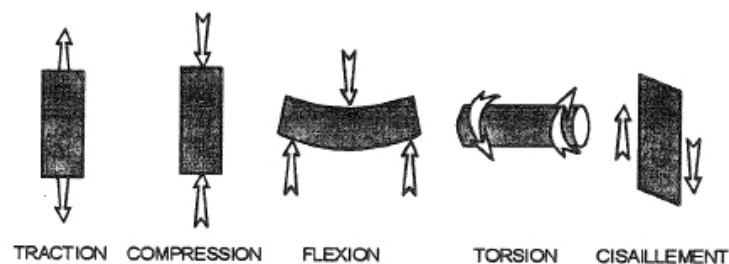


FIGURE 2.1 – Différentes géométries d'essais mécaniques (G'Sell 1995).

Par l'intermédiaire d'essais mécaniques à vitesse constante, il est possible de vérifier que la contrainte n'est proportionnelle à la déformation que sur une très faible plage initiale. D'ailleurs même pour une déformation faible, il existe une courbure ainsi qu'un phénomène d'hystérésis si la contrainte est relâchée (G'Sell 1995). Des essais peuvent également être menés à contrainte constante (fluage) ; ces essais permettent alors d'accéder aux courbes $\epsilon(t)$. Ces phénomènes sont abordés à l'aide d'un forma-

lisme de visco-élasticité. Généralement, les processus visco-élastiques se définissent par des variations du module en fonction du temps comme, par exemple, la formulation de Maxwell $E(t) = E_0 \exp(-t/\tau)$ où τ est un temps de relaxation caractéristique supposé indépendant du temps et de la déformation (visco-élasticité linéaire). Cependant, les temps de relaxation dans les polymères étant nombreux, il est nécessaire d'utiliser un spectre large de temps de relaxation (comme par exemple Maxwell) :

$$E(t) = \int_0^{\infty} E_0(\tau) \exp\left(-\frac{t}{\tau}\right) d\tau \quad (2.1)$$

où $E_0(\tau)$ représente le spectre de temps de relaxation. En appliquant le principe de superposition de Boltzmann, il est possible de passer à d'autres types de sollicitation comme par exemple une déformation à vitesse constante :

$$\sigma(\epsilon) = \dot{\epsilon} \int_0^{\infty} \tau E_0(\tau) \left[1 - \exp\left(-\frac{t}{\tau}\right)\right] d\tau \quad (2.2)$$

D'autres approches ont été développées comme celle de Kohlrausch permettant de minimiser le nombre de paramètres ajustables par l'intermédiaire d'un spectre continu et d'une enveloppe non linéaire :

$$E(t) = E_0 \exp\left[-\left(\frac{t}{\tau}\right)^\beta\right] \quad (2.3)$$

Des polymères n'ont pas de limite élastique identifiable tels que, les polymères fragiles qui cassent au cours du stade visco-élastique ou les élastomères qui adoptent un comportement hyper-élastique (figure 2.2). La limite élastique se manifeste sous forme d'un maximum local de la courbe nominale $\sigma_n = F/S_0 - \epsilon_n = (l - l_0)/l_0$ entraînant l'apparition d'un "genou" ou d'un crochet. De nombreux auteurs ont travaillé sur la limite élastique des polymères tant au niveau microstructural que phénoménologique (critère de plasticité). Brown (1986) a ainsi mis en évidence une corrélation phénoménologique entre la limite élastique et le module d'élasticité initial. Argon (1973) a montré qu'à 0 K, la limite d'élasticité est similaire à la contrainte critique de Frenkel et a proposé de relier sa décroissance progressive avec la température à l'activation thermique de défauts correspondants à une concentration locale d'énergie élastique stockée.

Remarque 2.1 *Le vieillissement physique influe également sur le "genou".*

L'ensemble de ces travaux a amené les théories de la plasticité dans les polymères, théories de plus en plus détaillées permettant de rendre compte de manière fidèle de l'influence de paramètres comme la vitesse et la température. De plus, il est nécessaire de signaler l'influence de la contrainte hydrostatique sur la limite d'élasticité. Pour prendre en compte cet effet, Sternstein (1975), par exemple, propose un critère de von Mises modifié s'adaptant à de nombreux polymères solides :

$$\begin{aligned} \tau_{oct} &= \frac{1}{3} \left[(\sigma_1 - \sigma_2)^2 + (\sigma_3 - \sigma_1)^2 + (\sigma_2 - \sigma_3)^2 \right]^{1/2} \\ &= \tau_0 - \alpha \frac{\sigma_1 + \sigma_2 + \sigma_3}{3} \quad (2.4) \end{aligned}$$

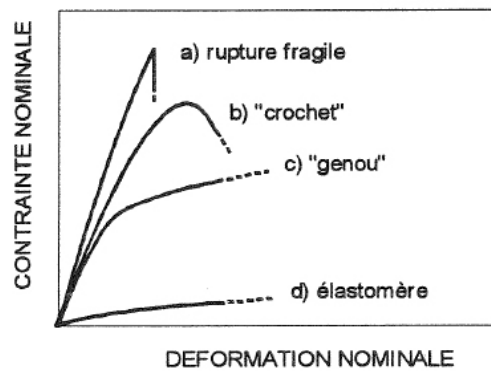


FIGURE 2.2 – Comportement typique des polymères (G'Sell 1995).

où τ_0 est une caractéristique intrinsèque du matériau représentant la contrainte octaédrale critique à la limite élastique observée en cisaillement pur et $(\sigma_1 + \sigma_2 + \sigma_3)/3$ la contrainte hydrostatique du matériau. Comme décrit sur la figure 2.3 dans le plan (σ_1, σ_2) , cette relation considère que la limite élastique en traction est inférieure à la limite élastique en compression, la surface de plasticité étant la surface de von Mises translatée selon la première bissectrice.

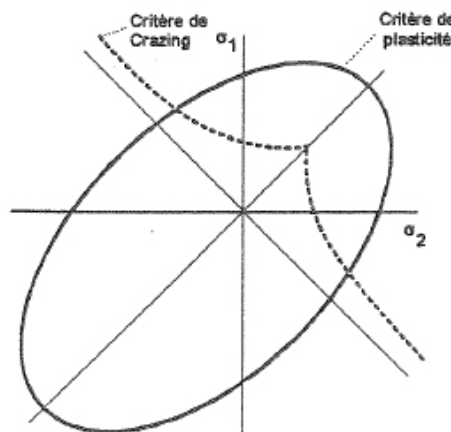


FIGURE 2.3 – Critères de plasticité et de craquelage (Sternstein et Ongchin 1969).

2.1.1.3 Comportement aux grandes déformations

Une des difficultés rencontrées lors d'essais de traction concerne le phénomène de striction qui se produit dans de nombreux polymères. G'Sell (1988), G'Sell *et al.* (1983) se sont notamment intéressés à ce phénomène dans le cas du polyéthylène. La figure 2.4 présente l'allure typique de la courbe nominale conventionnelle contrainte-déformation à laquelle s'ajoute l'évolution du profil de l'éprouvette pendant une traction uniaxiale à vitesse d'allongement constante (G'Sell 1995). Il s'avère que la

striction apparaît à la limite élastique caractérisée par le crochet de traction (c'est-à-dire lorsque que σ_n atteint un maximum local).

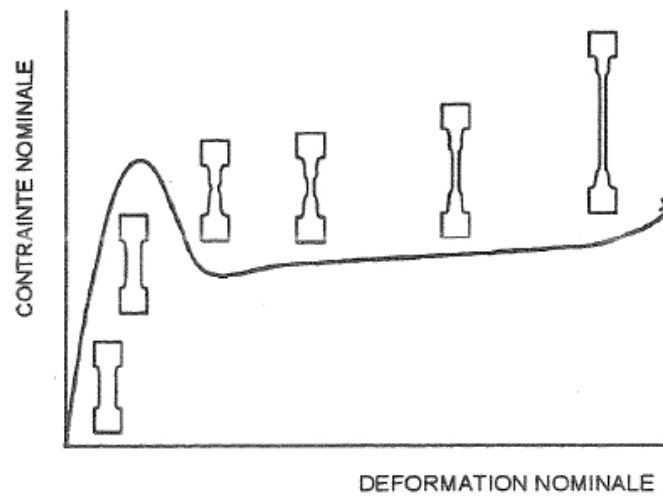


FIGURE 2.4 – Développement de la striction dans le polyéthylène (G'Sell 1995).

La striction naît à partir d'un défaut intrinsèque ou extrinsèque et correspond à une déformation hétérogène : la déformation et la vitesse de déformation étant plus grandes dans la striction lorsqu'elle se forme. De par la réduction de la section, la contrainte est également plus élevée dans la striction. De plus, des effets thermiques peuvent affecter la striction comme un auto-échauffement local (figure 2.5) dont la valeur varie selon la vitesse de traction et la conductivité thermique du matériau. Cet auto-échauffement peut être important et selon les conditions d'essais entraîner des changements de mécanismes. Un autre type d'hétérogénéité de déformation est rencontré dans les polymères amorphes vitreux : les bandes de déformation microscopiques analysées par Bowden et Jukes (1972), Argon (1975).

Afin de déterminer une loi constitutive, il est primordial d'accéder au comportement intrinsèque du polymère, indépendamment du type d'éprouvette et de la position dans l'éprouvette. Différentes échelles peuvent être considérées et sont représentées sur la figure 2.6. L'éprouvette représente l'échelle macroscopique soit l'échelle à laquelle sont réalisés les essais qui permettent par des mesures simples (longueur, force) d'accéder aux déformations et contraintes dans le cas de déformations homogènes. Cependant lorsque les déformations et la structure sont hétérogènes, ces mesures simples n'ont pas de significations intrinsèques. A l'opposé, les microstructures macromoléculaires et cristallines font l'objet de processus de déformations microscopiques complexes. Il semble donc nécessaire de définir à une échelle mésoscopique un milieu homogène équivalent suffisamment petit par rapport aux instabilités plastiques macroscopiques et suffisamment grand pour inclure un grand nombre de processus microscopiques soit une échelle de l'ordre de $100 \mu\text{m}$ (G'Sell 1995).

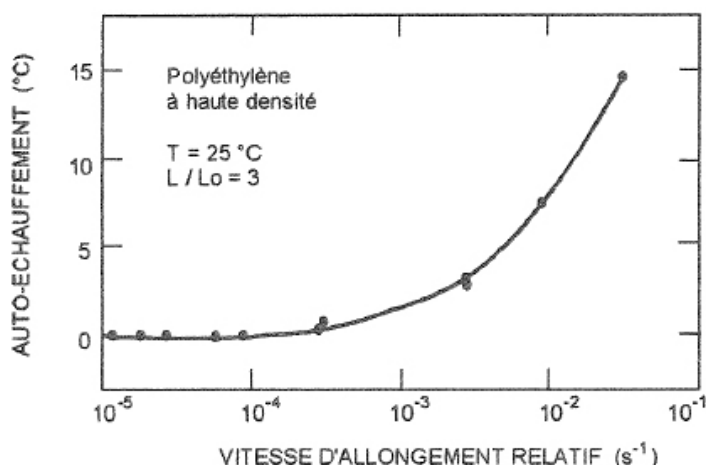


FIGURE 2.5 – Influence de la vitesse d'allongement sur l'auto-échauffement induit par la traction dans le polyéthylène (Marquez-Lucero et al. 1989).

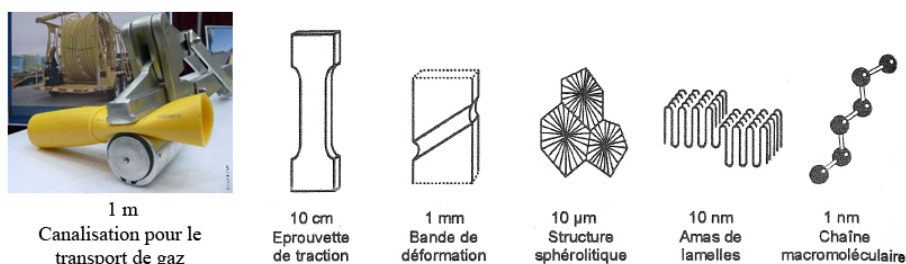


FIGURE 2.6 – Différentes échelles de caractérisation de la déformation (G'Sell 1995).

Pour ce faire, G'Sell *et al.* (1983; 1992) ont développé un nouveau concept d'essais mécaniques à pilotage vidéométrique où les mesures sont réalisées à l'aide d'une caméra vidéo interfacée à un ordinateur et où l'actionneur de la machine est piloté en temps réel par un ordinateur qui calcule la déformation vraie et la contrainte vraie dans la zone mésoscopique de référence. Le système suit en temps réel l'évolution du diamètre de la section minimale d , le rayon de courbure R et la force de traction F ; la courbe contrainte vraie-déformation vraie est obtenue par les relations suivantes :

$$\sigma = \frac{4F}{\pi d^2} \frac{1}{\left(1 + \frac{4R}{d}\right) \ln\left(1 + \frac{d}{4R}\right)} \quad \text{et} \quad \epsilon = 2 \ln\left(\frac{d_0}{d}\right) \quad (2.5)$$

où $4F/\pi d^2$ correspond à la contrainte de Piola-Kirchoff. Un facteur correctif dû à Bridgman (1944) apparaît qui tient compte des effets de triaxialité engendrés par la courbure de la striction. La déformation est supposée isochore et axisymétrique et la vitesse de déformation vraie $\dot{\epsilon} = -2\dot{d}/d$ est maintenue constante.

La figure 2.7 présente les courbes contrainte vraie-déformation vraie de plusieurs polymères obtenues en traction avec la méthode vidéométrique à température ambiante. Les polymères, qu'ils soient amorphes ou

semi-cristallins, présentent des comportements similaires caractérisés par un domaine visco-élastique initial suivi d'un comportement transitoire à la limite élastique et enfin un comportement plastique jusqu'à la rupture. La "limite élastique" revêt différentes formes selon les polymères : concernant les polymères possédant une phase vitreuse, un crochet de traction est observé constitué d'un maximum local pour la contrainte vraie suivi d'un adoucissement ; pour les polymères semi-cristallins dont la phase amorphe est caoutchoutique, il s'agit d'un genou. Les courbes présentées figure 2.7 ne prennent pas en compte la variation volumique. Or chaque polymère ne cavite pas pour un même seuil de déformation et/ou contrainte ; de plus, la cinétique de cavitation est différente. Un autre point concerne l'auto-échauffement des polymères. D'une part, celui-ci dépend du polymère considéré (diffusion de la chaleur) mais son effet sur la modification des mécanismes de déformation ou d'endommagement dépend également de la valeur de la température de transition vitreuse qui change d'un polymère à l'autre. D'autre part, la vitesse de déformation peut également influencer sur la dissipation d'énergie en chaleur.

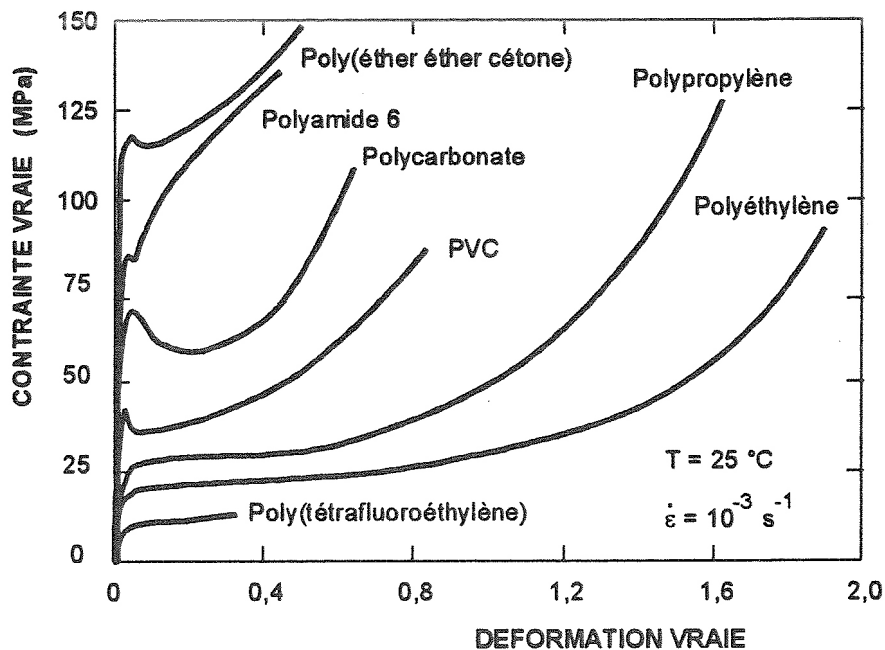


FIGURE 2.7 – Courbes contrainte vraie-déformation vraie de divers polymères obtenues à 25°C avec la méthode vidéométrique (G'Sell 1995).

La contrainte d'écoulement plastique est sensible aux conditions de l'essai : température et vitesse de déformation. Ainsi pour le polyéthylène, la limite d'élasticité tout comme le durcissement diminuent avec l'augmentation de la température. Une constatation similaire apparaît concernant le polycarbonate amorphe lorsque que la température s'approche de la T_g (figure 2.8). L'influence de la vitesse de déformation est, quant à elle, déterminée par un ensemble d'essais à différentes vitesses de traction ou à partir de sauts de vitesse réalisés au cours d'un essai donné.

Plusieurs approches ont été proposées afin de modéliser le compor-

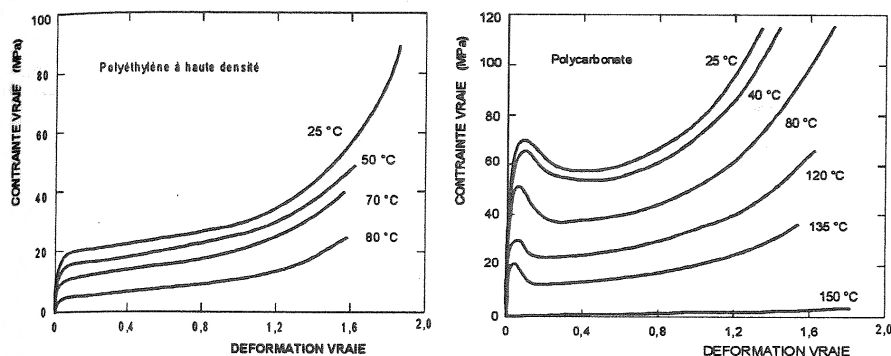


FIGURE 2.8 – Influence de la température sur le comportement plastique du polyéthylène et du polycarbonate ($\dot{\epsilon} = 10^{-4} \text{s}^{-1}$) (G'Sell 1995).

tement des polymères à l'aide d'une équation constitutive $\sigma(\epsilon, \dot{\epsilon}, T)$. On distingue :

- les modèles déductifs comme par exemple celui proposé par G'Sell et Jonas (1979) qui, pour une vitesse donnée, s'écrit à l'aide d'une loi du type $\sigma = KY(\epsilon, \dot{\epsilon}) \exp(h\epsilon^2) \dot{\epsilon}^m$;
- les modèles inductifs :
 - ◊ un modèle micromécanique comme celui établi pour les polymères amorphes, par Escaig et Lefebvre (1978) qui ont lié l'activation de la plasticité au franchissement des barrières enthalpiques tandis que le durcissement à l'état vitreux est de nature entropique (Boyce et Arruda 1990) ;
 - ◊ un modèle auto-cohérent comme le modèle de Sachs modifié par Lee *et al.* (1993) ou le modèle de Dahoun *et al.* (1993) sur la base d'un code auto-cohérent de plasticité cristalline de Molinari *et al.* (1987).

Ces deux types d'approches sont des approches phénoménologiques.

2.1.2 Mécanismes microscopiques de déformation

Il a été souligné plusieurs fois précédemment que les structures et morphologies des polymères et donc, a fortiori, des polymères semi-cristallins pouvaient être définies à différentes échelles d'observation : de la chaîne macromoléculaire à l'échantillon massif. Il en résulte que la déformation de toute éprouvette de polymère fait intervenir des mécanismes à différents niveaux.

2.1.2.1 Déformation des cristaux

Un cristal de polymère peut se déformer par plusieurs mécanismes comme le maillage, le glissement ou la transformation martensitique. Le glissement est le mode de déformation plastique le plus fréquent et consiste à une translation d'une partie A du cristal par rapport à une partie B suivant un plan de glissement G et une direction de glissement contenue dans le plan. Les lamelles cristallines des polymères sont constituées de deux types de liaisons (Haudin 1995) : des liaisons covalentes le long des chaînes et des liaisons de van der Waals entre les chaînes voisines.

Cela limite les possibilités de glissement et ainsi il est admis que seuls sont actifs les systèmes de glissement dont le plan contient les chaînes moléculaires. Concernant les directions de glissement, deux cas sont à considérer (figure 2.9) :

- le glissement dans la direction des chaînes (chain slip),
- le glissement perpendiculaire aux chaînes (transverse slip).

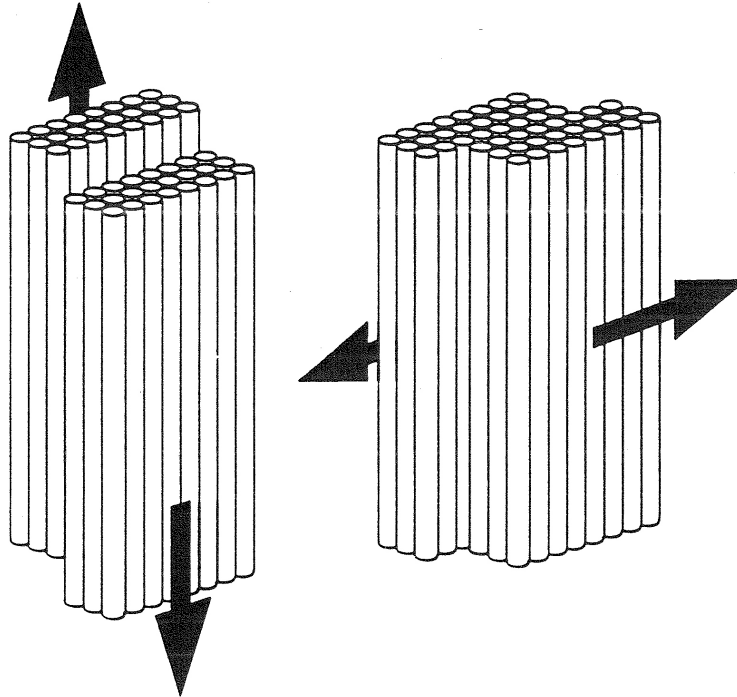


FIGURE 2.9 – Les deux types de direction de glissement (Haudin 1995).

Le maclage est un autre mode de déformation des cristaux et se définit par un cisaillement simple d'une partie du cristal par rapport au reste du matériau. On considère également le plan et la direction de maclage. Enfin, sous l'action de la contrainte, les lamelles cristallines peuvent subir un changement de phase cristalline qualifié de transformation martensitique en référence à la transformation se produisant dans les aciers.

2.1.2.2 Déformation des empilements de lamelles

Au-delà de leur zone de températures de transition vitreuse notée T_g , lorsque la phase amorphe devient caoutchoutique, les polymères semi-cristallins subissent de nouveaux modes de déformation. Ceux-ci concernent la phase amorphe et les empilements de lamelles cristallines séparées par des zones interlamellaires amorphes (figure 2.10a) :

- le glissement interlamellaire : glissement de deux lamelles cristallines parallèlement l'une par rapport à l'autre sous l'effet d'une contrainte appliquée (figure 2.10b) ;
- la séparation intralamellaire : variation de la distance entre lamelles lorsqu'une contrainte est appliquée perpendiculairement à leur plus grande surface (figure 2.10c).

Si les lamelles ne sont pas plates mais torsadées alors les deux mécanismes coexistent au sein de la même lamelle (Haudin 1995).

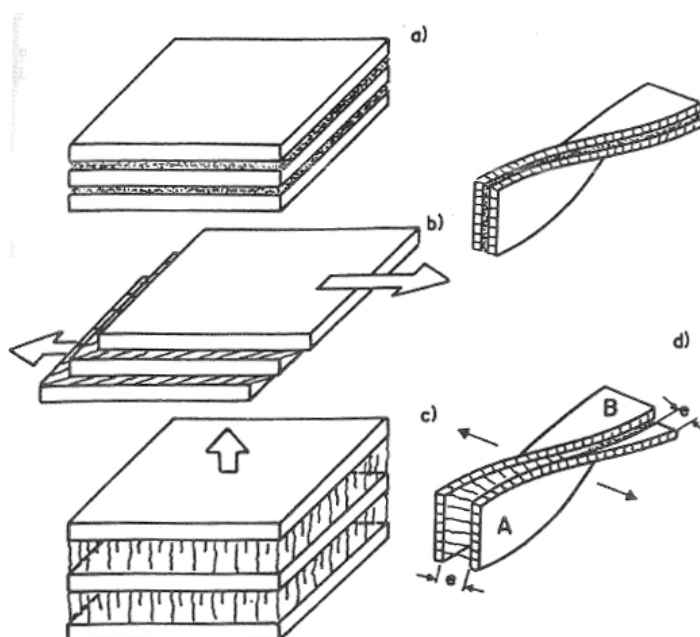


FIGURE 2.10 – Mécanismes de déformation de la phase amorphe dans les polymères semi-cristallins (Haudin 1995) : a) état non déformé (modèle à deux phases) ; b) glissement inter-lamellaire ; c) séparation inter-lamellaire ; d) cas des lamelles cristallines torsadées : séparation lamellaire en A et glissement inter-lamellaire en B.

2.1.2.3 Déformation des sphérolites

Un sphérolite soumis à une traction uniaxiale peut subir les mécanismes de déformation décrits précédemment selon le taux de déformation. Le déclenchement de ces mécanismes, dans une région donnée, dépend de l'orientation de cette région par rapport à la direction de traction ; il est donc nécessaire de distinguer (figure 2.11) :

- les régions équatoriales : rayons perpendiculaires à la direction de traction ;
- les régions diagonales : rayons formant un angle α avec la direction de traction ;
- les régions polaires : rayons parallèles à la direction de traction.

L'observation d'un sphérolite de polybutène-1 montre que la déformation commence au centre du sphérolite puis se propage dans les régions équatoriales. Dans les zones diagonales, les lamelles sont à la fois soumises à un cisaillement provoquant le glissement intralamellaire et à une déformation perpendiculaire à leur plan, entraînant leur séparation (Haudin 1995). Enfin dans les zones polaires, le mécanisme principal serait la fragmentation précoce des cristaux.

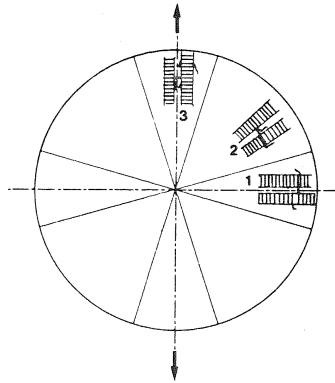


FIGURE 2.11 – Les trois types de régions à l'intérieur d'un sphérolite (Haudin 1995) : (1) régions équatoriales ; (2) régions diagonales ; (3) régions polaires.

2.1.2.4 Déformation du polymère massif en traction

Peterlin (1971) propose un schéma simple permettant de relier l'aspect macroscopique de la déformation caractérisé par la naissance et propagation d'une striction aux mécanismes microstructuraux et distingue trois régions de l'éprouvette :

- dans la zone où la striction ne s'est pas encore propagée, un glissement et une séparation des lamelles s'opèrent, suivis du glissement et basculement des chaînes à l'intérieur des lamelles cristallines ;
- dans la striction, il y a une transformation de la morphologie lamellaire en une morphologie microfibrillaire par fragmentation des cristaux ;
- après le passage de la striction, il y a alignement des blocs cristallins et étirement permettant à la déformation de se poursuivre.

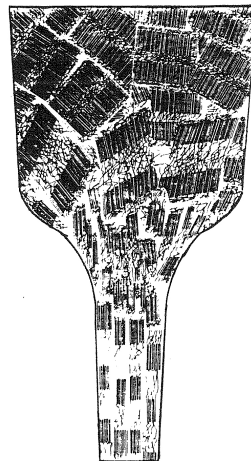


FIGURE 2.12 – Schéma général de la déformation en traction d'un polymère semi-cristallin (Peterlin 1971).

2.2 ENDOMMAGEMENT PAR CAVITATION

La cavitation est un micromécanisme d'endommagement souvent observé lors de la déformation de polymères semi-cristallins comme le poly-1butène (Men *et al.* 2004), le polyéthylène (G'Sell *et al.* 2002, Galeski 2003), le polypropylène (Zhang *et al.* 2000, Galeski 2003) ou encore le PVDF (Cangemi *et al.* 2004, Castagnet *et al.* 2000, Lafarge 2004). La cavitation est également un phénomène rencontré dans le cas des polymères renforcés par une seconde phase et qui apparaît soit en cœur de particules soit à l'interface matrice-particule. Macroscopiquement, elle se caractérise par un blanchiment du matériau qui intervient vers la contrainte d'écoulement (Galeski *et al.* 1989a). De manière plus précise, sa mise en évidence s'effectue par l'intermédiaire de différents outils comme le microscope à balayage électronique (MEB), le microscope électronique en transmission, la rétro-diffusion de la lumière ou la diffusion de rayons X.

2.2.1 Germination, croissance et coalescence de vides

2.2.1.1 Germination des cavités

La cavitation peut également apparaître lors de la cristallisation des polymères dans des poches micrométriques de polymère en fusion formées par les sphérolites environnants. La pression négative générée conduit au déclenchement de la cavitation. De nombreuses études se sont penchées sur la cavitation en cours de cristallisation comme par exemple celle de Pawlak et Piorkowska (1999) concernant l'effet de la pression négative sur le comportement des sphérolites de polymères cristallins en couche mince. On parle alors de cavitation initiale.

La germination de cavités due à la scission des chaînes, dans les polymères semi-cristallins, s'effectue généralement à travers la phase amorphe (Castagnet 1998). L'échantillon soumis à une traction, la cavitation débute dans les couches amorphes entre les lamelles cristallines perpendiculaires à l'axe des contraintes (figure 2.13) : il s'agit de la germination.

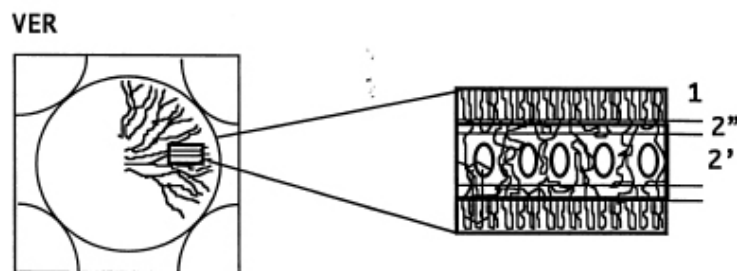


FIGURE 2.13 – Cavitation localisée dans la phase amorphe d'une lamelle cristalline : (1) Phase cristalline ; (2') : Phase amorphe libre ; (2'') Phase amorphe confinée (Castagnet 1998).

Une conclusion générale apportée par ces diverses études est que la cavitation dans la phase amorphe au sein de polymères tels que le polypropylène, le polyéthylène, en dessous de la température de transition vitreuse requiert une pression négative de l'ordre de -5 à -20 MPa.

L'enchevêtrement des chaînes moléculaires serait responsable de la valeur de la pression négative. L'augmentation de la masse molaire pourrait supprimer la cavitation en augmentant la force cohésive de la phase amorphe (Galeski 2003); cependant, cela n'a jamais été vérifié expérimentalement.

Selon Galeski (2003), il semble raisonnable de considérer que la physique de la cavitation, localisée dans la phase amorphe lors de la déformation d'un polymère cristallin, est similaire à la cavitation se déroulant lors de la cristallisation et donc, nécessite une pression négative du même ordre. Il apparaît alors une compétition entre la contrainte nécessaire pour déclencher la cavitation et la contrainte de cisaillement du système de glissement des cristaux. Si la contrainte déclenchant le glissement cristallographique est inférieure à la contrainte de cavitation, alors le glissement précède la cavitation, permet la relaxation de la contrainte et donc la cavité n'apparaît pas. Ainsi, Galeski (2003) écrit la condition nécessaire à la cavitation comme

$$\sigma_{(hkl)[001]} > p_{cav} (1 - \nu) / 3\nu \quad (2.6)$$

où $\sigma_{(hkl)[001]}$ est la contrainte de cisaillement du système le plus faible, p_{cav} la pression négative requise pour caviter et ν le coefficient de Poisson de la phase amorphe.

2.2.1.2 Croissance des cavités

Galeski *et al.* (1989b) montrent que la taille des cavités, dans le cas du nylon-6, sont à l'échelle du nanomètre et ainsi, soulèvent le problème de la stabilité. En effet, la tension de surface exercée sur chaque pore tend à le refermer. Pour pouvoir croître, la contrainte appliquée σ_{3D} équivalente à une pression négative p doit être supérieure au rapport de la tension de surface et du rayon du pore r tel que

$$\sigma_{3D} = p > \tau / r \quad (2.7)$$

Il est trivial de constater que les pores les plus petits cicatrisent aisément étant donné que σ_{3D} varie en $1/r$.

Peterlin (1975) appelle cette cavitation interne "micronecking". Pendant longtemps, ce micronecking a été considéré comme essentiel pour obtenir des déformations importantes d'agrégats de chaînes sous prétexte qu'il libère les contraintes cinématiques entre les lamelles et permet aux chaînes de se démêler. Le modèle de micronecking développé par Peterlin (1975) et la formation de structure microfibrillaire sont schématisés figure 2.14.

2.2.1.3 Coalescence des cavités

La coalescence des cavités est le stade final du mode de rupture des matériaux ductiles. Cela consiste en la localisation de la déformation plastique à l'échelle micro dans le ligament qui s'est formé entre deux cavités voisines. Intervient alors, soit une coupure des fibrilles contenues dans le ligament, soit un "débobinage" à partir du dessus ou du dessous. Les interactions et la coalescence des cavités ont fait l'objet de nombreuses études notamment concernant la modélisation sans pour autant égaler celles portant sur la croissance des cavités. Le critère le plus utilisé pour

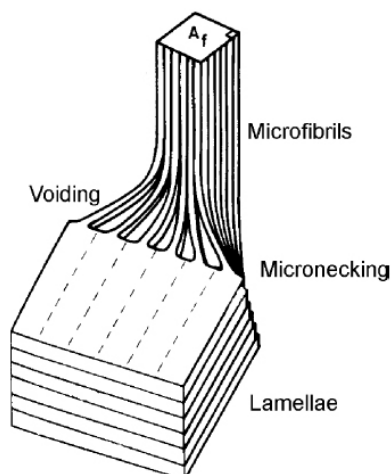


FIGURE 2.14 – Modèle schématique de la cavitation d'un polymère semi-cristallin soumis à une déformation de tension (Peterlin 1972).

le début de la coalescence des cavités établit que celle-ci commence dès lors que la porosité atteint une valeur critique qui est définie comme une constante du matériau (Mcclintock 1968b, d'Escatha et Devaux 1979). De nombreuses études numériques (Koplik et Needleman 1988, Tvergaard 1990, Brocks *et al.* 1995) et travaux expérimentaux-numériques (Marini *et al.* 1985, Becker 1987, Pardoën *et al.* 1998) ont estimé la validité de ce critère attractif mais extrêmement simplifié. En effet, il apparaît nécessaire qu'un modèle de coalescence de cavités requiert l'introduction d'informations liées à la microstructure (cavité, ligament, géométrie), conclusion reconnue par McClintock (1968b) et discutée en détail par Thomason (1990; 1993). Des modèles numériques existent pour prendre en compte de tels phénomènes comme le modèle de Gologanu–Leblond–Devaux qui est une version étendue du modèle de Gurson (1977) (Gologanu 1997, Gologanu *et al.* 1993; 1994; 1995), le modèle de Pardoën–Hutchinson (Pardoën et Hutchinson 2000) qui est également une version étendue du modèle de Gurson ou encore le modèle de Thomason (1985a;b).

2.2.2 Suivi de l'endommagement par rétro-diffusion cohérente

La diffusion simple de la lumière est une technique souvent utilisée pour rendre compte de l'évolution de l'endommagement dans les polymères transparents. L'opacité du polymère à de grands niveaux d'endommagement rend cette technique moins appropriée. Le faisceau lumineux est diffusé de nombreuses fois avant de s'extirper de l'échantillon. Alors, interviennent d'autres techniques comme la diffusion multiple de la lumière ou encore la rétro-diffusion cohérente (Géhant et Schirrer 1999). La principale faiblesse de ces techniques réside dans le fait que le libre parcours moyen diffusé mesuré, noté L_m , se détermine par le produit de la section diffusante s_d par le nombre de diffuseurs ρ . Or, si les diffuseurs consistent en des particules endommagées de caoutchouc (dans le cas de polymères renforcés), le produit de ces particules endommagées ρ par leur volume de vide v_f est connu mais pas leurs valeurs respectives.

La théorie de la diffusion multiple de la lumière, inspirée de [Géhant et Schirrer \(1999\)](#) est proposée en annexe [A](#).

2.2.2.1 Mécanismes d'endommagement et diffuseurs de lumière

On s'intéresse plus particulièrement au cas des matériaux renforcés, cas plus complexe que celui des polymères non chargés, dans le sens où l'endommagement peut soit apparaître en cœur de particules, soit à l'interface particule-matrice (figure [2.15](#)).

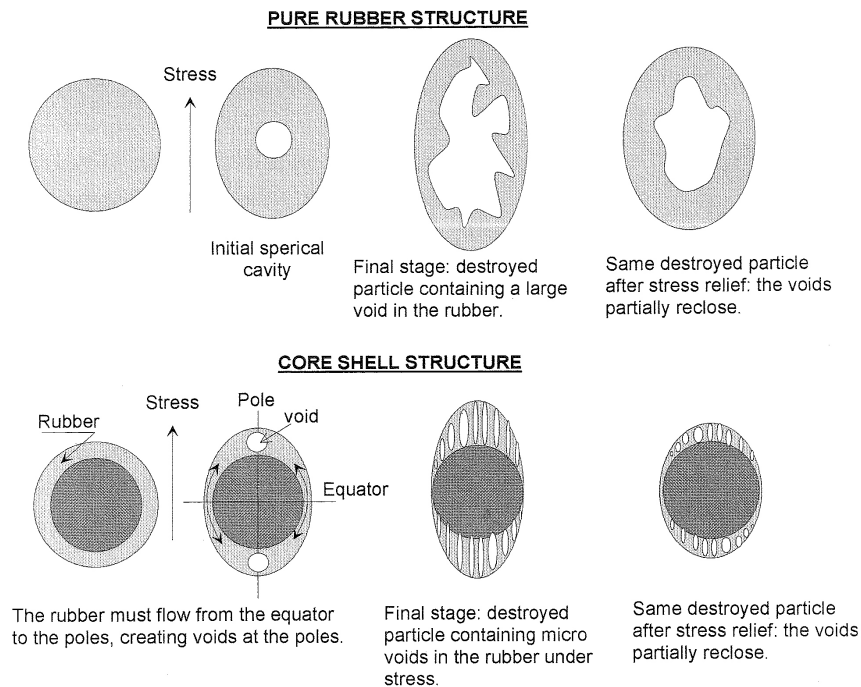


FIGURE 2.15 – Processus de déformation et mécanismes hypothétiques d'endommagement dans une particule de caoutchouc et dans une particule core-shell ([Géhant et Schirrer 1999](#)).

2.2.2.1.1 Les mécanismes d'endommagement Trois mécanismes d'endommagement, donc créateurs de diffuseurs de lumière, existent dans le cas des polymères renforcés par des particules de caoutchouc. Il s'agit des bandes de cisaillement, de la formation d'une craquelure (craze en anglais) et de la cavitation des particules de caoutchouc :

- L'indice optique des bandes de cisaillement est en général très proche de l'index du matériau. D'autre part, elles ne diffusent que très peu de lumière ce qui permet de supposer qu'elles ne sont pas détectées lors des expériences de diffusion de la lumière.
- Les craquelures ont une forme planaire et se localisent dans le plan perpendiculaire à la contrainte de traction principale. L'index d'une craquelure diffère énormément de celui du matériau et par conséquent, elle diffuse fortement la lumière.
- La cavitation se produit souvent au niveau des particules de caoutchouc. Cela a été mis en évidence et modélisé par [Fond et al. \(1996\)](#).

Le module de cisaillement des particules de caoutchouc étant nettement inférieur à celui de la matrice, il n'y a pas de cisaillement dans les nodules ce qui soumet ces particules uniquement à la pression hydrostatique. La cavitation est le mécanisme primaire d'endommagement des particules de caoutchouc. Il a été montré à la fois par la théorie et l'expérience que la taille de ces cavités est de l'ordre d'une dizaine de nanomètres au départ et que leur taille augmente à cause de la déformation de traction. A un stade plus avancé de déformation, des bandes de cisaillement microscopiques apparaissent dans la matrice au niveau des particules cavitées, mais comme expliqué précédemment, l'intensité de la lumière diffusée par ces bandes de cisaillement est nettement inférieure à celle diffusée par les cavités.

2.2.2.1.2 Les diffuseurs de lumière Des observations de matériaux renforcés par Microscope à Transmission (MET) montrent que les cavités consistent soit en une cavité unique en cœur de particule de caoutchouc (cavitation), soit en une distribution de plusieurs cavités au niveau de l'écorce du renfort (décohésion).

Dans le premier cas, on identifie le diffuseur à une cavité sphérique dans une particule de caoutchouc (Géhant et Schirrer 1999). En pratique, la fraction de vide dans les particules est assez faible, de l'ordre de 25 %. Le rayon de la cavité r étant à la fois petit par rapport à la longueur d'onde λ ($2\pi\lambda^{-1} \approx 0.5$) et au rapport $L^*/L \approx 1.1$, le diffuseur peut être décrit par le modèle de Rayleigh. Un simple calcul montre que le nombre de diffuseurs par unité de volume est :

$$\rho = \left[\frac{\Delta V}{V} \right]_v \frac{3}{4\pi r^3} \quad (2.8)$$

où $\left[\frac{\Delta V}{V} \right]_v$ définit la fraction macroscopique de vide.

Ce type de modèle de diffuseurs est valide pour les particules pures de caoutchouc quand la microscopie à transmission a révélé que l'endommagement se définissait par l'apparition d'une cavité unique en cœur de particule.

Dans le deuxième cas, c'est à dire l'apparition de plusieurs cavités dans une même particule, le diffuseur doit être considéré comme une cavité équivalente homogénéisée de rayon a et d'index optique moyen $\langle n \rangle$ (Géhant et Schirrer 1999) donné par l'équation de Lorentz :

$$\frac{\langle n \rangle^2 - 1}{\langle n \rangle^2 + 2} = (1 - v_f) \frac{n_0^2 - 1}{n_0^2 + 2} \quad (2.9)$$

n_0 étant l'index de la matrice et v_f la fraction de cavités dans la particule. En général, $2\pi a/\lambda \equiv 1$, $\left(1 - \frac{\langle n \rangle}{n_0}\right) \equiv 0$ et les diffuseurs sont proches des diffuseurs de Rayleigh-Ganz-Deby. Le nombre de diffuseurs par unité de volume est alors défini comme suit :

$$\rho = [\Delta V/V]_v \frac{3}{4\pi a^3 v_f} \quad (2.10)$$

Ce type de modèle de diffuseurs est approprié pour les particules de type core-shell car le vide est distribué dans la particule, peut-être pas en début d'endommagement mais certainement à des stades plus avancés.

2.2.2.2 La technique des petits déchargements rapides

2.2.2.2.1 Procédure expérimentale L'essai consiste en un essai de traction sur une éprouvette lisse à la température désirée. Des capteurs de déformations sont fixés sur l'échantillon (figure 2.16) afin d'enregistrer les déformations ϵ_x et ϵ_y ; la charge appliquée est, elle aussi, enregistrée. Ces données permettent de calculer la variation de volume totale c'est-à-dire due à la cavitation et à la part élastique (coefficient de poisson inférieur à 0.5), dans des conditions d'axisymétrie :

$$\Delta V/V = [\Delta V/V]_v + [\Delta V/V]_{elastic} = \epsilon_x + \epsilon_y + \epsilon_z = \epsilon_x + 2\epsilon_y \quad (2.11)$$

Le libre parcours moyen de diffusion L_m et le libre parcours moyen de transport L^* sont déterminés en utilisant deux systèmes de laser classique spécialement adapté pour l'enregistrement à grande vitesse de transmission de la lumière et de rétro-diffusion in situ sur une machine de traction. Si le matériau est opaque avant déformation, alors L_m ne pourra être déterminé par transmission. La plage de mesures étant approximativement $100 \mu m$ à ∞ pour L_m et $20 - 200 \mu m$ pour L^* , le chevauchement entre L_m et L^* permet de déduire les valeurs de $\cos(\theta)$ et ainsi d'obtenir une estimation quantitative de la validité du modèle utilisé pour décrire les diffuseurs du matériau.

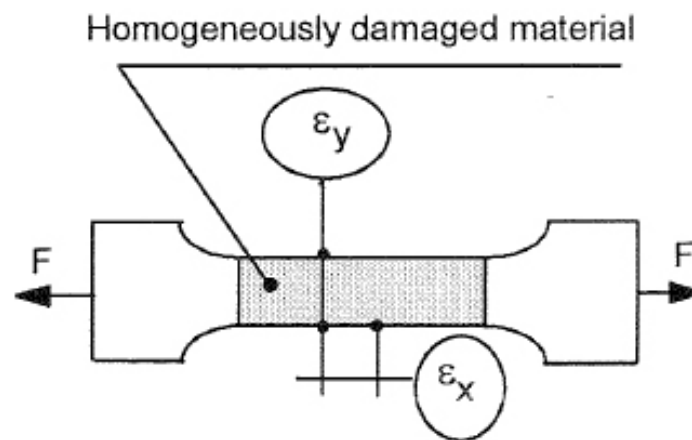


FIGURE 2.16 – Eprouvette de rétrodiffusion et capteurs permettant de déduire la variation de volume (Géhan et Schirrer 1999).

Le but de ces essais est d'enregistrer à chaque étape de l'endommagement les propriétés mécaniques et optiques du matériau. Une manière classique d'effectuer ces essais est d'imposer des petits déchargements élastiques en cours de déformation (figure 2.17). Ces décharges sont effectuées à grandes vitesses de déformation pour minimiser la confusion entre les variations des propriétés physiques dues à la visco-plasticité et celles dues à l'endommagement réel du matériau.

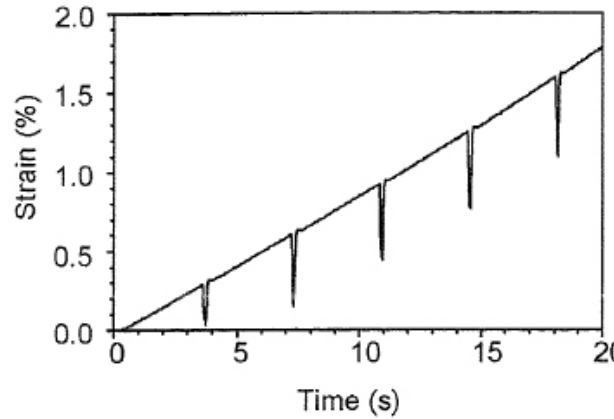


FIGURE 2.17 – Chargement appliqué lors des essais de rétro-diffusion (Géhan et Schirrer 1999).

La figure 2.18 présente le dispositif expérimental.

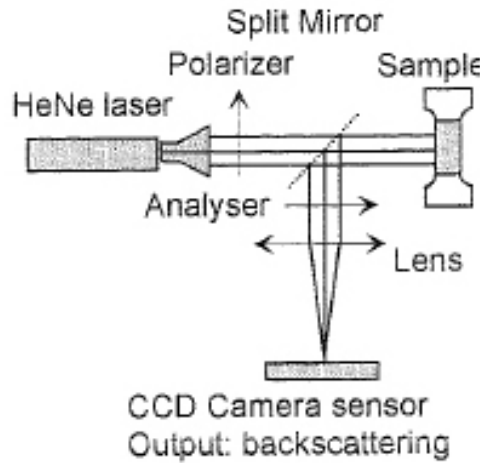


FIGURE 2.18 – Système optique pour la rétro-diffusion cohérente (Géhan et Schirrer 1999).

2.2.2.2.2 Propriétés optiques au cours des déchargements Les expériences donnent des valeurs de L_m (transmission) et L^* (rétro-diffusion) comme fonction de l'augmentation du volume macroscopique. Dans les cas des diffuseurs de Rayleigh, les équations peuvent être résolues analytiquement mais, dans le cas des particules endommagées homogénéisées décrites par la théorie de Mie, une méthode numérique est requise.

Cavité unique dans une particule (Cas de Rayleigh) A chaque étape de l'endommagement, la section de diffusion s'exprime comme suit :

$$s_d = K v_f^2 v_0^2 (1 - v_f)^2 \quad (2.12)$$

où $K = f(n_0, \lambda_0)$ est une constante optique telle que

$$K = \frac{3}{2\pi} \left(\frac{2\pi n_0}{\lambda_0} \right)^4 \left(\frac{1}{n_0^2} - 1 \right)^2 \left(\frac{1}{n_0^2} + 2 \right)^{-2} \quad (2.13)$$

Etant donné qu'il s'agit du cas de Rayleigh, de nouvelles simplifications sont possibles. En effet, $\langle \cos(\Theta) \rangle = 1$ et $L = L^* = 1/\rho\sigma$. De ce fait, le nombre de diffuseurs par unité de volume devient une fonction de L_m et se définit ainsi :

$$\rho = \frac{(1 - v_f)^2}{Kv_f^2v_0^2L_m} \quad (2.14)$$

Pour de simples raisons géométriques, la fraction de vide est donnée par :

$$v_f = \frac{1}{1 + \rho v_0 \left(1 + \left[\frac{\Delta V}{V}\right]^{-1}\right)} \quad (2.15)$$

Un système à deux équations pour trois inconnues est obtenu : $[\Delta V/V]_v$, v_f et ρ . Ces inconnues ne peuvent être séparées au moyen des valeurs obtenues expérimentalement de L^* car le volume de vide $[\Delta V/V]_v$ ne peut pas être déduit par la variation de volume totale mesurée $\Delta V/V$ incluant la part élastique. En effet, le volume de vide peut être simplement estimé en soustrayant à la variation de volume totale une part élastique hypothétique calculée en se basant sur le coefficient de poisson ν et le module élastique E .

$$\left[\frac{\Delta V}{V}\right]_v = \left[\frac{\Delta V}{V}\right] - \frac{\sigma_x(1 - 2\nu)}{E} \quad (2.16)$$

avec σ_x la contrainte selon la direction de traction.

Malheureusement, il se peut que la fraction de vide, en début d'endommagement, soit extrêmement faible telle que $[\Delta V/V]_v \ll [\Delta V/V]$ et ainsi que le coefficient de Poisson varie de 0.33 à 0.4 en fonction de la température ou de la vitesse de déformation. Cela n'est pas sans conséquence car de trop grandes approximations entraîneraient des résultats incertains puisque que le coefficient de Poisson intervient directement dans la détermination de $[\Delta V/V]_v$ comme le montre l'équation 2.16.

Au cours des décharges imposées à grande vitesse de déformation, les cavités se réduisent probablement légèrement mais leur nombre ne diminue pas. Quant à la part élastique de la variation de volume, celle-ci disparaît à chargement nul, le coefficient de Poisson étant voisin de 0.35 dans le cas du PMMA. La variation de volume due à la cavitation $[\Delta V/V]$ est alors connue et la grande vitesse de déformation lors de la décharge annule tout effet de relaxation. Expérimentalement, il n'est pas possible d'atteindre une charge nulle afin d'éviter d'endommager la microstructure à cause de la compression locale en bordure des cavités ; le chargement nul est alors obtenu par extrapolation comme présenté sur la figure 2.19.

A chargement nul, les équations précédentes (2.14, 2.15) deviennent :

$$\rho = \frac{(1 - v_{f0})^2}{Kv_{f0}^2v_0^2L_0} \quad (2.17)$$

et

$$v_{f0} = \frac{1}{1 + \rho v_0 \left(1 + \left[\frac{\Delta V}{V}\right]_0^{-1}\right)} \quad (2.18)$$

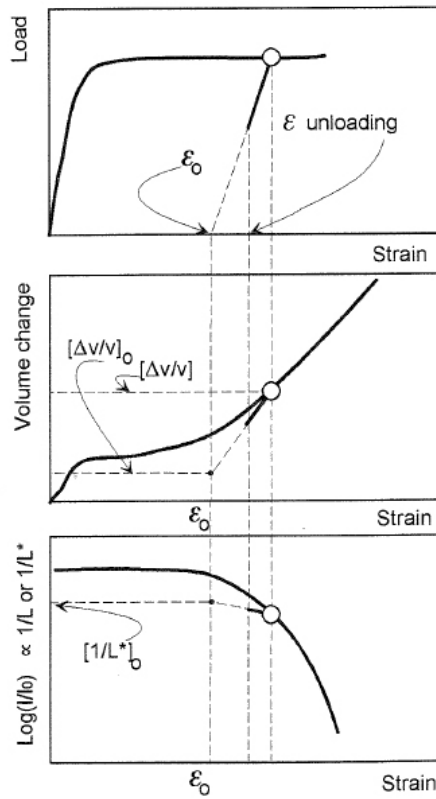


FIGURE 2.19 – Schémas de la courbe de traction, de la variation de volume et parcours optique libre moyen extrapolés pour un chargement nul (Géhart et Schirrer 1999).

Il ne reste alors que deux inconnues déterminées à partir des résultats expérimentaux :

$$\rho = \frac{KL}{\left(1 + \left[\frac{\Delta V}{V}\right]_0^{-1}\right)^2} \quad (2.19)$$

et

$$v_{f0} = \frac{1 + \left[\frac{\Delta V}{V}\right]_0^{-1}}{1 + \left[\frac{\Delta V}{V}\right]_0^{-1} + KLv_0} \quad (2.20)$$

Cavité homogénéisée dans une particule (Cas de Mie) Dans ce cas, Géhart et Schirrer (1999) montre que le nombre de particules endommagées par unité de volume s'écrit comme suit :

$$\rho = \frac{1 - v_{f0}}{v_{f0}v_0 \left(1 + \left[\frac{\Delta V}{V}\right]_0^{-1}\right)} \quad (2.21)$$

Les auteurs font intervenir une section de diffusion calculée expérimentalement nommée s_{ex} ($\Delta V/V$ et L étant mesurables) qui est une fonction de v_{f0} et une section de diffusion théorique notée s_{th} basée sur la théorie de Mie (van de Hulst 1957) qui est également une fonction de v_{f0} .

$$s_{ex} = \frac{v_{f0}v_0 \left(1 + \left[\frac{\Delta V}{V}\right]_0^{-1}\right)}{L_m (1 - v_{f0})} \quad (2.22)$$

avec $L_m = L^* \langle (1 - \cos(\Theta)) \rangle$.

$$s_{th} = \frac{\lambda^2}{2\pi} \sum_{n=1}^{\infty} (2n+1) (|a_n|^2 + |b_n|^2) \quad (2.23)$$

où a_n et b_n sont les fonctions de Ricatti-Bessel.

Les valeurs de v_{f0} et ρ sont obtenues à l'intersection des courbes de s_{ex} et s_{th} tracées comme des fonctions de v_{f0} .

2.2.3 Modélisation de l'endommagement par cavitation

Les premières solutions concernant la prise en compte d'un taux initial de porosités dans les matériaux métalliques datent de la fin des années 1960 avec les travaux de [Mcclintock \(1968a\)](#) ou [Rice et Tracey \(1969\)](#). [Mcclintock \(1968a\)](#) étudie la croissance d'une cavité cylindrique dans un milieu infini quand [Rice et Tracey \(1969\)](#) travaillent sur la croissance d'une cavité sphérique également dans un milieu infini. En dépit de cette différence, ils ont abouti à un résultat similaire : la croissance d'une cavité dans une matrice infinie parfaitement plastique présente une forte sensibilité à la contrainte hydrostatique.

Suite à ces travaux, [Gurson \(1977\)](#) propose un nouveau modèle présentant des cavités sphériques dans une matrice rigide parfaitement plastique. Ce modèle fait intervenir une variable d'endommagement notée f qui correspond à la fraction volumique de vides dans le matériau. Le modèle de Gurson a été établi sous plusieurs hypothèses : un comportement rigide parfaitement plastique et des cavités qui se déforment de manière sphérique. Ce modèle, développé à l'origine pour les matériaux métalliques, a été et est encore énormément utilisé. Cependant il n'est en général pas utilisé sous cette forme originelle. En effet, ce modèle a fait l'objet de nombreux travaux : extension du modèle à l'écrouissage cinématique ([Mear et Hutchinson 1985](#), [Leblond et al. 1995](#), [Besson et Guillemer-Neel 2003](#)), à la rupture par cisaillement ([Nahshon et Hutchinson 2007](#)); [Hao et Brocks \(1997\)](#) ajoutent deux paramètres pour prendre en compte : les effets de vitesse et de température, la distance moyenne entre la cavités et l'inertie du matériau. Cette liste est non exhaustive et nous nous intéresserons, au cours du chapitre 8, en particulier aux travaux de [Tvergaard \(1981; 1982\)](#) qui a introduit une nouvelle variable q afin de prendre en compte l'interaction des cavités.

Remarque 2.2 *Dans les matériaux métalliques, la part élastique de la déformation est négligeable devant la part plastique, or ceci n'est vrai pour les matériaux polymères pour lesquels les parts élastique et plastique sont du même ordre de grandeur.*

L'adaptabilité de ces modèles aux matériaux polymères ne peut être considérée comme une simple étape. En effet, les polymères sont connus pour faire l'objet de déformations importantes et pour avoir un taux initial de porosités supérieur à celui actant dans les métaux. D'autres bémols concernent la sphéricité des cavités ou encore l'isotropie des déformations. Enfin une différence comportementale existe entre les matériaux métalliques et polymères : les polymères subissent un adoucissement juste

après l'écoulement avant le phénomène de renforcement quand ce renforcement intervient immédiatement avec l'écoulement pour les métaux (Bowden 1973).

2.2.3.1 Le modèle de Rousselier

Le modèle proposé par Gurson (1977) est un modèle micromécanique basé sur des calculs de cellule matrice-cavité. Il a ensuite été phénoménologiquement étendu par Tvergaard et Needleman (1984) pour mieux rendre compte de la ductilité des matériaux. Rousselier (Rousselier 1987; 2001) propose une approche basée sur la mécanique de l'endommagement et la thermodynamique; son modèle est considéré comme la continuité des études effectuées par Lemaître et Chaboche (1985). Initialement développé pour caractériser la rupture ductile des matériaux métalliques, il a donné d'excellents résultats lors des travaux de Bondil (2006) sur la modélisation du PMMA (polyméthacrylate de méthyle) renforcé choc. Des différences existent entre les deux modèles notamment selon les conditions de chargement (cisaillement pur, pression hydrostatique pure) mais tous deux correspondent à un potentiel de von Mises modifié par l'introduction d'un scalaire rendant compte de l'endommagement : la fraction volumique de vide notée f .

2.2.3.1.1 Equations générales Basé sur la thermodynamique et les dérivées des équations constitutives, le modèle de Rousselier (Rousselier 1987) introduit deux variables d'état scalaires pour décrire le matériau : la déformation plastique cumulée p et f l'endommagement qui correspond ici à la fraction volumique de cavités. Théoriquement le modèle est limité à des conditions d'isotropie en terme d'écrouissage et d'endommagement mais il peut être utilisé pour décrire un endommagement ductile anisotrope sous chargement proportionnel.

Le modèle peut être résumé par les équations suivantes :

$$\Phi = \frac{\sigma_{eq}}{\rho} - R(p) + Df\sigma_1 \exp\left(\frac{\sigma_m}{\rho\sigma_1}\right) = 0 \quad (2.24)$$

$$\frac{\underline{\underline{\sigma}}}{\rho} = \frac{\underline{\underline{E}}}{\underline{\underline{\rho}}} : (\underline{\underline{\epsilon}} - \underline{\underline{\epsilon}}^p) \quad (2.25)$$

$$\dot{\underline{\underline{\epsilon}}}_d^p = \dot{p} \frac{3\underline{\underline{\sigma}}_d}{2\underline{\underline{\sigma}}_{eq}}, \quad \dot{\underline{\underline{\epsilon}}}_m^p = \frac{1}{3} \dot{p} Df \exp\left(\frac{\sigma_m}{\rho\sigma_1}\right) \quad (2.26)$$

$$\dot{f} = 3B(1-f)\dot{\underline{\underline{\epsilon}}}_m^p = \begin{cases} \text{si } f < f_c \Rightarrow B = 1 \\ \text{si } f > f_c \Rightarrow B = 3 \end{cases} \quad (2.27)$$

où $\sigma_{eq} = (3\underline{\underline{\sigma}}_d : \underline{\underline{\sigma}}_d/2)^{1/2}$ est la contrainte équivalente de von Mises, $\underline{\underline{\sigma}}_d = \underline{\underline{\sigma}} - \sigma_m \underline{\underline{I}}$ le déviateur des contraintes, $\sigma_m = tr(\underline{\underline{\sigma}})/3$ la pression hydrostatique, $\dot{p} = (2\underline{\underline{\dot{\epsilon}}}_d^p : \underline{\underline{\dot{\epsilon}}}_d^p/3)^{1/2}$, $\underline{\underline{\dot{\epsilon}}}_m^p = \underline{\underline{\dot{\epsilon}}}_d^p + \underline{\underline{\dot{\epsilon}}}_m^p \underline{\underline{I}}$, p la déformation plastique cumulée, f la fraction volumique de cavités (f_0 la valeur initiale), $\rho = (1-f)/(1-f_0)$ la densité relative (ρ_0 est la valeur initiale et vaut $\rho_0 = 1$; si f_0 est petit, il n'est pas rare de voir ρ exprimée comme suit : $\rho = 1-f$), D , f_0 , σ_1 sont des paramètres constants et $R(p)$ correspond à la courbe contrainte vraie-déformation plastique vraie du matériau.

2.2.3.1.2 Prise en compte de la visco-plasticité Afin de satisfaire un comportement visco-plastique, il suffit de remplacer $R(p)$ par $R(p, \dot{p})$. \dot{p} est alors déduit grâce à la relation $\Phi = 0$. Par exemple (Rousselier 2001), si $R(p, \dot{p}) = R(p) + M\dot{p}^{1/m}$, alors :

$$\dot{p} = \left\langle \frac{1}{M} \left[\frac{\sigma_{eq}}{\rho} - R(p) + Df\sigma_1 \exp\left(\frac{\sigma_m}{\rho\sigma_1}\right) \right] \right\rangle \quad (2.28)$$

où $\langle x \rangle = x$ si $x \geq 0$ et $\langle x \rangle = 0$ si $x \leq 0$.

2.2.3.1.3 Extension à la germination La cinétique de la fraction volumique est donnée par la relation suivante $\dot{f} = \dot{f}_g + \dot{f}_n$ avec \dot{f}_g la vitesse de croissance exprimée comme $\dot{f}_g = 3(1 - f_g)\dot{\epsilon}_m^p$ et \dot{f}_n la vitesse de germination telle que $\dot{f}_n = A\dot{p}$. \dot{f}_n peut également être exprimée selon la contrainte σ (Tanguy 2001).

2.2.3.2 Le modèle de Steenbrink

Le modèle de Steenbrink (Steenbrink *et al.* 1997) concerne l'adaptation du modèle de Gurson (Gurson 1977) aux polymères vitreux renforcés par des élastomères. Steenbrink reprend les travaux initialement entrepris par Boyce *et al.* (1988) pour étudier les mécanismes de déformation. Boyce *et al.* (1988) avaient d'ailleurs poursuivi les travaux menés par Argon (1973) qui avait développé un modèle micromécanique incorporant l'effet de la vitesse de déformation sur la résistance des chaînes et associé le rhéodurcissement à une résistance entropique face à l'alignement des molécules de polymères. Boyce (Boyce *et al.* 1988) ajoute à ce modèle les effets de température, de vitesse, de pression, d'adoucissement et de rhéodurcissement.

Steenbrink (Steenbrink *et al.* 1997) s'intéresse à des polymères vitreux renforcés. Cependant la cavitation s'opérant au niveau des renforts permet de les considérer comme des polymères vitreux poreux. Ainsi ces travaux se focalisent sur des cellules élémentaires. Il s'agit de cellule axisymétrique de volume 1 comprenant une cavité comme décrit figure 2.20. Cette cavité possède un rayon a_0 déterminé en fonction de la fraction volumique f_0 que l'on souhaite considérer. La fraction volumique de cavités se définit comme :

$$f_0 = \frac{2}{3} \frac{a_0^3}{(b_0^2 h_0)} \quad (2.29)$$

avec h_0 la hauteur de la cellule et b_0 son diamètre.

2.2.3.2.1 Le modèle de Boyce modifié par Wu et van der Giessen Les calculs cellulaires effectués par Steenbrink *et al.* (1997) sont, dans un premier temps, réalisés en utilisant le modèle de Boyce (Boyce *et al.* 1988) modifié par Wu et van der Giessen (1994; 1995a;b). Sous l'hypothèse de conditions isothermes et de petites déformations élastiques, le modèle se base sur la décomposition de la vitesse de déformation $\underline{\underline{\dot{\epsilon}}}$ en une partie élastique $\underline{\underline{\dot{\epsilon}}^e}$ et une partie plastique $\underline{\underline{\dot{\epsilon}}^p}$:

$$\underline{\underline{\dot{\epsilon}}} = \underline{\underline{\dot{\epsilon}}^e} + \underline{\underline{\dot{\epsilon}}^p} \quad (2.30)$$

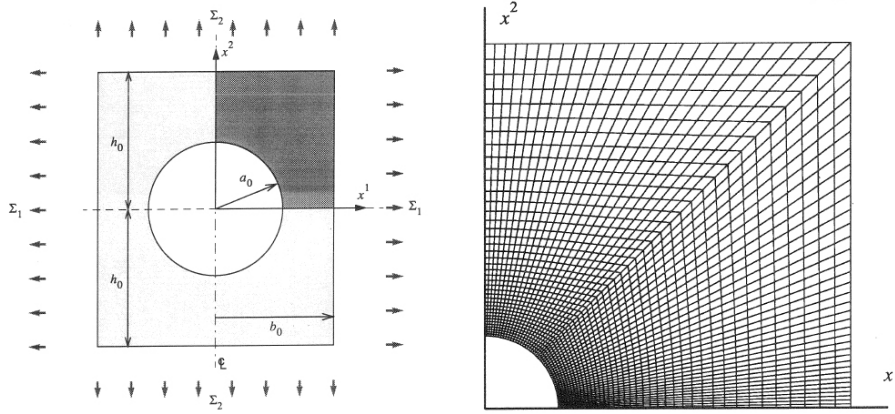


FIGURE 2.20 – A gauche : configuration initiale de la cellule axisymétrique - A droite : maillage de la cellule dans le cas $a_0/b_0 = 0.2$ (Steenbrink et al. 1997).

La partie élastique est décrite par une loi isotrope hypoélastique :

$$\underline{\underline{\dot{\epsilon}}}^e = \mathcal{L}_e^{-1} \underline{\underline{\nabla}} \underline{\underline{\sigma}} \quad (2.31)$$

où $\underline{\underline{\nabla}}$ est exprimé par les dérivés de Jaumann. \mathcal{L}_e tenseur standard d'ordre quatre des modules élastiques s'écrit :

$$\mathcal{L}_{ijkl} = \frac{E}{2(1+\nu)} \left[(\gamma_{ik}\gamma_{jl} + \gamma_{il}\gamma_{jk}) + \frac{2\nu}{1-2\nu} \gamma_{ij}\gamma_{kl} \right] \quad (2.32)$$

avec E le module de Young et ν le coefficient de Poisson.

Le taux de déformation plastique est donné par l'équation de viscoplasticité telle que :

$$\underline{\underline{\dot{\epsilon}}}^p = \frac{\dot{\gamma}_{eq}^p}{\sqrt{2}\tau_{eq}} \underline{\underline{\bar{\sigma}}}_d \quad (2.33)$$

avec τ_{eq} la contrainte de cisaillement équivalente définie comme suit :

$$\tau_{eq} = \sqrt{\frac{1}{2} \underline{\underline{\bar{\sigma}}}_d \underline{\underline{\bar{\sigma}}}_d} \quad (2.34)$$

avec $\underline{\underline{\bar{\sigma}}}_d$ la partie déviatorique du tenseur des contraintes telle que $\underline{\underline{\bar{\sigma}}} = \underline{\underline{\sigma}} - \underline{\underline{b}}$ où $\underline{\underline{b}}$ est la contrainte interne due au rhéodurcissement des fibrilles. Le taux de cisaillement plastique noté $\dot{\gamma}^p$ de l'équation 2.33 est celui défini par Argon (1973) :

$$\dot{\gamma}_{eq}^p = \dot{\gamma}_0 \left[-\frac{As_0}{T} \left(1 - \left(\frac{\tau_{eq}}{s_0} \right)^{5/6} \right) \right] \quad (2.35)$$

où $\dot{\gamma}_0$ et A sont des paramètres matériaux, T la température absolue et s_0 la contrainte de cisaillement. Pour prendre en compte l'effet de la pression p sur l'écoulement plastique dans les polymères vitreux, s_0 de l'équation 2.35 peut être remplacé par $s_0 + \alpha p$. De plus l'effet de l'adoucissement des déformations est intégré en utilisant un cisaillement plastique dépendant du cisaillement s et non de s_0 gouverné par :

$$\dot{s} = h(1 - s/s_{ss}) \dot{\gamma}^p \quad (2.36)$$

s_{ss} est la valeur de saturation et h un paramètre matériau. Enfin la dissipation plastique par unité de volume est donnée par :

$$\underline{\underline{\sigma}}_d \cdot \underline{\underline{\dot{\epsilon}}}^p = \sqrt{2} \tau_{eq} \dot{\gamma}_{eq}^p \quad (2.37)$$

Les dimensions des cellules sont telles que $h_0 = b_0$ comme il est possible de le constater sur la figure 2.20. Steenbrink *et al.* (1997) s'intéresse à l'influence du taux de triaxialité Σ_m/Σ_e et à la fraction volumique f_0 . Deux fractions volumiques sont prises en compte afin de déceler l'effet des interactions entre les cavités. Généralement les polymères renforcés sont dotés d'une fraction volumique de caoutchouc avoisinant les 30% or toutes les particules ne cavitent en général pas (Bucknall 1977). Ainsi une fraction volumique maximale f_0 de 0.083 est considérée.

En 1933, Goodier (1933) a montré que dans la cas d'une cavité placée dans un milieu élastique infini, la valeur maximale de la contrainte de cisaillement effective $\tau_{eq} = \sqrt{\frac{1}{2} \underline{\underline{\sigma}}_d \cdot \underline{\underline{\sigma}}_d}$ se situe à l'équateur de la cavité (ici $x^1 = a_0$) et cela quel que soit le taux de triaxialité Σ_m/Σ_e si tant est que $\Sigma_2 > 0$, avec Σ_2 la contrainte dans la direction 2 (figure 2.20). Steenbrink constate également ce résultat quelles que soient les triaxialités étudiées. Cependant il montre qu'aux faibles triaxialités ($\Sigma_m/\Sigma_e = 1/3$), la zone plastique se propage rapidement selon une bande de cisaillement séparée d'un angle de 45 degrés de l'équateur de la cavité. Cela a comme conséquence une ovalisation de la cavité dans la direction de traction (figure 2.22a) et une faible augmentation de volume qui croît de manière linéaire (figures 2.21b et 2.21c).

A une triaxialité plus importante ($\Sigma_m/\Sigma_e = 1$), la zone plastique apparue à l'équateur se propage également selon une bande de cisaillement inclinée à 45 degrés. Cependant, dès qu'elle s'est propagée à travers le ligament, une seconde bande de cisaillement apparaît au niveau de l'équateur. Cette seconde bande de cisaillement se propage suivant une orientation de -30 degrés (figure 2.22b). Au même instant ($\epsilon = 0.08$), il est possible de constater sur la figure 2.21a la chute de la contrainte macroscopique et sur la figure 2.21b l'accélération de la variation de volume. Seule la seconde bande de cisaillement reste active et ainsi entraîne la croissance de la cavité par "protubérance" (figure 2.22b).

La triaxialité la plus importante considérée par Steenbrink *et al.* (1997) est telle que $\Sigma_m/\Sigma_e = 3$. Pour ce taux de triaxialité, il n'y a pas de bande inclinée de cisaillement car la zone plastique se propage le long du ligament. La cavité croît alors en dessous de la zone plastique (figure 2.22c).

Il apparaît donc que les bandes de cisaillement se développent aux abords de la cavité et se propagent ensuite, non seulement dans la direction principale de sollicitation mais aussi, dans la direction de la normale au chargement. Ainsi il semble pertinent de considérer que l'interaction entre les cavités influera sur le taux de cisaillement.

2.2.3.2.2 Le modèle de Gurson modifié par Becker et Needleman La seconde partie de l'étude réalisée par Steenbrink *et al.* (1997) consiste à comparer le modèle cellulaire décrit précédemment avec le modèle de Gurson. Il ne s'agit pas du modèle initial proposé par Gurson (Gurson 1977) mais du

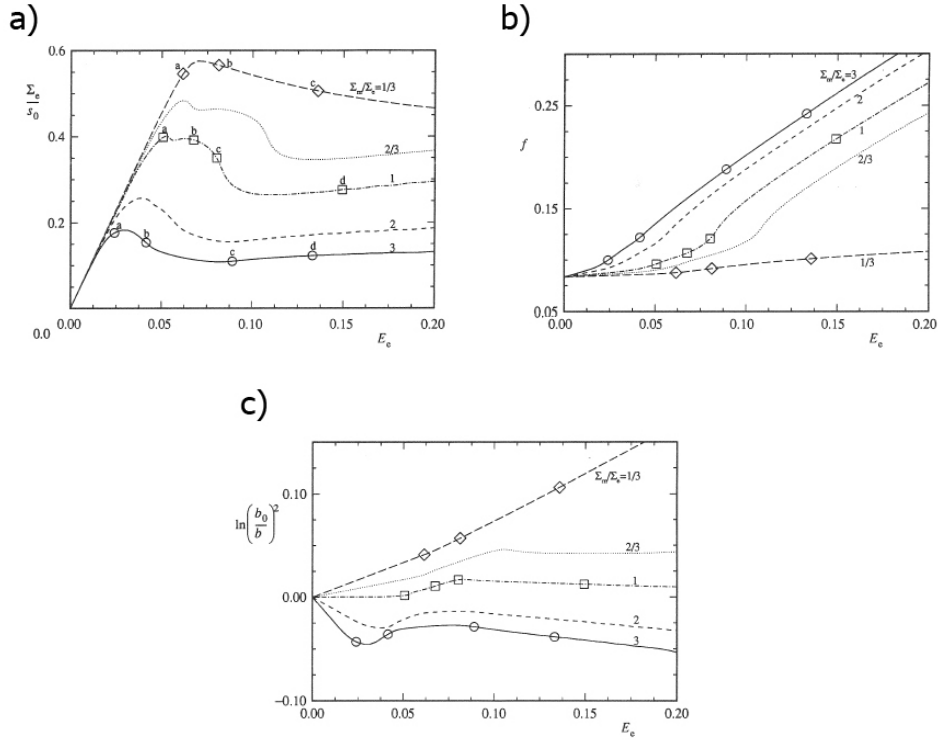


FIGURE 2.21 – Courbes de résultats pour différentes triaxialités Σ_m/Σ_e pour $h/s_0 = 5.15$ et $f_0 = 0.083$ en fonction de la déformation effective (Steenbrink et al. 1997) : a) Contrainte macroscopique effective ; b) variation de la fraction volumique des cavités ; c) évolution de la déformation surfacique.

modèle modifié par Tvergaard (1981; 1982) pour prendre en compte l'interaction entre les cavités associé à l'écroutissage cinématique développé par Mear et Hutchinson (1985) et la formulation viscoplastique introduit par Becker et Needleman (1986). En accord avec Becker et Needleman (1986), le potentiel Φ est décrit comme

$$\Phi = \frac{1}{2} \frac{\bar{\underline{\underline{\sigma}}}}{\tau_{eq}^2} d \cdot \bar{\underline{\underline{\sigma}}}}{d} + 2q_1 f \cosh \left(\frac{\sqrt{3}}{2} q_2 \frac{\sigma_m}{\tau_{eq}} \right) - \left[1 + (q_1 f)^2 \right] = 0 \quad (2.38)$$

où f est la fraction volumique, q_1 et q_2 les paramètres introduits par Tvergaard (1981; 1982) et $\sigma_m = \frac{1}{3} tr(\sigma)$. Il est à noter que le potentiel est formulé en terme de contrainte équivalente effective de cisaillement à la place de la contrainte équivalente de von Mises. Selon Becker et Needleman (1986), le taux de déformation plastique suit la règle de normalité suivante :

$$\underline{\underline{\underline{\dot{\epsilon}}}}^p = \hat{\lambda} \frac{\partial \Phi}{\partial \bar{\underline{\underline{\underline{\sigma}}}}} \quad (2.39)$$

$\hat{\lambda}$ est directement lié au taux de travail plastique $\bar{\underline{\underline{\underline{\sigma}}}} \cdot \underline{\underline{\underline{\dot{\epsilon}}}}^p$. En effet, ce dernier doit être égal à la dissipation au sein de la matrice soit :

$$\bar{\underline{\underline{\underline{\sigma}}}} \cdot \underline{\underline{\underline{\dot{\epsilon}}}}^p = (1 - f) \sqrt{2} \tau_{eq} \dot{\gamma}_{eq}^p \quad (2.40)$$

avec $\dot{\gamma}_{eq}^p$ une fonction de τ_{eq} selon la relation 2.35. En se basant sur l'équa-

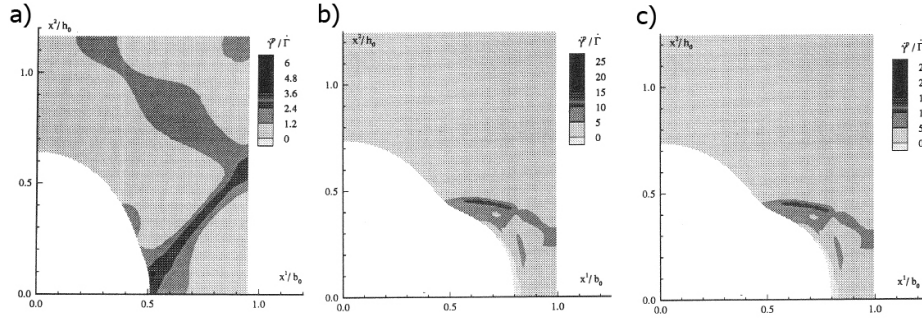


FIGURE 2.22 – Cartographies du taux de cisaillement plastique à des déformations effectives équivalentes (≈ 0.14) pour trois taux de triaxialité (Steenbrink et al. 1997) : a) $\Sigma_m/\Sigma_e = 1/3$; b) $\Sigma_m/\Sigma_e = 1$; c) $\Sigma_m/\Sigma_e = 3$.

tion 2.39, il vient :

$$\dot{\lambda} = (1 - f)\sqrt{2}\tau_{eq}\dot{\gamma}_{eq}^p \left(\underline{\underline{\sigma}} \cdot \frac{\partial \Phi}{\partial \underline{\underline{\sigma}}} \right)^{-1} \quad (2.41)$$

Remarque 2.3 Dans le cas d'un polymère vitreux poreux, la contrainte τ_{eq} n'est plus définie par l'équation 2.34 comme pour une matrice non poreuse mais est déterminée par la condition $\Phi = 0$ relative à l'équation 2.38. En effet, si on se place dans le cas d'un matériau non poreux, il suit $f = 0$. Il est alors trivial que l'équation 2.38 soit réduite à 2.34 et la loi d'écoulement 2.39 à 2.33.

Steenbrink et al. (1997) utilise le modèle de Gurson (Gurson 1977) modifié par Tvergaard (Tvergaard 1981; 1982) avec l'introduction des paramètres q_1 et q_2 comme présenté à travers l'équation du potentiel Φ en 2.38. Pour rappel, Gurson (1977) a développé un modèle d'une cavité sphérique placée dans un milieu infini, incompressible et parfaitement plastique. L'application de ce modèle concerne les matériaux ductiles. Or dans les métaux, la déformation élastique est négligeable devant la déformation plastique. Ainsi le modèle de Gurson ne prend pas en compte les effets de l'élasticité sur le potentiel d'écoulement. De plus, l'influence de la compressibilité élastique de la matrice engendrée par la croissance des cavités est généralement négligée pour les matériaux métalliques ductiles (Tvergaard 1981; 1982, Koplik et Needleman 1988). Dans le cas des polymères amorphes, Steenbrink démontre que les effets élastiques sont à considérer. Ainsi Steenbrink et al. (1997) proposent la modification du modèle de Gurson telle que

$$\Phi = \frac{1}{2} \frac{\underline{\underline{\sigma}} \cdot \underline{\underline{\sigma}}}{\tau_{eq}^2} + 2q_1 f \cosh \left(e \ln \left[1 + \frac{1}{e} \frac{\sqrt{3} \sigma_m}{2 \tau_{eq}} \right] \right) - [1 + (q_1 f)^2] = 0 \quad (2.42)$$

e , un paramètre correctif afin de prendre en compte l'élasticité, est défini par $e = \ln \left(\frac{\tau_{eq}}{E} \right)$.

La loi d'évolution de la fraction volumique de cavités f due à la croissance des trous est régie par 2.43.

$$\dot{f} = (1 - f) \text{tr} \underline{\underline{\dot{\epsilon}}}^p + \dot{f}^e \quad (2.43)$$

La dilatation élastique f^e est estimée par l'intermédiaire des équations de Lamé. Le taux de dilatation élastique s'exprime tel que

$$\dot{f}^e = f_0 \frac{3\dot{\sigma}_m}{4G} \quad (2.44)$$

avec $G = E/2(1 + \nu)$ le module de cisaillement élastique et $\sigma_m = \frac{1}{3}tr(\underline{\sigma})$.

Steenbrink *et al.* (1997) cherche à vérifier l'adéquation du modèle de Gurson proposé en 2.42 avec les prédictions obtenues suite aux calculs cellulaires. Son étude est décomposée en deux parties : une première approche consiste à considérer un matériau sans adoucissement ($h = 0$) et sans rhéodurcissement ($C^R = 0$); au cours de la seconde, l'adoucissement et le rhéodurcissement seront pris en compte. Comme précédemment, Steenbrink utilise deux taux de porosité et trois taux de triaxialité distincts.

Dans un état de contrainte purement hydrostatique, les prédictions du modèle Gurson avec le potentiel modifié sont en excellent accord avec celles obtenues par le calcul cellulaire et cela quelle que soit la porosité. Cependant à des triaxialités plus faibles, il apparaît que le potentiel modifié 2.42 surestime les contraintes d'écoulement (figure 2.23a). Cette différence s'explique par le fait que le modèle développé par Gurson suppose un écoulement symétrique autour de la cavité. Or, dans les calculs cellulaires, la plasticité se confine au niveau du ligament.

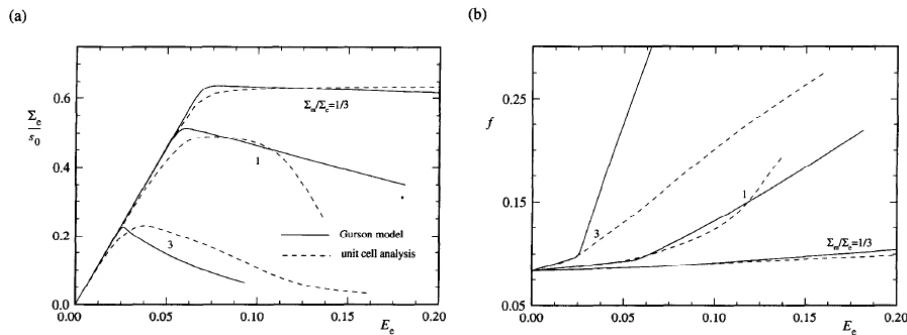


FIGURE 2.23 – Comparaisons des prédictions basées sur le modèle de Gurson modifié et les calculs de cellule pour trois taux de triaxialité Σ_m / Σ_e pour $\alpha = 0$, $h/s_0 = 0$ (absence d'adoucissement), $C^R/s_0 = 0$ (absence de rhéodurcissement) et $f_0 = 0.083$ en fonction de la déformation effective (Steenbrink *et al.* 1997) : (a) Contrainte macroscopique effective ; (b) variation de la fraction volumique des cavités.

Concernant l'approche avec adoucissement et rhéodurcissement, les courbes contrainte-déformation sont bien retranscrites par le modèle (figure 2.24a), tout comme l'évolution de la porosité pour des triaxialités allant jusqu'à 1. Par contre pour $\Sigma_m / \Sigma_e = 3$, la croissance de vides est sévèrement surestimée. Il en est de même pour l'adoucissement étant donné que celui-ci est engendré par la croissance des cavités. Cela s'explique par le fait que les cavités croissent par localisation de la zone plastique dans le ligament et non comme le modèle le prévoit par une zone plastique symétrique tout autour de la cavité.

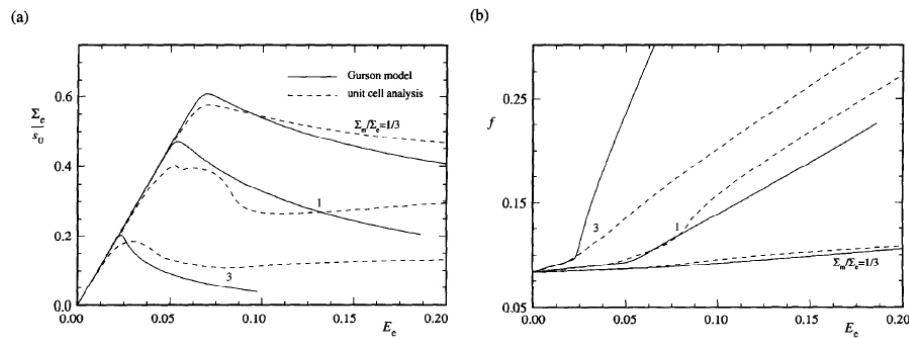


FIGURE 2.24 – Comparaisons des prédictions basées sur le modèle de Gurson modifié et les calculs de cellule pour trois taux de triaxialité Σ_m/Σ_e pour $\alpha = 0.08$, $h/s_0 = 5.15$, $C^R/s_0 = 0.059$ et $f_0 = 0.083$ en fonction de la déformation effective (Steenbrink et al. 1997) : (a) Contrainte macroscopique effective ; (b) variation de la fraction volumique des cavités.

2.2.3.3 Conclusion

Les travaux de Steenbrink *et al.* (1997) permettent de mettre en lumière la puissance du modèle de Boyce *et al.* (1988) qui arrive à rendre compte de l'essentiel des mécanismes des polymères vitreux. Steenbrink prouve également que le modèle de Gurson est une excellente approche de ces phénomènes avec cependant quelques restrictions : la surestimation de la croissance des cavités due à la symétrie de la zone plastique aux abords du trou ou encore la non prise en compte de la température. Dans l'étude concernant l'endommagement et la rupture du polyamide 11, le modèle de Gurson est utilisé mais sous la forme modifiée par Tvergaard et Needleman (Tvergaard 1981; 1982, Tvergaard et Needleman 1984) plus connu sous le nom de modèle GTN. Ce modèle sous cette forme a donné d'excellents résultats dans la modélisation du comportement, de l'endommagement et de la rupture du PVDF (Lafarge 2004).

2.3 MÉCANIQUE DE LA RUPTURE

2.3.1 Généralités

Une rupture ductile, une rupture fragile ou une combinaison des deux avec par exemple un amorçage de fissure ductile puis une propagation fragile sont autant de possibilités entraînant la ruine d'un matériau semi-cristallin. Prolégomènes à toute description de la mécanique de la rupture, il apparaît nécessaire de définir ce qu'est une "situation de rupture" fragile ou ductile afin d'éviter toute équivoque. Définir correctement et universellement le mode de rupture s'avère être difficile car de multiples définitions existent. En effet, conclure sur le mode de rupture d'un matériau dans des conditions de chargement (température, vitesse...) et de géométrie définies peut s'effectuer à travers :

- l'observation du faciès de rupture,
- la courbe force-déplacement ou force-ouverture,
- la résilience dans le cas de choc Charpy.

Le mode de rupture n'est donc pas un paramètre exclusivement matériau et dépend de la structure à travers les conditions de sollicitation. Afin de s'affranchir non seulement de la structure mais également du chargement, il suffit de s'intéresser au taux de restitution d'énergie (défini un peu plus loin section 2.3.2.2). Dès lors, si l'on considère G comme constant, nous sommes confrontés à deux possibilités :

- au dépassement du taux de restitution d'énergie critique du matériau G_c , la fissure ne progresse que si la ténacité continue d'augmenter ; alors si G est maintenu constant, la fissure s'arrête et la propagation est ductile ;
- la ténacité diminue avec l'avancée de la fissure Δa signifiant que la fissure ne peut pas s'arrêter et donc que la propagation est fragile.

La nature du type de rupture dépend de multiples paramètres qu'ils soient physico-chimiques (échelle de la chaîne macro-moléculaire), dus à des défauts ou imperfections (lors de la mise en forme) ou encore des sollicitations mécaniques (chargement triaxial, fatigue) et thermiques. Schultz (1984) a essayé de résumer les différents modes de rupture en traçant en fonction de la température et de la vitesse de déformation l'influence de différents facteurs sur le comportement du polymère (figure 2.25).

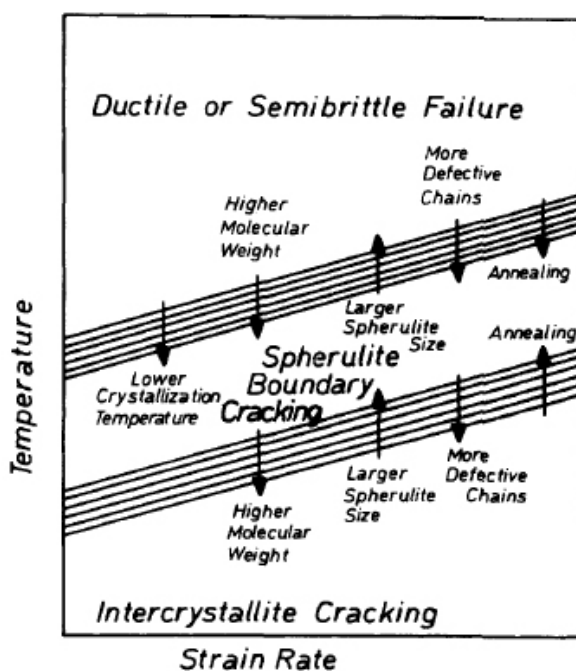


FIGURE 2.25 – Modes de rupture suivant la température et le taux de déformation (Schultz 1984).

En sommet de fissure, dans un polymère, trois types de mécanisme ont été identifiés et sont schématisés sur la figure 2.26. Il s'agit de l'endommagement, du cisaillement et de la craquelure. L'endommagement est probablement le mécanisme le plus complexe dans le sens où, à l'intérieur de cette zone de l'ordre du millimètre, se mêlent craquelures, bandes de cisaillement et décohésions.

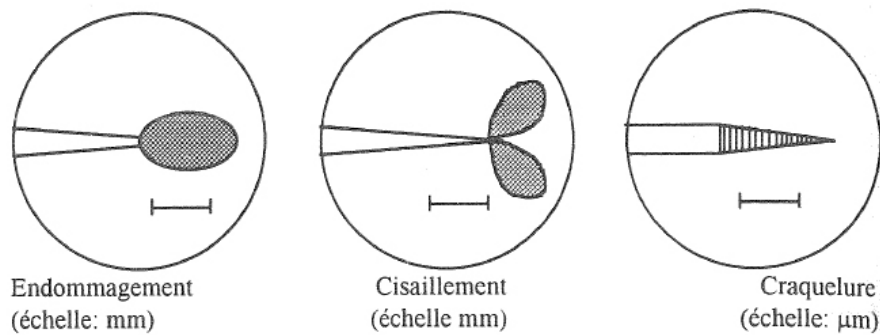


FIGURE 2.26 – Les différents types d'endommagement dans les polymères (Schirrer 1995).

2.3.2 Mécanique linéaire de la rupture

2.3.2.1 Concentration des contraintes

Il semble intuitif que la présence d'une fissure modifie localement les champs de contraintes et déformations ou encore l'énergie élastique stockée. La mécanique élastique linéaire de la rupture essaie de décrire les perturbations engendrées par une fissure par l'intermédiaire d'une approche analytique. Pour ce faire, en première approximation, le solide considéré est décrit comme un milieu élastique. Griffith (1920) fut le premier à formuler et appliquer le concept de la mécanique de la rupture. Son critère est défini dans le cas d'une plaque d'un matériau isotrope contenant une fissure elliptique de longueur $2a$ et considère l'équilibre entre l'énergie élastique stockée et l'énergie nécessaire pour produire une surface. La figure 2.27 présente les trois grands modes de chargement :

- le mode I est un mode d'ouverture ;
- le mode II est dit mode de glissement dans le plan ;
- le mode III est un mode de glissement perpendiculaire au plan.

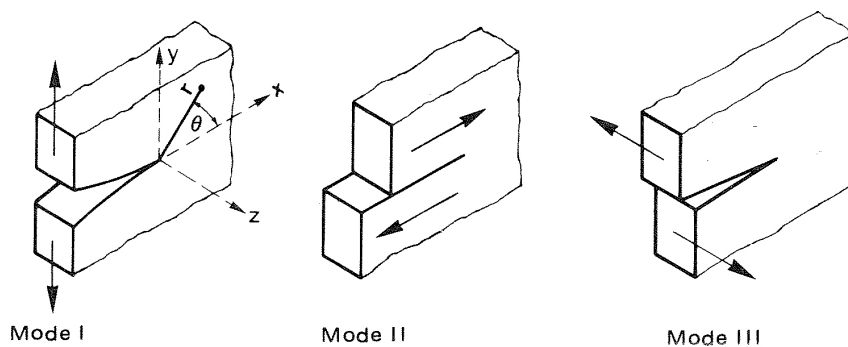


FIGURE 2.27 – Les trois modes utilisés pour contrôler la propagation d'une fissure.

Dans le cas d'une plaque mince contenant une fissure de longueur $2a$ sollicitée élastiquement en mode I (mode le plus répandu et le plus pénalisant), est considéré un état de contraintes planes soit $\sigma_{zz} = 0$ qui s'oppose à l'état de déformation plane où $\epsilon_{zz} = 0$ équivalent à $\sigma_{zz} = \nu(\sigma_{xx} + \sigma_{yy})$. Les composantes du tenseur des contraintes $\underline{\underline{\sigma}}$ se définissent

comme suit pour $r \ll a$

$$\underline{\sigma}_x = \frac{K_I}{\sqrt{2\pi r}} \cos \frac{\theta}{2} \left(1 - \sin \frac{\theta}{2} \sin \frac{3}{2}\theta \right) \quad (2.45)$$

$$\underline{\sigma}_y = \frac{K_I}{\sqrt{2\pi r}} \cos \frac{\theta}{2} \left(1 + \sin \frac{\theta}{2} \sin \frac{3}{2}\theta \right) \quad (2.46)$$

$$\underline{\sigma}_{xy} = \frac{K_I}{\sqrt{2\pi r}} \sin \frac{\theta}{2} \cos \frac{\theta}{2} \cos \frac{3}{2}\theta \quad (2.47)$$

où (r, θ) correspond aux coordonnées comme défini sur la figure 2.27 et K_I est le facteur d'intensité des contraintes en mode I prenant en compte non seulement la contrainte uniaxiale appliquée $\underline{\sigma}$ mais aussi la longueur de la fissure $2a$ (figure 2.28) :

$$K_I = \underline{\sigma}_0 \sqrt{(\pi a)} \quad (2.48)$$

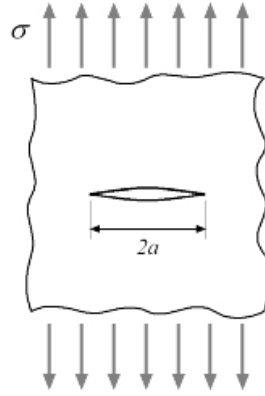


FIGURE 2.28 – Plaque contenant une fissure de longueur $2a$.

Si la plaque est épaisse alors un état de déformation plane est à considérer. Toujours en supposant $r \ll a$, la discontinuité des déplacements dans les directions x (\hat{u}) et y (\hat{v}) s'écrit

$$\hat{u} = \frac{2K_I(1+\nu)}{E} \sqrt{\frac{r}{2\pi}} \cos \frac{\theta}{2} \left(1 - 2\nu + \sin^2 \frac{\theta}{2} \right) \quad (2.49)$$

$$\hat{v} = \frac{2K_I(1+\nu)}{E} \sqrt{\frac{r}{2\pi}} \cos \frac{\theta}{2} \left(2 - 2\nu - \cos^2 \frac{\theta}{2} \right) \quad (2.50)$$

Pour $\theta = \pi$, le déplacement dans la direction y est égal à l'ouverture de la fissure (COD Crack Opening Displacement)

$$2\hat{v} = \frac{8K_I}{E} \sqrt{\frac{r}{2\pi}} (1 - \nu^2) \quad (2.51)$$

Alors que les contraintes montrent une singularité lorsque r tend vers 0, les déplacements (\hat{u}, \hat{v}) s'annulent.

2.3.2.2 Le taux de restitution d'énergie G

Griffith (1920) fut le premier à proposer une théorie fondée sur la compétition entre l'énergie élastique restituée lors de l'avancée d'une fissure et l'énergie dissipée par l'intermédiaire de la création de nouvelles surfaces. Les travaux de Griffith se portait sur le calcul d'une cavité elliptique ; la théorie a ensuite été développée. Considérant, E_p l'énergie potentielle stockée, ∂A , l'incrément de surface associée à l'avancée de la fissure, le taux de restitution d'énergie élastique, G , se définit comme

$$G = -\frac{\partial E_p}{\partial A} \quad (2.52)$$

Si on considère un système fermé d'un matériau élastique linéaire, n'échangeant pas de chaleur avec l'extérieur et constitué d'une pièce fissurée soumise à des forces, comme présenté figure 2.29. L'énergie de ce système se décompose en une énergie potentielle des forces appliquées E_u , une énergie élastique emmagasinée E_{el} , une énergie de surface $E_s = (S + 2A)\gamma_s$ avec S la surface externe et A la surface de la fissure et une énergie cinétique notée E_c . Le premier principe indique que

$$dE_u + dE_{el} + d(S + 2A)\gamma_s + dE_c = 0 \quad (2.53)$$

Si l'on considère que $dS = 0$ et que l'on pose $E_p = E_u + E_{el}$ alors l'équation 2.53 devient

$$dE_p + 2\gamma_s dA + dE_c = 0 \quad (2.54)$$

soit

$$G = 2\gamma_s + \frac{dE_c}{dA} \quad (2.55)$$

A l'équilibre, l'énergie cinétique s'annule et l'équation 2.55 devient

$$G = G_c = 2\gamma_s \quad (2.56)$$

La fissure se propage si G dépasse cette valeur seuil qu'est G_c .

2.3.2.3 Relation entre K et G

La distribution des contraintes et des déformations au voisinage d'une fissure est décrite par le facteur d'intensité des contraintes K . Il semble donc intuitif de considérer que G est sensible à la singularité des contraintes. Considérant une fissure de longueur a , avançant de Δa sollicitée en mode I dans un cas plan (figure 2.29 avec f les "forces de cohésion"), l'énergie élastique libérée lors de l'avancée est égale, en valeur absolue, au travail ΔW nécessaire pour refermer la fissure sur Δa .

Le travail total pour les deux lèvres de la fissure est égal à

$$\Delta W = B \int_0^{\Delta a} \sigma_{yy} u_y dx = G.B\Delta a \quad (2.57)$$

où B est l'épaisseur de la plaque et σ_{yy} se calcule par l'intermédiaire de l'équation 2.46 pour une fissure de longueur a , un angle $\theta = 0$ et une distance x . Au final, est obtenue la relation entre G et K :

$$G = \frac{\kappa + 1}{2\mu} \frac{K_I^2}{4} \quad (2.58)$$

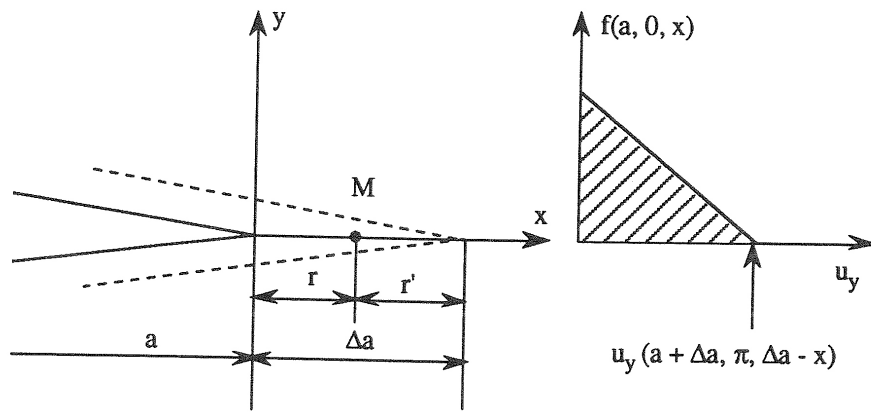


FIGURE 2.29 – Avancée et fermeture virtuelle d'une fissure (François et al. 1993).

qui en déformation plane devient

$$G = \frac{K_I^2 (1 - \nu^2)}{E} \quad (2.59)$$

et en contrainte plane

$$G = \frac{K_I^2}{E} \quad (2.60)$$

Le même type de calcul peut être effectué dans le cas des modes II et III en supposant que la fissure se propage dans son propre plan. Par rapport aux matériaux métalliques, les matériaux polymères possèdent un module de Young qui dépend fortement de la température. Ainsi, il est préférable de raisonner avec le taux de restitution d'énergie G qui fait intervenir E (équation 2.60).

2.3.2.4 Critère de rupture

K_{Ic} correspond à la valeur critique de K_I qui conduit à la rupture. K_{Ic} est également appelé la ténacité et dépend du matériau et de la géométrie. La rupture se produit lorsque :

$$K_I = K_{Ic} = \sqrt{2E\gamma_s/\kappa} \quad (2.61)$$

avec γ_s l'énergie de surface libre et

$$\kappa = \begin{cases} 1 - \nu^2 & \text{en déformation plane} \\ 1 & \text{en contrainte plane} \end{cases} \quad (2.62)$$

En injectant la relation écrite équation 2.60 à l'équation 2.62, on retrouve l'expression de G_c (équation 2.56).

2.3.2.5 Plasticité confinée

Evidemment, la solution obtenue en élasticité manque généralement de réalisme physique. Les contraintes ne sont pas infinies en pointe de fissure mais tendent vers une valeur limite comme décrit figure 2.30. De

plus, le caractère irréversible de la plasticité affecte la définition du taux de restitution d'énergie. Ainsi, afin de prendre en compte la plasticité, deux modèles sont présentés ici : les modèles d'Irwin (Irwin 1958) et Dugdale-Barenblatt (Dugdale 1960).

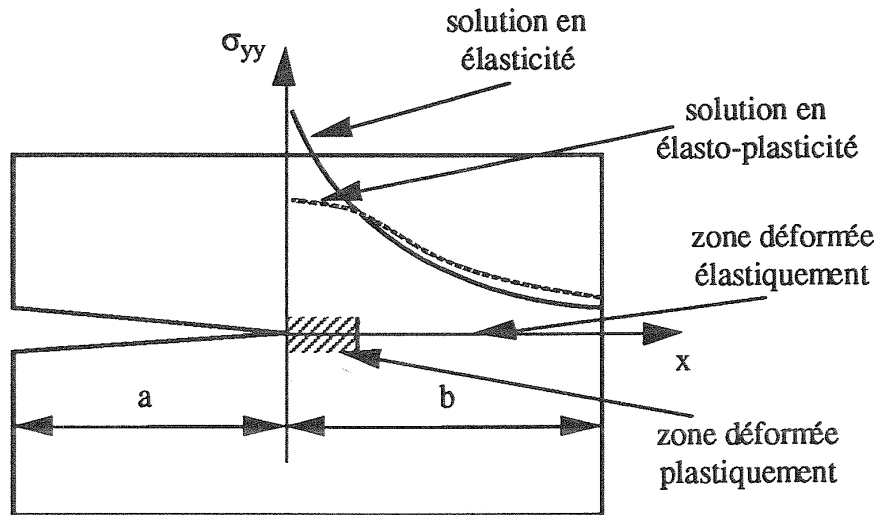


FIGURE 2.30 – Schéma de principe des contraintes en pointe de fissure en plasticité confinée (François et al. 1993).

Le modèle d'Irwin Il s'agit d'un modèle s'appliquant en contrainte plane sur un matériau parfaitement plastique obéissant au critère de Tresca c'est-à-dire $2k = R_p$, avec R_p la limite d'élasticité du matériau. Comme le montre la figure 2.31, la contrainte σ_{yy} vaut R_p dans la zone plastifiée si on fait abstraction de la part hydrostatique. A l'aide des équations déterminées en élasticité (équations 2.45, 2.46 et 2.47) et en se plaçant dans le plan $\theta = 0$, on peut définir $\sigma_{yy} = \frac{K_I}{\sqrt{2\pi r}}$. La contrainte σ_{yy} atteignant R_p à une distance $r = R_y$, on obtient au premier ordre :

$$R_y = \frac{1}{2\pi} \left(\frac{K_I}{R_p} \right)^2 \quad (2.63)$$

En réalité, afin de respecter l'équilibre des contraintes, la zone déformée plastiquement est plus étendue. Pour palier à cette réalité, on suppose la translation, d'une quantité X , de la distribution élastique de σ_{yy} se caractérisant par l'égalité des aires hachurées de la figure 2.31. Cette égalité se traduit mathématiquement comme suit

$$\int_0^{R_y} \left(\frac{K}{\sqrt{2\pi x}} - R_p \right) dx = \int_{R_y}^{R_y+X} \left(R_p - \frac{K}{\sqrt{2\pi x}} \right) dx + \int_{R_y}^{\infty} \left(\frac{K}{\sqrt{2\pi(x+X)}} - \frac{K}{\sqrt{2\pi x}} \right) dx \quad (2.64)$$

soit

$$X = \frac{1}{2\pi} \left(\frac{K_I}{R_p} \right)^2 = R_y \quad (2.65)$$

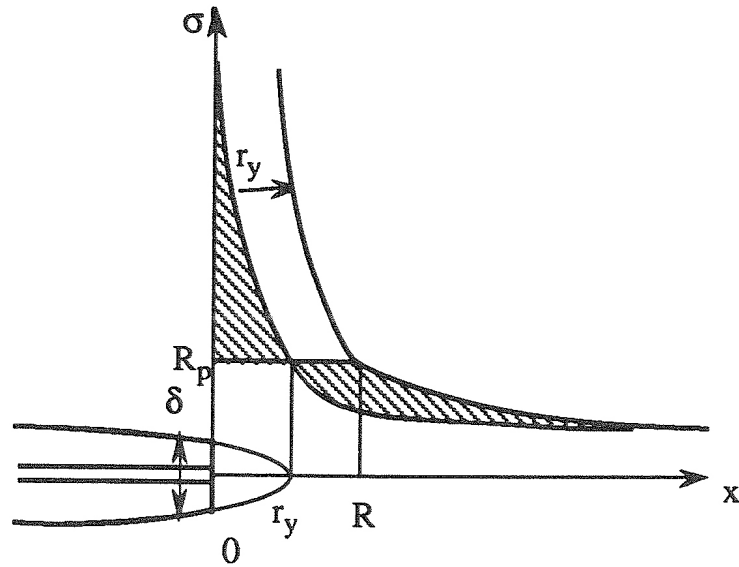


FIGURE 2.31 – Zone plastifiée en pointe de fissure par le modèle d'Irwin en contrainte plane.

La dimension de la zone plastique est alors

$$R_{ZP}^{CP} = \frac{1}{\pi} \left(\frac{K_I}{R_p} \right)^2 \quad (2.66)$$

La fissure et sa zone plastique associée se comportent donc comme une fissure élastique de longueur $a + R_y$, avec R_y la correction de la zone plastique d'Irwin. Comme le montre la figure 2.31, le front de fissure s'é mouss e à cause de la présence de la plasticité confinée en pointe de fissure. L'écartement des lèvres de la fissure δ (en anglais, Crack Tip Opening Displacement ou CTOD) se calcule de manière approchée :

$$\delta = 2u_y(\theta = \pi, r = R_y) = 2 \frac{K_I}{2\mu} \sqrt{\frac{R_y}{2\pi}} \frac{4}{1+\nu} = \frac{4}{\pi} \frac{K_I^2}{ER_p} \quad (2.67)$$

qui peut se réduire à

$$\delta \approx \frac{K_I^2}{ER_p} \quad (2.68)$$

avec E le module de Young.

Le modèle de Dugdale-Barenblatt ou de Bilby-Cottrell-Swinden
Dugdale et Barenblatt considèrent une fissure de longueur $2a$ dans une plaque infinie soumise à une contrainte uniforme à l'infini σ^∞ comme présenté figure 2.32. La plasticité est caractérisée par des efforts égaux à la limite d'élasticité du matériau sur une longueur R_D qui est la taille de la zone plastique à déterminer. Les conditions aux limites sur la fissure s'écrivent par superposition :

$$\sigma_{yy} = \begin{cases} -\sigma^\infty & \text{si } |x| \leq a \\ -\sigma^\infty + R_p & \text{si } a \leq |x| \leq a + R_D \end{cases} \quad (2.69)$$

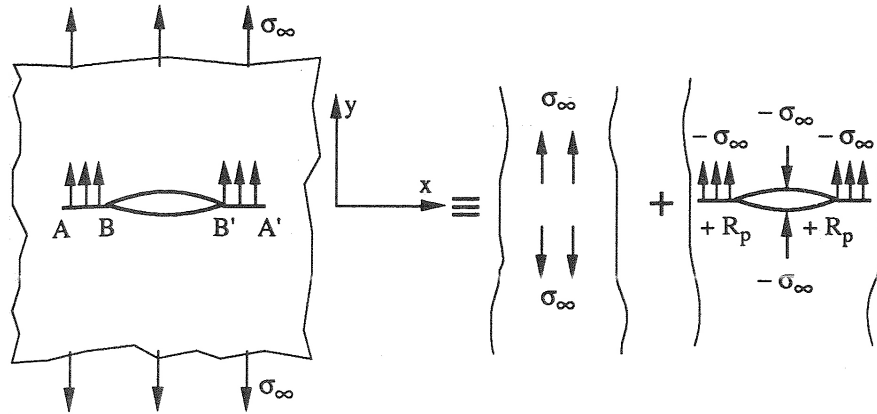


FIGURE 2.32 – Modèle de Dugdale-Barenblatt.

Par l'intermédiaire des fonctions de poids appliquées à une fissure de longueur $2(a + R_D)$ (figure 2.33), associées à la nullité du facteur d'intensité des contraintes, il est possible de déterminer R_D en fonction des paramètres a et σ^∞ . Si l'on se place dans le cas où $\sigma^\infty \ll R_p$, on obtient

$$R_D \approx \frac{\pi}{8} \left(\frac{K_I}{R_p} \right)^2 \quad (2.70)$$

expression qui est très proche de celle définie par Irwin en plasticité confinée en contrainte plane.

Le modèle de Bilby, Cottrell et Swinden suppose une distribution fictive de dislocations et présente le même résultat. Ces deux modèles permettent également de déterminer l'ouverture de la fissure qui se calcule comme suit :

$$\delta = \frac{8 R_p}{\pi E} a \ln \left[\frac{1}{\cos \left(\frac{\pi \sigma^\infty}{2 R_p} \right)} \right] \quad (2.71)$$

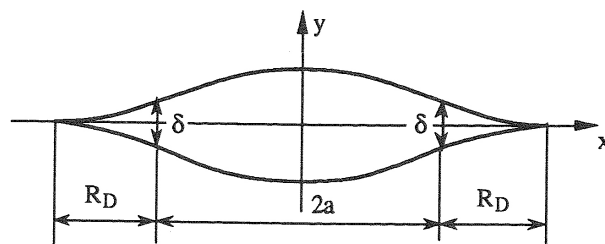


FIGURE 2.33 – Fissure ouverte dans le modèle de Dugdale-Barenblatt.

La plasticité confinée correspond à une taille de la zone plastique faible devant les autres dimensions telles que la longueur de la fissure ou la longueur de ligament. Si cette condition est vérifiée, il est dès lors possible d'appliquer la mécanique linéaire de la rupture. Dans le cas contraire, l'outil devient la mécanique non linéaire de la rupture et il s'agit de plasticité étendue.

2.3.3 Mécanique non linéaire de la rupture - Plasticité étendue

Lorsque la taille de la zone plastique n'est plus négligeable devant la longueur de la fissure, on parle de plasticité étendue. Il ne s'agit plus de la mécanique linéaire de la rupture mais de la mécanique non linéaire qui constitue une étude plus récente de la rupture. Nous n'abordons pas ici les notions de chargement limite ou de champ de Prandtl et présentons uniquement l'intégrale de contour J et le champ H.R.R..

2.3.3.1 L'intégrale de contour J

On ne considère pas un matériau parfaitement élastique mais un matériau élastique non linéaire donnant la même courbe de déformation. Ainsi, pour que cette hypothèse reste convenable, il est nécessaire de considérer un chargement radial engendrant l'absence de déchargement. Dans le cadre de l'élasticité, on peut définir le potentiel élastique :

$$\sigma_{ij} = \frac{\partial W}{\partial \epsilon_{ij}} \quad (2.72)$$

Il est alors possible, comme en élasticité linéaire, de déterminer l'énergie élastique restituée lors d'une avancée virtuelle d'une fissure. Rice et Che-rapanov montrent que la variation d'énergie est égale à la valeur d'une intégrale de contour qui est indépendante du contour d'intégration choisi (figure 2.34) et qui s'écrit

$$J = \int_{\Gamma} \left(W dy - \underline{T} \frac{\partial \underline{u}}{\partial x} ds \right) \quad (2.73)$$

où W est la densité élastique telle que $\sigma_{ij} = \partial W / \partial \epsilon_{ij}$, \underline{T} le vecteur contrainte en un point M du contour Γ avec la normale tournée vers l'extérieur et \underline{u} le vecteur déplacement au même point.

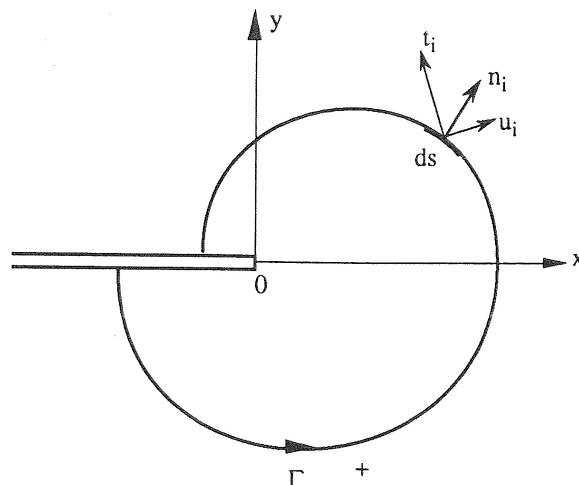


FIGURE 2.34 – Notions adoptées pour définir J .

L'intégrale de contour possède trois propriétés :

- elle ne dépend pas du contour choisi : ainsi, il est possible de relier ce qui se passe en pointe de fissure à ce qui se passe plus loin ;

- elle représente, en élasticité non linéaire, le taux de libération d'énergie pour une avancée infinitésimale de fissure c'est à dire $J = -dE_p/Bda$ avec E_p l'énergie potentielle et a la longueur de la fissure (figure 2.35). Il vient

$$J = - \int \frac{\partial E_p}{B \partial a} dv = \int \frac{\partial v}{B \partial a} dE_p \quad (2.74)$$

- elle permet de décrire les champs de contraintes et déformations.

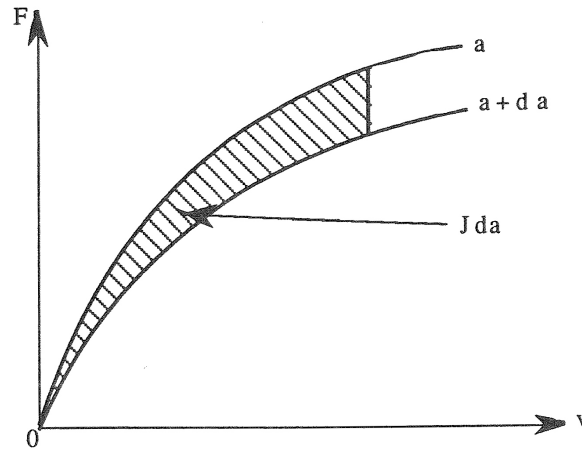


FIGURE 2.35 – Détermination de J par la méthode de la complaisance.

2.3.3.2 Le champ H.R.R.

La solution asymptotique proposée par Hutchinson, Rice et Rosengren (Hutchinson 1968, Rice et Rosengren 1968) ou H.R.R. permet de décrire la distribution des contraintes et déformations non pas au voisinage de la fissure mais plus loin de l'extrémité. Si la loi de comportement du matériau s'écrit sous la forme

$$\frac{\epsilon}{\epsilon_0} = \left(\frac{\sigma}{\sigma_0} \right)^N \quad (2.75)$$

avec σ_0 , ϵ_0 et N des constantes du matériau, alors la solution asymptotique s'écrit alors

$$\begin{aligned} \sigma_{ij} &= \sigma_0 \left(\frac{J}{\sigma_0 \epsilon_0 I_N r} \right)^{\frac{1}{N+1}} \tilde{\sigma}_{ij}(\theta, N) \\ \epsilon_{ij} &= \epsilon_0 \left(\frac{J}{\sigma_0 \epsilon_0 I_N r} \right)^{\frac{N}{N+1}} \tilde{\sigma}_{ij}(\theta, N) \end{aligned} \quad (2.76)$$

avec I_n et $\tilde{\sigma}_{ij}$ donnés par des tables.

Pour $N = 1$, c'est-à-dire en élasticité linéaire, on retrouve l'équation 2.59 en déformation plane :

$$J \equiv G = \frac{K_I^2}{E} (1 - \nu^2) \quad (2.77)$$

2.3.3.3 Déchirure ductile $J - \Delta a$

La courbe $J - \Delta a$ consiste en une courbe de résistance à la rupture. Pour certaines géométries d'éprouvettes, il est possible de déterminer J

expérimentalement. En effet, J correspond à l'aire sous la courbe $P - \delta$ où P est la charge appliquée et δ l'ouverture de la fissure. Pour ce faire, il suffit d'appliquer la relation suivante :

$$J = \frac{\eta U}{B(W-a)} \text{ avec } \eta = 2 + 0.522 \left(1 - \frac{a}{W}\right) \quad (2.78)$$

avec U l'aire sous la courbe (F, δ) , a la taille de la fissure, B l'épaisseur de l'éprouvette et W la largeur de l'éprouvette.

A la différence de la mécanique linéaire de la rupture, en MNLR, la fissuration étant stable, deux critères co-existent : un critère d'amorçage et un critère de propagation. J_{Ic} consiste en la valeur de J à l'amorçage pour une avancée de fissure Δa_c et peut être relié à K_I^{Jc} comme suit :

$$K_I^{Jc} = \sqrt{\frac{J_{Ic} E}{1 - \nu^2}} \quad (2.79)$$

Sur les mêmes éprouvettes, on peut repérer l'amorçage J_{Ic} et la propagation de la fissure et ainsi tracer la courbe $J - \Delta a$, avec Δa l'avancée de la fissure, comme présenté figure 2.36.

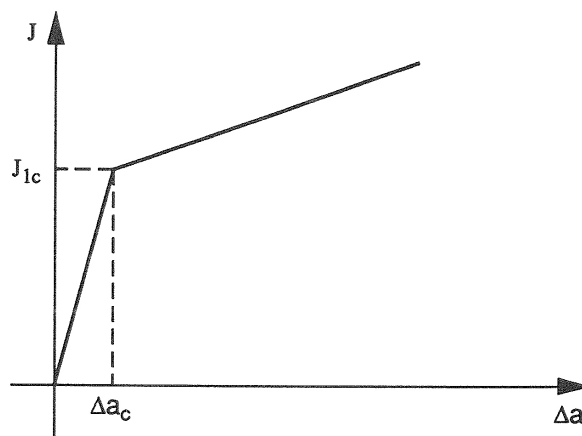


FIGURE 2.36 – Exemple d'une courbe $J - \Delta a$ (François et al. 1993).

On suppose que le champ de contraintes est bien décrit par les équations 2.76 et il est admis que l'amorçage a lieu lorsque J atteint une valeur critique, notée J_{Ic} . L'avancée de la fissure associée, $(\Delta a)_c$ correspond alors à l'émoussement de la fissure et s'écrit

$$\delta = \frac{1}{m} \frac{J}{R_p} \quad (2.80)$$

avec m une constante. En plasticité confinée, on note $m \approx 1$ en contrainte plane lorsqu'en plasticité étendue, m est une fonction de la géométrie, de la limite d'élasticité et du coefficient d'écrouissage, lui conférant généralement des valeurs comprises entre 2 et 4.

2.3.4 Rupture par craquelage

2.3.4.1 Généralité des craquelures

La propagation d'une fissure et cela quel que soit le matériau étudié (matériau métallique, polymère, céramique...) permet de restituer de

l'énergie de surface de rupture, initialement stockée sous forme élastique et sous forme d'échange de travail avec l'extérieur, en créant deux nouvelles surfaces libres. Ce processus de transformation d'énergie est un principe clé qui dépend du type de matériau, des sollicitations mécaniques ou encore de la température de l'essai.

Dans le cas des polymères, sous certaines conditions, cette conversion d'énergie qui converge en pointe de fissure, peut entraîner la naissance de craquelures microscopiques ou "crazes". Schirrer (1995) conçoit ce phénomène comme représentant une charnière entre l'aspect matériau et la mécanique de la rupture. Ainsi est définie la mécanique de la craquelure qui relie la structure de la craquelure à la mécanique du polymère. Une craquelure consiste en un volume de quelques microns constituée de vacuoles (dizaines de nanomètres) et de fibrilles qui se dressent perpendiculairement à la direction de la contrainte principale (perpendiculairement à la direction d'avancée de fissure) et qui relie les deux surfaces libres créées (cela jusqu'à élongation maximale ou atteinte d'une contrainte dite "seuil" qui entraîne la rupture de la fibrille). La craquelure possède des propriétés mécaniques particulières résumées par Schirrer (1995) :

- densité moyenne de l'ordre de 0.5 à 0.2,
- raideur de l'ordre de celle d'un élastomère,
- indice de réfraction optique plus bas,
- rapport surface/volume très élevé,
- déformation des fibrilles de plusieurs centaines de %,
- contrainte de l'ordre de la contrainte plastique macroscopique.

La figure 2.37 schématise la microstructure d'une craquelure sans fissure et nous confronte à un certain nombre de problèmes : champs de contrainte et température favorisant la naissance d'une craquelure ? mécanismes moléculaires tels que le désenchevêtrement ou la rupture de chaîne engendrant l'apparition d'une fibrille (points A et B) ? mécanismes régissant la rupture d'une fibrille (point C) ?

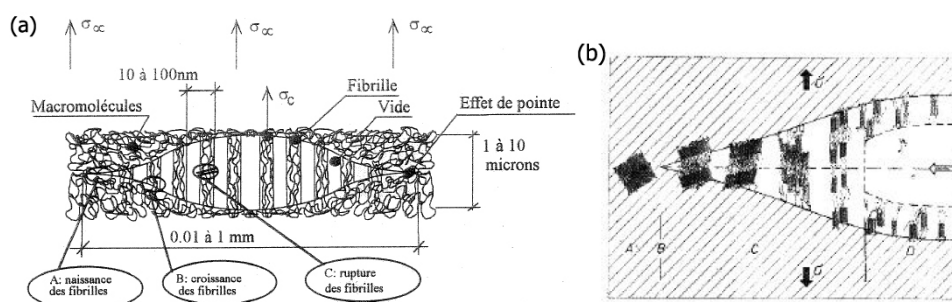


FIGURE 2.37 – Microstructure d'une craquelure : (a) sans fissure (Schirrer 1995) ; (b) avec fissure (Kausch 1976) : (A) zone déformée élastiquement ; (B) zone de germination de cavités et de fibrilles ; (C) croissance du craze par extension des fibrilles ; (D) transformation du craze en fissure.

2.3.4.2 Genèse, croissance

La genèse des craquelures est un point pour le moins controversé. Cependant la communauté scientifique s'accorde sur le fait qu'il s'agit

d'un mécanisme de cavitation dans un "liquide à seuil" favorisé par une forte contrainte hydrostatique négative (Schirrer 1995). Une impureté, une fluctuation de densité peuvent être le lieu de cette concentration de contraintes.

Concernant la croissance des fibrilles, le phénomène est bien mieux connu et deux mécanismes de croissance ont été mis en évidence. Le premier consiste en l'élongation de la fibrille qui voit ainsi son diamètre diminuer suivant un mécanisme de fluage. La rupture intervient alors par amincissement critique. Le second est une croissance par extraction de matière avec cette fois non amincissement du diamètre (celui-ci reste constant) ; l'allongement de la fibrille peut alors être infini. Il s'agit également d'un phénomène de fluage mais un fluage local qui a lieu à la zone dite active, zone précurseur de la fibrille qui joue un rôle primordial. Le mécanisme de croissance par extraction est le plus courant. Cependant la rupture de la fibrille est engendrée par le fluage supplémentaire de la fibrille (Schirrer 1995). La figure 2.38 décrit le mécanisme de croissance par extraction de matière.

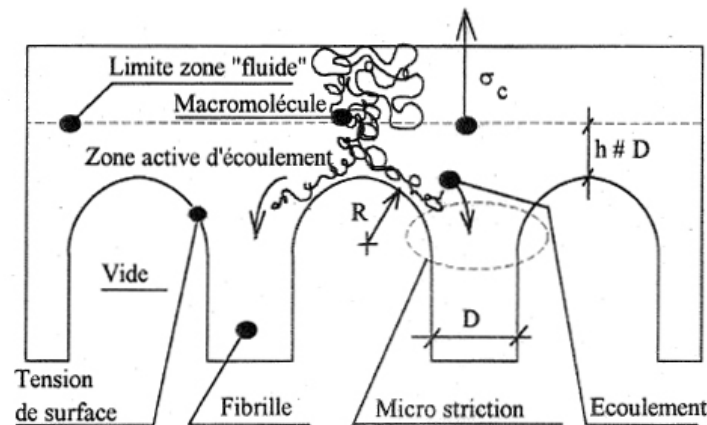


FIGURE 2.38 – Mécanisme d'extraction de matière par une fibrille qui s'allonge : les paramètres pertinents sont le seuil d'écoulement plastique σ_c , la tension de surface du polymère, le diamètre des fibrilles D et l'épaisseur h de la zone active fluide (Schirrer 1995).

Le front de la craquelure avance par un mécanisme d'instabilité de ménisque (figure 2.39). Le modèle admis est celui de deux plaques rigides formant un angle et s'écartant progressivement. A la jonction des deux plaques, le polymère se comporte comme un liquide entraînant progressivement la création de fibrilles.

Les fibrilles étant fortement orientées et étirées, on pourrait alors penser qu'un polymère envahi de milliers de fibrilles verrait sa raideur augmenter. Or le constat est tout autre et celle-ci diminue. En effet, il faut prendre en compte le fait que la fibrille a une densité relative faible (0.2 à 0.5) non sans rappeler une structure d'éponge qui travaille le plus souvent en compression.

L'apparition de craquelures n'est pas un constat de la ruine du matériau. Au contraire, l'anisotropie qu'elles engendrent, améliore ses propriétés mécaniques. Le matériau est dit ruiné lorsque les fibrilles se rompent.

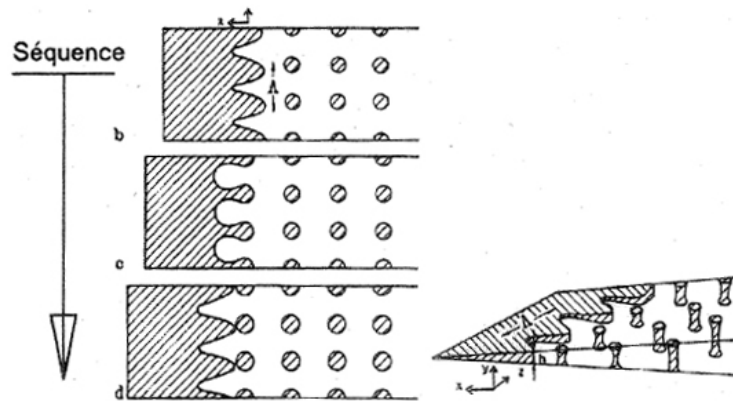


FIGURE 2.39 – Mécanisme d'instabilité de ménisque d'avancée du front de la craquelure montrant la formation de nouvelles fibrilles (Argon et Salama 1977).

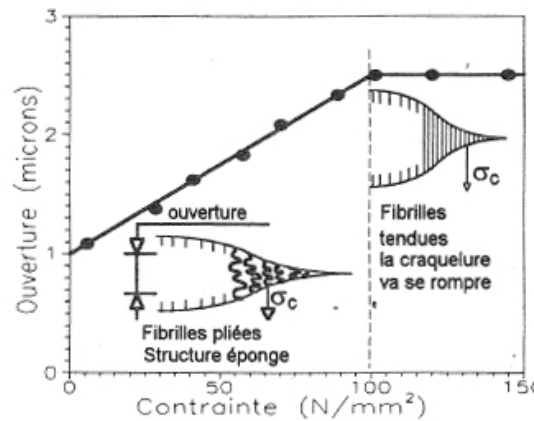


FIGURE 2.40 – Schéma d'une craquelure repliée puis étendue; courbe ouverture-contrainte mettant en valeur la raideur des fibrilles (Schirrer 1995).

Deux modes de rupture des fibrilles existent (figure 2.41) ; le mode dépend des conditions de chargement en terme de température, vitesse. . .

- Le premier est un mode de rupture aléatoire où la fibrille peut rompre à n'importe quel endroit. Il opère généralement à basse température lorsque la température se situe en dessous de la température de transition secondaire T_β :
- Le second apparaît lorsque la température est au dessus de T_β et consiste en une rupture des fibrilles au centre.

2.3.4.3 Mécanique élémentaire de la craquelure

Dugdale (1960), Barenblatt (1962) ont calculé la forme de la zone plastique en sommet de fissure dans le cas d'un matériau élasto-plastique avec un seuil de plasticité noté σ_c . Pour ce faire, les auteurs annulent la singularité du champ de contraintes décrit par K_I en superposant une contrainte de fermeture constante σ_c le long de la fissure sur une longueur R (figure 2.42). Or il s'avère qu'une craquelure a une forme similaire à cette

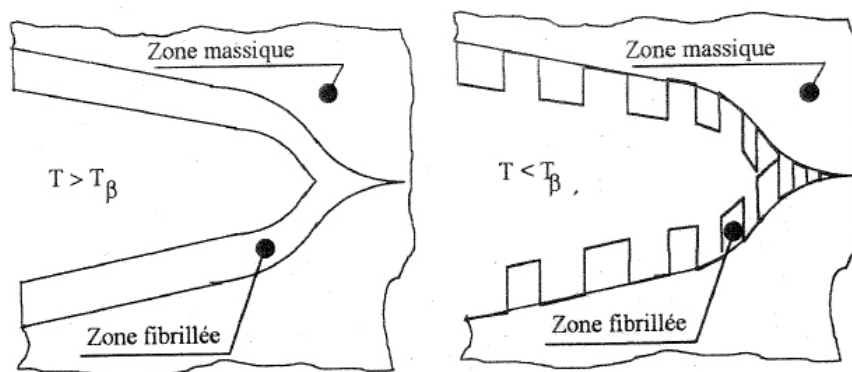


FIGURE 2.41 – Mode de rupture aléatoire et ordonnée des fibrilles de la craquelure en fonction de la température par rapport à la température de transition secondaire T_β (Schirrer 1995).

zone plastique. De par cette analogie de forme, la contrainte locale existant le long de la craquelure peut être définie constante. Cette contrainte moyenne s'écrit alors

$$\sigma_c = K_{Ic} \left(\frac{\pi}{8R} \right)^{1/2} \quad (2.81)$$

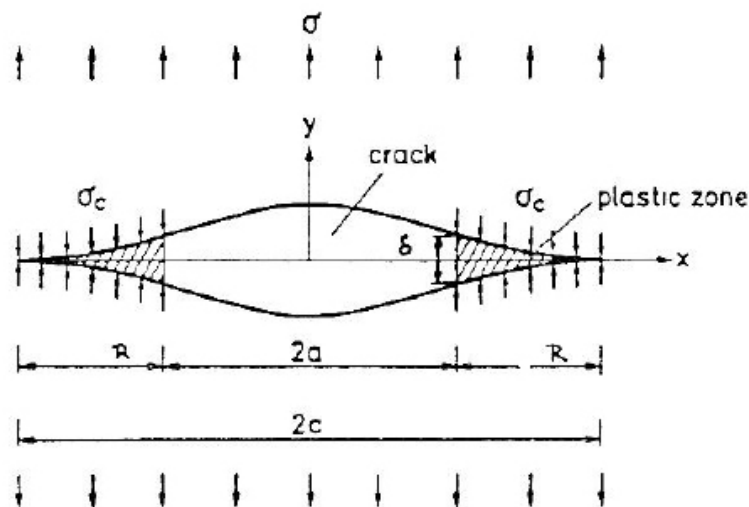


FIGURE 2.42 – Modèle de Dugdale d'une fissure en équilibre prolongée par deux zones plastiques équilibrées par des forces de refermeture (Echalier 1989).

Remarque 2.4 σ_c n'est pas la contrainte sur les fibrilles. En effet, celle-ci est plus importante étant donné que la fraction volumique de la craquelure (v_f) se situe entre 0.1 et 0.5. La contrainte subie par les fibrilles σ_f est alors $\sigma_f = \sigma_c / v_f$.

La durée de vie des fibrilles est directement associée à la résistance du matériau. Des expériences de propagation de fissure à vitesse constante, ont permis de définir une durée de vie des fibrilles $\tau_0(\sigma_c)$ soumises à une contrainte σ_c dans une craquelure se propageant à la vitesse v_c . Une fibrille

naissant par extraction de matière, la partie la plus ancienne se trouve dans le plan médian c'est-à-dire l'axe x sur la figure 2.42. Ainsi, Schirrer (1995) décrit la durée de vie d'une fibrille comme

$$\tau_0(\sigma_c) = \frac{R}{v_c} \quad (2.82)$$

En couplant les équations 2.81 et 2.82, on peut définir K_I , un paramètre bien connu dans le domaine de la rupture, à l'aide de la durée de vie d'une fibrille et de la contrainte nécessaire pour en créer une, cela évidemment en fonction de la vitesse :

$$K_I(v_c) = \sigma_c \left(\frac{8\tau_0 v_c}{\pi} \right)^{1/2} \quad (2.83)$$

Cela permet de lier la structure macromoléculaire par l'intermédiaire des paramètres τ_0 et σ_c à la résistance à la rupture macroscopique K_I .

2.3.4.4 Modélisation de la craquelure par le modèle de zone cohésive

Des simulations numériques du craquelage ont été entreprises à différentes échelles. A l'échelle moléculaire, Han *et al.* (1988) ont développé un modèle pour décrire l'effet de la vitesse de déformation sur l'énergie de surface et les mécanismes de la craquelure dans le cas de polymères à faible masse molaire. A une échelle légèrement plus importante, Sha *et al.* (1997) ont modélisé par un réseau de ressorts les fibrilles au sein d'une craquelure. Ils mettent en évidence une relation entre la largeur critique de la craquelure et la résilience avec sa microstructure et ont montré l'importance de l'enchevêtrement des fibrilles sur la durée de vie totale du craquelure. Brown (1991) a proposé un nouveau modèle dans lequel la craquelure est modélisée comme une mince couche élastique et anisotrope chargée par un déplacement uniforme à la frontière. Xiao et Curtin (1995) ont également utilisé un réseau de ressorts pour décrire le processus de craquelure. Se basant sur de simples règles, ils transforment des ressorts continus et ainsi simulent l'initiation d'une craquelure et son développement auto-consistant c'est-à-dire sans critère de séparation pour le front de propagation. Qualitativement, plusieurs observations expérimentales de croissance de craquelures ont été reproduites, telles que l'application d'une contrainte constante le long de la frontière extérieure, un élargissement simultané ainsi qu'une propagation de la craquelure. Il y a également eu des tentatives de description d'une craquelure par l'intermédiaire de surfaces cohésives (Seidelmann et Könczöl 1980).

Williams (1984) a utilisé un modèle de Dugdale modifié pour représenter une craquelure en pointe de fissure et a postulé que la craquelure se propage lorsqu'une ouverture critique de cette zone est atteinte, comme observé expérimentalement (Williams 1984, Döll 1983). Cependant cette approche a l'inconvénient de dissimuler les différentes étapes caractérisant une craquelure que sont l'initiation, la propagation et la rupture et responsables de la possible création d'une fissure. Le modèle développé par Boyce *et al.* (1988) permet une avancée significative car basé sur la déformation plastique dans les polymères vitreux (modèle développé précédemment 2.2.3.2.1). Lai et van der Giessen (1997) reprennent ce modèle

dans le but d'analyser la plasticité en pointe de fissure. [Tijssens et al. \(2000\)](#), [Estevez et al. \(2000\)](#) développent ensuite ce modèle pour décrire la craquelure par un modèle de zone cohésive et étudier les interactions entre la plasticité et le craquelage pendant la croissance de fissure. Les auteurs ont choisi de représenter la réponse mécanique d'une craquelure en utilisant le concept de zone cohésive développé par [Needleman \(1987\)](#). En se basant sur les observations expérimentales des craquelures dans les polymères vitreux menées par [Kramer \(1983\)](#), [Kramer et Berger \(1990\)](#) et schématisées figure 2.43, l'utilisation des surfaces cohésives semblent plutôt intuitive.

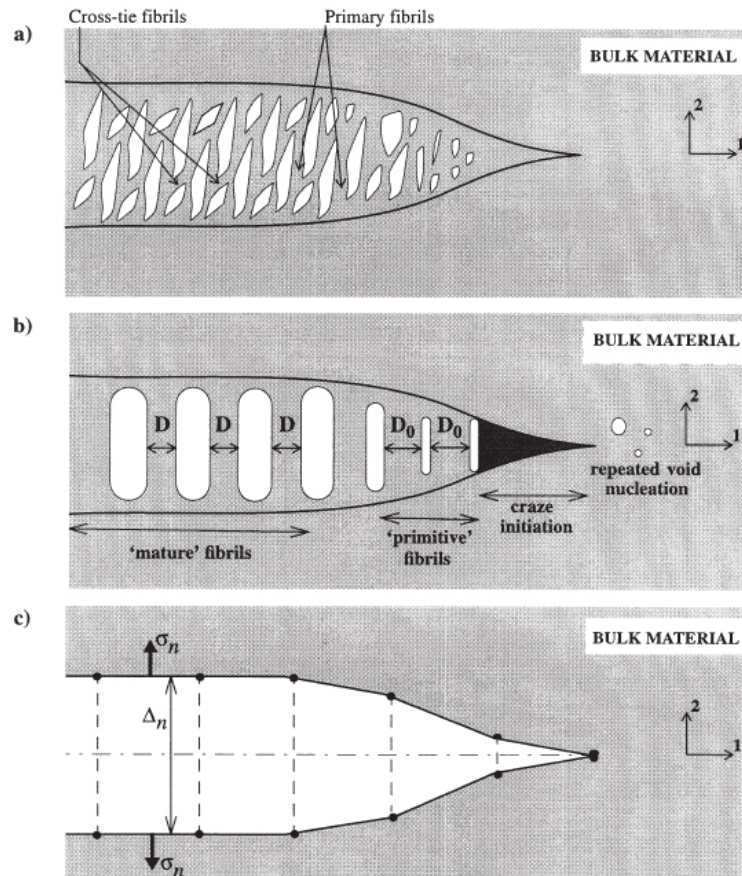


FIGURE 2.43 – a) Description d'une structure de craquelage supposée; b) description d'une craquelure idéalisée ([Kramer et Berger 1990](#)); c) description d'une craquelure par la CZM ([Estevez et al. 2000](#), [Tijssens et al. 2000](#)).

La germination de micro-cavités couplée à la plasticité localisée qu'elles engendrent peuvent mener à la création d'une structure composée de fibrilles soit une craquelure (figure 2.43b). [Estevez et al. \(2000\)](#) négligent le temps d'incubation de la craquelure et considèrent l'amorçage d'une craquelure comme un phénomène instantané. Les auteurs se basent sur le critère simple et empirique de [Sternstein et Ongchin \(1969\)](#) qui définit la naissance d'un craze dans des conditions planes comme

$$|\sigma_2 - \sigma_1| \geq -A^0 + \frac{B^0}{I_1}, I_1 > 0 \quad (2.84)$$

où $I_1 = \sigma_1 + \sigma_2$ est le premier invariant des contraintes. La direction de

la contrainte principale majeure définit la normale au plan de la craquelure. Les paramètres A^0 et B^0 sont des paramètres matériau qui dépendent de la température et définissent une valeur critique pour l'initiation d'une craquelure sous des contraintes purement hydrostatiques à travers $I_1^{cr} = B^0/A^0$. [Estevez et al. \(2000\)](#) supposent que la normale au plan de la craquelure correspond à la direction de la contrainte principale majeure soit $\sigma_n \equiv \sigma_2$ puis, dans des conditions de déformations planes, estiment la contrainte hydrostatique comme $\sigma_m = 1/2(\sigma_1 + \sigma_2)$. Le critère de Sternstein est alors reformulé comme

$$\sigma_n \geq \sigma_m - \frac{A^0}{2} + \frac{B^0}{6\sigma_m} \equiv \sigma_n^{cr}(\sigma_m) \quad (2.85)$$

σ_2 étant la contrainte principale majeure, la craquelure apparaît lorsque la contrainte normale dépasse la contrainte moyenne soit

$$\sigma_n = \sigma_2 \geq \sigma_m = 1/2(\sigma_1 + \sigma_2) \quad (2.86)$$

Le critère peut ainsi être interprété comme une contrainte normale critique indépendante de la contrainte hydrostatique. Une fois la craquelure apparue, la condition 2.85 n'est plus applicable. En effet, il est nécessaire de définir la loi d'élargissement de la craquelure. Pour ce faire, [Estevez et al. \(2000\)](#) décrivent l'élargissement de la craquelure par la loi similaire à celle définie par [Argon \(1973\)](#) (equation 2.35)

La craquelure apparaît lorsque la contrainte normale dépasse la contrainte moyenne soit

$$\dot{\Delta}_n^c = \dot{\Delta}_0 \exp \left[\frac{-A^c \sigma^c}{T} \left(1 - \frac{\sigma_n}{\sigma^c} \right) \right] \quad (2.87)$$

où $\dot{\Delta}_n^c$ représente la vitesse d'élargissement de la craquelure, $\dot{\Delta}_0$, A^c et σ^c des paramètres matériaux. [Berger \(1990\)](#), [Kramer et Berger \(1990\)](#) ont formulé une description statistique de la rupture d'une craquelure en fonction de l'élargissement qui les a conduit à postuler sur l'existence d'un élargissement critique Δ^{cr} . En première approximation, [Estevez et al. \(2000\)](#) définissent alors un élargissement critique noté $\Delta_n^{c, cr}$.

La dernière étape consiste à définir une loi de traction-ouverture. [Ivanovic et al. \(2004\)](#) se sont intéressés, dans le cas d'essais sur des éprouvettes fissurées de polyéthylène, à l'évolution de l'ouverture de fissure en fonction du chargement comme le montre la figure 2.44. Leurs travaux ont notamment permis de mettre en évidence l'influence de la température, de la vitesse et du confinement en pointe de fissure sur la propagation de fissure.

[Estevez et al. \(2000\)](#) définissent la loi d'ouverture suivante

$$\dot{\sigma}_n = k_n (\dot{\Delta}_n - \dot{\Delta}_n^c) = k_n \dot{\Delta}_n^e \quad (2.88)$$

où $(\dot{\Delta}_n - \dot{\Delta}_n^c)$ représente la contribution élastique à l'élargissement et k_n est une rigidité élastique.

La réponse à une vitesse d'ouverture constante $\dot{\Delta}_n$ est représentée figure 2.45 ; trois régimes sont identifiés :

- tant que la craquelure n'a pas été amorcée, la contrainte appliquée à la zone cohésive n'entraîne pas l'ouverture de la craquelure ;

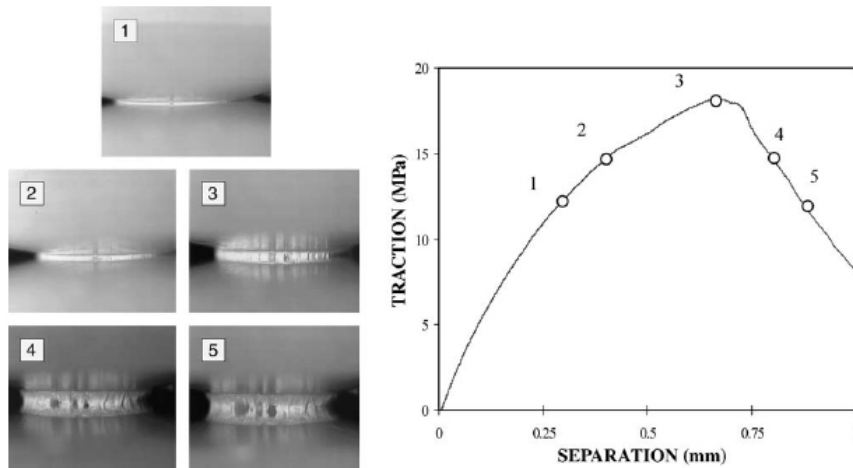


FIGURE 2.44 – Evolution de la zone endommagée pour du PE, courbe de traction-séparation (Ivankovic et al. 2004).

- suite à une courte transition, le processus de fibrillation démarre et permet une ouverture Δ_n à contrainte appliquée constante ;
- lorsque la largeur de la craquelure atteint la largeur critique Δ_n^{cr} , une fissure se forme expliquant la chute de la contrainte.

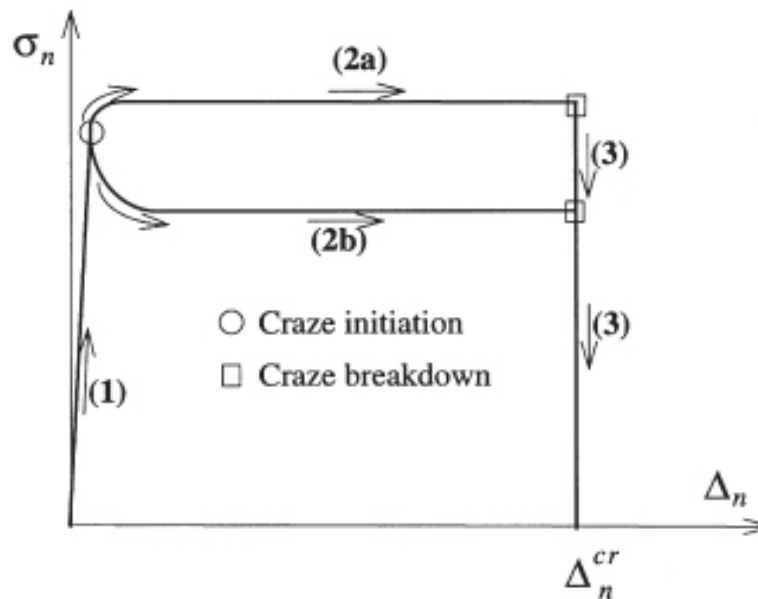


FIGURE 2.45 – Représentation schématique de la loi d'ouverture en traction des surfaces cohésives (Estevez et al. 2000) : (1) pas de craquelure ; (2) élargissement du craze - (a) réponse avec écrouissage - (b) réponse avec adoucissement - (c) rupture à $\Delta_n = \Delta_n^{cr}$ et formation d'une fissure.

Plus récemment, Basu et al. (2005) se sont intéressés aux micromécanismes de la croissance d'une craquelure dans les polymères vitreux. Les auteurs ont essayé de modéliser la croissance et la rupture d'une fibrille en partant d'une fibrille primitive. Des essais expérimentaux ont montré que des propriétés telles que la densité d'enchevêtrement d'un polymère

jouent un rôle majeur concernant le mécanisme de rupture (craquelure ou bandes de cisaillement). Les auteurs tentent ainsi d'expliquer ces constatations. Pour ce faire, ils utilisent les travaux effectués par [Tijssens et al. \(2000\)](#), [Estevez et al. \(2000\)](#) couplés à ceux de [Argon et al. \(1990\)](#) et [Boyce et al. \(1992\)](#). Leurs résultats montrent que leur approche est capable de fournir quelques explications comme par exemple la propension des craquelures dans les polymères avec une faible densité d'enchevêtrement et la linéarité entre l'élongation d'une fibrille et l'élongation maximale de la chaîne moléculaire contenue dans cette fibrille.

L'ensemble de ces travaux considère des polymères vitreux et non des polymères semi-cristallins. Les semi-cristallins présentent généralement un volume de la zone craquelée nettement supérieur à celui rencontré dans les amorphes. Cela implique des variations de volume importantes, or le modèle de la zone cohésive est un modèle bidimensionnel qui ne tient pas compte des variations de volume. Certains matériaux possèdent des porosités initiales : le PVDF ([Lafarge 2004](#)) ou encore le matériau de notre étude le polyamide 11. En effet, l'observation microscopique de faciès obtenus par cryofractographie a mis en évidence l'existence de vides initiaux correspondant à 1% du volume. La présence de cette population engendre généralement, lors des simulations numériques, la non-prise en compte de la germination pour ne prendre en compte que la croissance de ces vides initiaux. Cette approche est généralement une bonne approximation ([Lafarge 2004](#)). Nous sommes donc confrontés à un choix : faut-il effectuer une approche volumique basée sur l'endommagement par cavitation du matériau et éventuellement s'intéresser à l'amorçage d'une fissure ou considérer une approche surfacique et directement s'intéresser à la création de surfaces ? Les deux études sont intéressantes et permettent d'accéder à des informations importantes concernant le matériau. Cependant, chaque étude a ses frontières qui ne sont pas extensibles à l'infini. Par exemple, l'utilisation d'un modèle de type zone cohésive annihile l'endommagement par croissance de cavités. L'étude des craquelures, voire de la rupture, des polymères semblent liée à la mécanique non linéaire de la rupture. En effet, ceux-ci sont connus pour leur forte non linéarité s'exprimant à travers la plasticité, la viscosité ou l'endommagement et de ce fait, les outils relevant de la mécanique linéaire de la rupture deviennent des approximations parfois grossières. Cependant, la MNLR n'est pas pour autant la solution miracle, dans le sens où les polymères se rapprochent de ses limites. La détermination expérimentale de J s'avère plus compliquée pour ce type de matériaux : considère-t-on la limite d'élasticité c'est-à-dire la partie linéaire de la courbe charge-ouverture ou la charge maximale ? Une solution à ces considérations serait d'appliquer l'approche locale, par l'intermédiaire de modèles comme le modèle de [Gurson \(1977\)](#) ou [Rousse-lier \(1987\)](#) et de déterminer la valeur de J grâce à des codes aux éléments finis. Cette stratégie "approche locale puis approche globale" semble être le meilleur compromis pour étudier les mécanismes de rupture des polymères.

LES POLYMÈRES RENFORCÉS

3

SOMMAIRE

3.1	RENFORCER : POURQUOI, COMMENT ?	75
3.1.1	Contexte	75
3.1.2	Distances interparticulaires, tailles de particules et fractions volumiques...	75
3.1.3	Transition ductile-fragile	82
3.1.4	Cavitation vs décohésion à l'interface	85
3.1.5	Critères de cavitation	86
3.2	DÉFORMATION, ENDOMMAGEMENT ET RUPTURE À L'ÉCHELLE MICROSCOPIQUE, LES MÉCANISMES DU RENFORCEMENT	97
3.2.1	La théorie du recouvrement des champs de contraintes	97
3.2.2	La théorie des couches orientées	98
3.2.3	Une théorie plus récente : le modèle de Corté	103
3.2.4	Conclusion	105
3.3	MODÉLISATION MICROMÉCANIQUE DES POLYMÈRES RENFORCÉS	105
3.3.1	Quelques outils préliminaires...	105
3.3.2	Le modèle de Tzika	108
3.3.3	Le modèle de van Dommelen	114

CE chapitre a la vocation de présenter les polymères renforcés, de comprendre l'intérêt de l'ajout de renforts, d'identifier les problèmes que cela comporte en terme de comportement, d'endommagement et de rupture et d'essayer d'identifier à travers les nombreux travaux qui ont été entrepris les conditions nécessaires à un bon renforcement et enfin d'exposer des modèles éléments finis développés dans le but de modéliser de tels matériaux.

3.1 RENFORCER : POURQUOI, COMMENT ?

3.1.1 Contexte

Les PolyAmides (PA) également connus sous la dénomination nylon constituent une classe de polymères que l'on retrouve souvent dans le domaine de l'ingénierie des thermoplastiques. Introduits en 1938 sous forme de fibres afin d'être utilisés dans les textiles, leur domaine d'application s'est considérablement développé depuis. En effet, d'une part les procédés d'obtention ont évolué (injection, extrusion par exemple) d'autre part, les techniques de mise en forme tout comme la compréhension des phénomènes intervenant lors de celles-ci se sont améliorées. Ainsi ils peuvent être dorénavant trouvés sous forme de films, canalisations pour le transport de gaz, de pétrole, tuyauteries flexibles et interviennent tant au sein du domaine automobile qu'en ingénierie de structure. Les PA jouissent de nombreux avantages comme la facilité de mise en œuvre, la résistance à l'abrasion, leur faible coût qui expliquent leur popularité dans le domaine industriel. Cependant ils présentent également quelques inconvénients et non des moindres. En effet, les polyamides sont connus pour leur grande sensibilité aux contraintes triaxiales et aux effets d'entailles. Ainsi de nombreuses recherches ont été menées afin d'améliorer la résistance au taux de triaxialité des contraintes. Une technique employée consiste à ajouter une seconde phase composée de particules de caoutchouc suffisamment bien dispersées au matériau considéré. Cette loi de mélange développée par les chimistes semblent très simple voire même logique. Assurément, ajouter une seconde phase de type élastomère, donc à faible module élastique, devrait permettre une plus grande élongation du matériau et ainsi engendrer de la ductilité. Or il n'en est rien : cette technique, bien que plutôt efficace, a été mal comprise pendant de nombreuses années. Au jour d'aujourd'hui, la notion de mécanisme de renforcement est fondée sur le critère proposé par [Wu \(1985\)](#) et concerne la distance interparticulaire.

Remarque 3.1 *La ductilité d'un matériau peut prendre de nombreuses formes et selon les domaines de compétence ne pas avoir la même signification. En effet, la ductilité peut considérer une élongation importante à rupture, une énergie dépensée pour engendrer la rupture d'une éprouvette ou encore le faciès de rupture d'une éprouvette. Dans ce chapitre, la ductilité d'un matériau est liée à des essais d'impact comme les essais Charpy ou Izod (figure 3.1) et se constate en s'intéressant à la résilience (dont l'unité est le Joule par unité de surface $J.m^{-2}$).*

3.1.2 Distances interparticulaires, tailles de particules et fractions volumiques...

On ne peut évoquer le renforcement sans parler de distances interparticulaires, de tailles de particules, de fractions volumiques voire de température de transition ductile-fragile. Comment ces paramètres agissent sur le renforcement et comment interagissent-ils sont des exemples de questions auxquelles nous tentons de répondre au cours de ce chapitre. [Borggreve et al. \(1987; 1989a;b\)](#) ont étudié, dans le cas du polyamide 6 renforcé par des particules d'EPDM, l'effet de la taille et de la fraction volumique

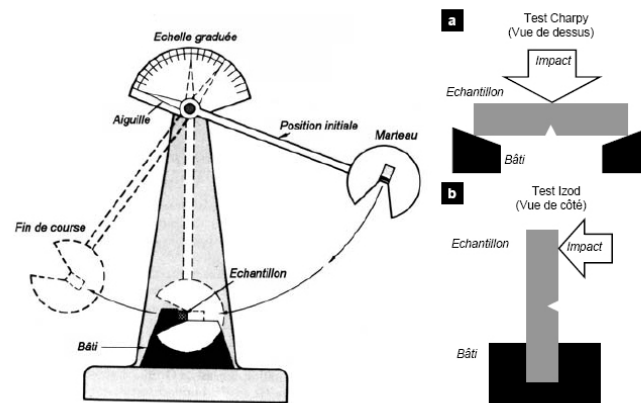


FIGURE 3.1 – Schémas illustrant le mouton pendulaire Charpy (1904) utilisé pour les tests de choc Ward et Hadley (1993) et position des échantillons entaillés pour les essais Charpy (a.) et Izod (b.).

des particules de renforts sur la température de transition ductile-fragile T_{BD} lors d'essais Izod. Les figures 3.2a et b dévoilent l'évolution de la résilience KV en fonction de la T_{BD} . La figure 3.2a s'intéresse à l'effet de la taille des particules, à fraction volumique ϕ_r fixée, sur la T_{BD} : la T_{BD} diminue lorsque la taille des particules décroît. Parallèlement, lorsque la taille des particules est fixée, l'augmentation de ϕ_r entraîne la diminution de T_{BD} (figure 3.2b).

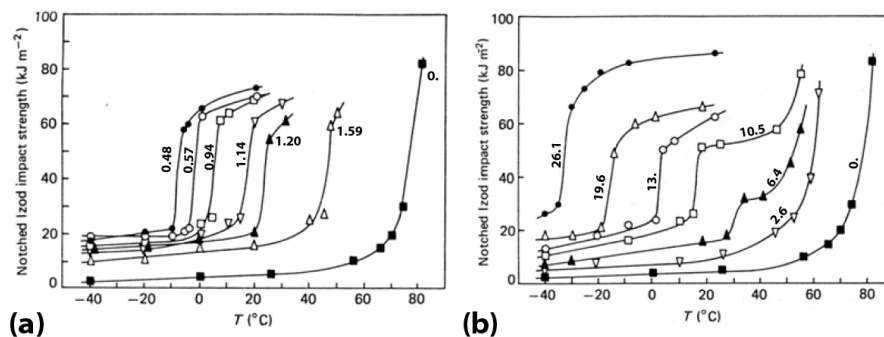


FIGURE 3.2 – Résilience (Izod) en fonction de la température pour des mélanges renforcés de PA-6/EPDM (Borggreve et al. 1987) : (a) la fraction volumique d'élastomère et l'adhésion interfaciale sont constantes, taille moyenne des particules en μm ; (b) la taille des particules et l'adhésion interfaciale sont constantes, la fraction volumique en élastomère en %.

Borggreve et al. (1987; 1989b;a) ont ainsi montré que la taille et la fraction volumique ont un effet direct sur la température de transition ductile-fragile. Ils poursuivent alors leurs recherches et s'intéressent, cette fois, à l'effet de ces deux paramètres sur le renforcement et donc sur la résilience KV. Les figures 3.3a et b présentent les résultats obtenus. Il est aisément remarquable qu'aucune corrélation existe entre la résilience KV et les paramètres d et ϕ_r .

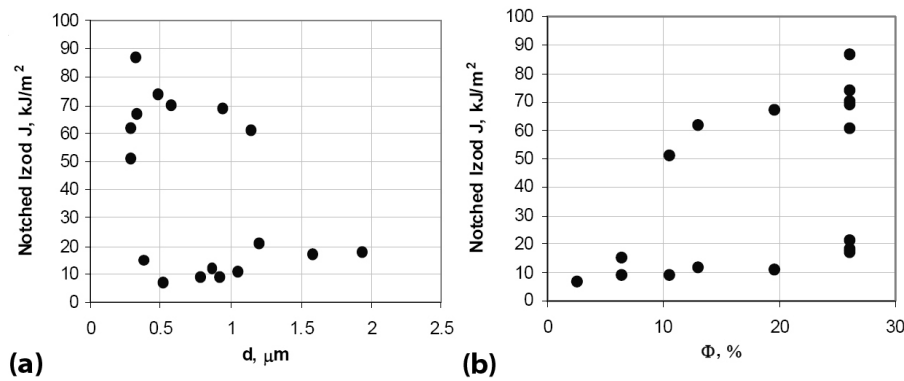


FIGURE 3.3 – Résilience (Izod), KV, à 20°C en fonction de la taille moyenne de particules d : (a) et de la fraction volumique ϕ_r ; (b) pour différents systèmes PA-6/EPDM (Borggreve et al. 1987).

3.1.2.1 La distance interparticulaire un paramètre critique ?

Les polyamides sont connus comme des thermoplastiques sensibles aux effets d'entaille et sont fragiles à de grandes vitesses de déformation ou à de basses températures. La modification de ces polymères semi-cristallins par l'ajout d'une seconde phase d'élastomères thermoplastiques ou de caoutchouc est une pratique commune permettant de contrebalancer cette fragilisation. Pour prendre un exemple, l'ajout de 20% d'EPR (Ethylène Propylène Rubber) à une matrice de polyamide 6 augmente considérablement la résilience (près de 60 fois) lors de tests Izod entaillé quand le diamètre des renforts est maintenu en deçà d'une valeur de 20 μm qui dépend de la concentration de nodules. De façon similaire, la fraction volumique de particules de renfort doit être au dessus d'une valeur critique qui est une fonction de la taille critique des particules. En 1985, Wu (Wu 1985) s'intéresse à l'effet de la taille des particules et à l'adhésion particule-matrice dans le cas de polyamide 66 renforcé par deux types de caoutchouc : un adhérant fortement au nylon, l'autre beaucoup moins. En première approximation, il suppose que les particules sont sphériques, de même taille et organisées dans une structure cubique. Il établit alors trois modèles différents afin de prédire la transition ductile-fragile :

- "interfacial area model" : la "brittle-tough transition" se produit quand l'aire de l'interface élastomère-matrice atteint une valeur critique. Le diamètre critique d_c est donné par

$$d_c = 6\phi_r / A_c \quad (3.1)$$

où A_c est l'aire critique par unité de volume en μm et ϕ_r la fraction volumique de caoutchouc.

- "particle concentration model" : la "brittle-tough transition" apparaît quand le nombre de particules par unité de volume atteint une valeur critique. Le diamètre critique est alors exprimé tel que

$$d_c = [6\phi_r / (\pi N_c)]^{1/3} \quad (3.2)$$

avec N_c la densité critique de particules de renfort en μm^{-3} au début de la transition ductile-fragile.

- "interparticle distance model" : la "brittle-tough transition" s'opère quand la distance entre deux particules voisines atteint une valeur critique notée Λ_c . Le diamètre critique est dans ce cas donné par

$$d_c = \Lambda_c \left[\left(\frac{\pi}{6\phi_r} \right)^{1/3} - 1 \right]^{-1} \quad (3.3)$$

Wu (1985) compare alors les trois modèles proposés avec les résultats expérimentaux obtenus lors des essais Izod et montre que les modèles basés sur l'aire à l'interface et la concentration des particules sont inadéquats. En effet, comme il est possible de le constater sur la figure 3.4, seul le modèle définissant le diamètre critique comme une fonction de la distance interparticulaire donne de bonnes prédictions.

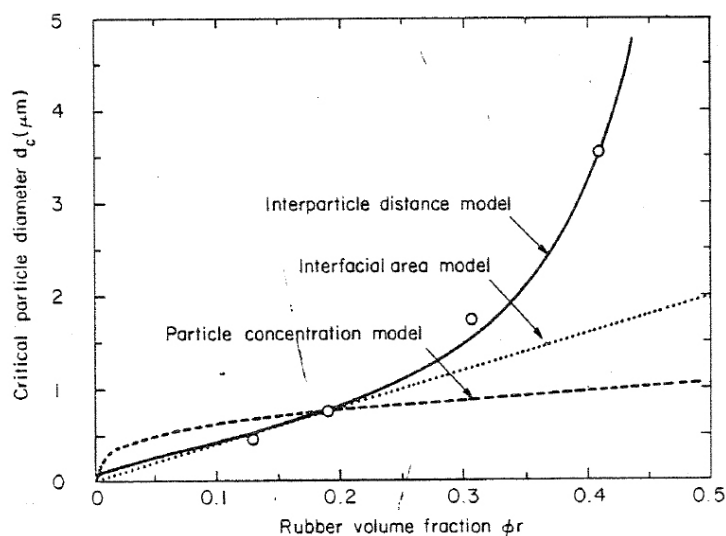


FIGURE 3.4 – Diamètre critique des particules de renfort en fonction de la fraction volumique de caoutchouc. Comparaison des résultats expérimentaux (o) avec les modèles théoriques (—), (…), (---) (Wu 1985).

Pour mieux cerner l'effet de la distance interparticulaire, Wu s'intéresse à l'évolution de la force d'impact lors d'essais Izod en fonction de la distance interparticulaire. Les résultats sont présentés sur la figure 3.5 pour trois fractions volumiques. Il s'avère que quelle que soit la fraction volumique, la transition ductile-fragile s'opère toujours pour la même distance interparticulaire. En effet, il apparaît que pour que l'ajout de particules de caoutchouc renforce le matériau, il est nécessaire que la distance entre celles-ci soit inférieure à une distance critique. Dans le cas contraire, l'ajout de caoutchouc se révèle inefficace et une rupture fragile s'opère.

Dans le cas du polyamide 66, Wu (1985) montre que pour obtenir un matériau renforcé, il est nécessaire que la distance entre les nodules de caoutchouc soit inférieure à une distance critique $\Lambda_c = 0.3 \mu\text{m}$, cela quelles que soient la taille et la concentration des nodules. A partir de l'équation 3.3, dans le cas de particules sphériques et de même taille, Wu (1985; 1988)

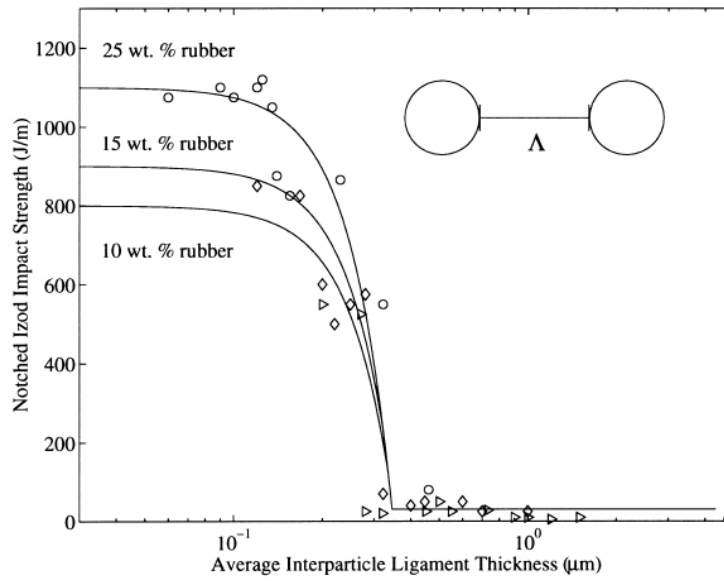


FIGURE 3.5 – Force d'impact relevant d'essais Izod sur du PA-6,6 renforcé en fonction de la distance interparticulaire moyenne (Wu 1985).

montre que

$$\Lambda_c = d \left[\beta \left(\frac{\pi}{6\phi_r} \right)^{1/3} - 1 \right] \quad (3.4)$$

où ϕ_r est le taux de nodules, d le diamètre des particules et β une constante géométrique dépendant de la répartition des particules : $\beta = 1$ pour une structure cubique, $\beta = (3)^{(1/2)} / (2)^{(2/3)} = 1.09$ pour une structure cubique centrée et $\beta = (2)^{1/6}$ dans le cas des cubiques face centrée.

Bartczak *et al.* (1999b) ont appliqué et amélioré la relation obtenue par Wu (1985; 1988) en s'intéressant au cas du polyéthylène renforcé avec du caoutchouc. En effet, il a été montré par Irani et Callis (1963) que la taille des particules répond généralement à une distribution logarithmique caractérisée par deux paramètres : une longueur géométrique moyenne $\langle d_{gn} \rangle$ et un écart type moyen géométrique σ_{sd} . L'épaisseur moyenne du ligament s'exprime en fonction de l'écart type telle que

$$\Lambda(\sigma_{sd}) = \Lambda_0 e^{(ln\sigma_{sd})^2} \quad (3.5)$$

d'où

$$\Lambda(\sigma_{sd}) = d \left[\beta \left(\frac{\pi}{6\phi_r} \right)^{1/3} - 1 \right] e^{(ln\sigma_{sd})^2} \quad (3.6)$$

La figure 3.6 présente l'application de la formule améliorée sur du PE lors d'essais Izod et démontre que le critère établi par Wu fonctionne également dans le cas du polyéthylène renforcé par des particules de caoutchouc. Il apparaît que dans ce cas la distance interparticulaire Λ_c est de l'ordre de $0.6 \mu m$.

Wu a donc établi un critère permettant d'estimer sous certaines hypothèses la distance interparticulaire permettant d'améliorer la ductilité du

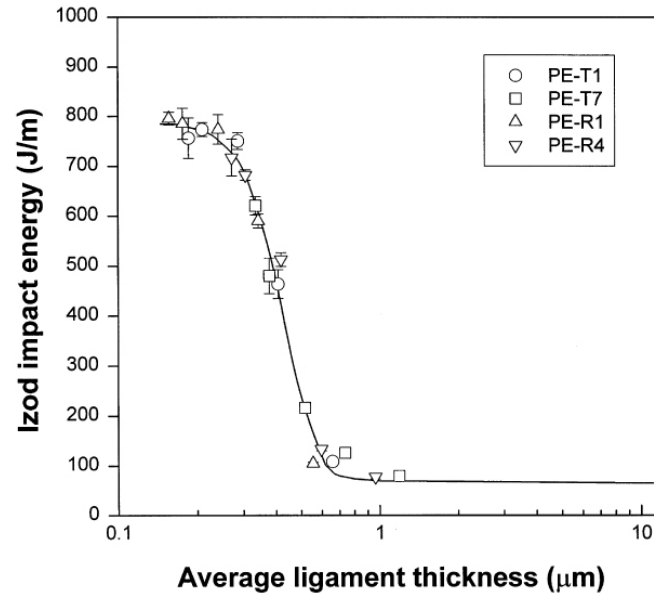


FIGURE 3.6 – Courbe maîtresse de l'évolution de l'énergie d'essais Izod sur du PE renforcé avec différentes particules en fonction de l'épaisseur moyenne du ligament formé par la matrice entre les particules (Bartczak et al. 1999b).

matériau et donc d'obtenir un renforcement grâce à l'ajout d'une seconde phase de type caoutchouc. Cependant si tant est qu'il est acquis qu'il est nécessaire d'avoir $\Lambda < \Lambda_c$ pour avoir un renforcement efficace, comment cette distance interparticulaire influence-t-elle sur les mécanismes de déformation, d'endommagement et de rupture à l'échelle des renforts? En effet si la valeur de Λ permet ou non de renforcer la matrice c'est bien que les micromécanismes changent selon le cas $\Lambda < \Lambda_c$ ou $\Lambda > \Lambda_c$.

Remarque 3.2 Cette question est abordée un peu plus loin dans ce chapitre au cours de la section 3.2.

3.1.2.2 La taille des particules est-elle bornée ?

3.1.2.2.1 Existe-il une taille maximale de particule ? En d'autres termes, existe-il un critère concernant une taille maximale de particule influant sur l'efficacité du renforcement? Il s'agit d'une question extrêmement simple dont la réponse n'est pas si évidente. Un des premiers à s'être intéressé à cette problématique est Argon à travers des études menées sur des polymères (Nylon-6, polypropylène) renforcés avec des particules inorganiques telles que le carbonate de calcium ($CaCO_3$) (Wilbrink et al. 2001, Thyo et al. 2002, Cohen et Argon 2003). Argon et Cohen (2003) mettent en évidence, comme le montre la figure 3.7, que des agrégats constitués par des particules de renforts peuvent constituer des amorçages fragiles. Ainsi pour estimer cette taille critique de particule, ils font appel à la théorie de Griffith (Griffith 1920) qui relie la taille d'une fissure à la résistance à la rupture et en déduisent la relation suivante dans le cas de système renforcé :

$$d = \frac{2}{\pi} \frac{K V E}{(1 - \nu^2) \sigma_y^2} \quad (3.7)$$

avec KV la résilience de la matrice, E le module élastique du mélange, ν le coefficient de Poisson et σ_y la contrainte d'écoulement plastique du matériau renforcé.

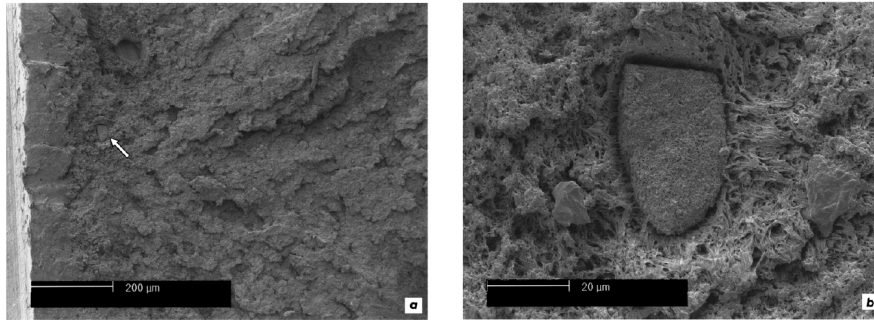


FIGURE 3.7 – Fractographie MEB de la région près de l'entaille d'un échantillon de PA-6 soumis à un essai d'impact Izod (Cohen et Argon 2003) : (a) un amas de particules a engendré une propagation fragile ; (b) La même particule agrandie montrant qu'il s'agit bien d'un amas de particules rigides.

Wilbrink *et al.* (2001), Thyo *et al.* (2002), Cohen et Argon (2003) ont appliqué l'équation 3.7 dans le cas du polyamide-6 et du polypropylène isotactique (iPP). Pour ce faire, ils ont utilisé les valeurs suivantes : $KV = 34.8 \text{ J.m}^{-2}$, $E = 1680 \text{ MPa}$, $\sigma_y = 121 - 153 \text{ MPa}$ pour le PA-6 et $KV = 300 \text{ J.m}^{-2}$, $E = 1480 \text{ MPa}$, $\sigma_y = 85.6 - 105 \text{ MPa}$ pour l'iPP. Ils ont ainsi déduit les diamètres critiques des agrégats d_{max} qui sont d'ailleurs en accord avec leurs observations microscopiques : $4 - 8 \mu\text{m}$ pour le PA-6 et $28 - 40$ pour l'iPP.

Remarque 3.3 Le critère de Griffith (Griffith 1920) consiste en un bilan énergétique. Il considère une fissure de longueur a dans une plaque soumise en traction uniaxiale à une contrainte σ . Le bilan énergétique se caractérise par la restitution de l'énergie élastique notée E_{el} d'une part et la création d'énergie de surface E_s d'autre part. Il se définit comme suit :

$$E = E_{el} + E_s \quad (3.8)$$

L'énergie élastique est libérée par l'avancement de la fissure et s'exprime comme suit

$$E_{el} = -\frac{\sigma^2}{2E} \pi a^2 \quad (3.9)$$

Cependant en formant une fissure, il est nécessaire que les liaisons soient cassées. Cette énergie requise est absorbée par le matériau. L'énergie de surface associée pour une fissure de longueur a est

$$E_s = 2\gamma_s a \quad (3.10)$$

avec γ_s l'énergie de surface en J/m^2 . Le facteur 2 vient du fait que deux surfaces libres sont créées. La longueur critique de la fissure est alors obtenue en annulant la dérivée de l'énergie totale telle que

$$\frac{\delta E}{\delta a} = \frac{\delta(E_{el} + E_s)}{\delta a} = -\frac{\sigma_f^2}{E} \pi a + 2\gamma_s = 0 \quad (3.11)$$

En résolvant, on obtient

$$\sigma_f = \sqrt{\frac{2\gamma_s E}{\pi a}} \quad (3.12)$$

3.1.2.2 Existe-il une taille minimale de particule ? L'existence d'une taille maximale de particule ayant été mise en lumière, il est normal de se demander si une taille minimale se doit d'être respectée afin d'obtenir un renforcement efficace. Il a déjà été montré que, pour une fraction volumique donnée, le renforcement est meilleur plus la taille des particules est faible. Or [Oostenbrink et al. \(1990\)](#), [Oshinski et al. \(1996\)](#) ont montré qu'il existe bel et bien une taille de particule minimale d_{min} en deçà de laquelle le renforcement perd de son efficacité et cela même si le critère de la distance interparticulaire ($\Lambda < \Lambda_c$) est respecté. Ils mettent en évidence, dans le cas de système de PA-6, une taille minimale avoisinant les 200 nm comme il est possible de le constater sur la figure 3.8.

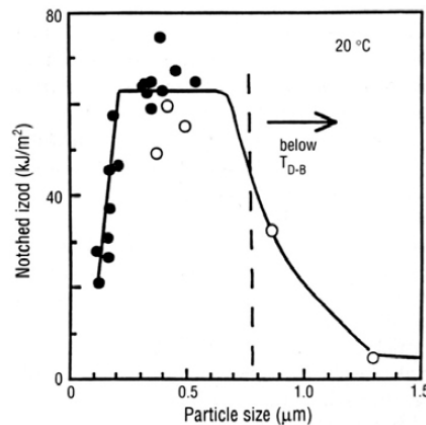


FIGURE 3.8 – Résilience vs taille de particule dans le cas d'essais Izod sur du PA-6 renforcé ([Oostenbrink et al. 1990](#)).

En proposant un critère de cavitation issu des analyses de Griffith, [Dompas et Groeninckx \(1994\)](#) considèrent qu'une particule doit être suffisamment grosse pour caviter. La taille minimale requise est alors définie par :

$$d_{min} = 12 \frac{\Gamma}{K_r} \left(\frac{\Delta V}{\Delta V_0} \right)_c^{-4/3} \quad (3.13)$$

avec $\left(\frac{\Delta V}{\Delta V_0} \right)_c$ la variation de volume critique du nodule, $\Gamma = \Gamma_{sc} + \gamma_r$ où γ_r la tension de surface de l'élastomère, Γ_{sc} une énergie par unité de surface associée à la rupture des chaînes de polymère et K_r le module de compressibilité des nodules.

Remarque 3.4 [Lazzeri et Bucknall \(1993; 1995\)](#) ont développé, à la même époque, un modèle analogue. Néanmoins, ayant supposé des déformations à volume constant, c'est à dire en négligeant la dilatation, ils aboutissent à des conclusions partiellement erronées.

3.1.3 Transition ductile-fragile

Ce domaine de transition est un véritable challenge pour les scientifiques. Certains des travaux portant sur la transition ductile-fragile pour les matériaux renforcés par des particules de caoutchoucs tentent de relier

la distance interparticulaire notée Λ_c ou ID_c à la température de transition ductile-fragile notée T_{BD} .

Ward (1971) suggère la modification suivante de l'équation d'Eyring afin de prendre en compte l'effet de pression hydrostatique sur la contrainte d'écoulement.

$$\dot{\epsilon} = B e^{[-(\Delta G + pV^* - V\sigma_y)/RT]} \quad (3.14)$$

où $\dot{\epsilon}$ est le taux de déformation, B une constante, ΔG l'énergie d'activation, V le volume d'activation, R la constante universelle des gaz parfaits, σ_y la contrainte d'écoulement en cisaillement, p la composante hydrostatique du tenseur des contraintes et V^* le "pressure activation volume". Dans le cas des polymères renforcés, la matrice thermoplastique est également soumise à un champ de contraintes triaxiales de dilatation. D'ailleurs, Margolina et Wu (1988) ont montré que la cavitation des nodules d'élastomère avait pour but de libérer ces contraintes triaxiales. Les contraintes triaxiales semblent plus compliquées à mettre en œuvre que la pression hydrostatique dans le sens où elles dépendent non seulement de la position mais également du temps. Jiang *et al.* (2002), afin de simplifier le modèle, remplacent alors p par \bar{p} dans l'équation 3.14 où \bar{p} correspond à une contrainte de dilatation moyenne; \bar{p} rendrait compte de la contrainte réelle en cours de cavitation. De plus, la direction de \bar{p} étant opposée à la pression hydrostatique, l'équation 3.14 devient

$$\dot{\epsilon} = B e^{[-(\Delta G - \bar{p}V^* - V\sigma_y)/RT]} \quad (3.15)$$

V^* est directement lié à l'effet de la cavitation et devient le "average dilative stress activation volume". Se basant sur les résultats de Bucknall *et al.* (1994) qui portaient sur l'effet de la cavitation et notamment concluaient que le rôle principal de la cavitation est de réduire la résistance à l'expansion volumique en réponse au champ de contraintes de dilatation, Jiang *et al.* (2002) supposent une relation linéaire entre V^* et V_c telle que

$$V^* = \alpha V_c \quad (3.16)$$

avec α un paramètre constant sans dimension et V_c le volume lié à la cavitation. Ainsi en l'absence de variation volumique due à la cavitation, V^* devient nul.

Remarque 3.5 *Relier volume d'activation et volume de cavitation sonne comme une gageure dans le sens où le volume d'activation n'a de sens physique que sa dimension en m^3 . Cela est donc vrai mathématiquement mais manque d'explications physiques.*

Lors de précédents travaux, Jiang s'est intéressé aux effets de la température, de la vitesse de déformation et de la distance interparticulaire sur la "brittle-tough transition"; il cherche à déterminer pourquoi l'effet du renfort peut devenir inexistant et entraîner une rupture fragile. En se basant sur les travaux de Wu (1985) et en appliquant la théorie de l'énergie, Jiang *et al.* (1998) ont obtenu une équation caractérisant la transition fragile pour les polymères renforcés. Ils montrent notamment que

- augmenter la température et diminuer la distance interparticulaire sont équivalents. De plus, le facteur de décalage augmente avec l'augmentation de la température.
- diminuer la vitesse de déformation est équivalent à diminuer la distance interparticulaire.

Pour obtenir ce résultat, ils considèrent un volume contraint V_s comme schématisé sur la figure 3.9 et déterminent l'énergie de déformation de la matrice au sein du volume contraint notée E_s . Ce volume contraint décrit le volume contenant la modification du champ de contraintes locales autour des nodules, engendrée par la sollicitation de l'échantillon et expliquée par les valeurs différentes du module élastique et du coefficient de Poisson entre la matrice et la seconde phase.

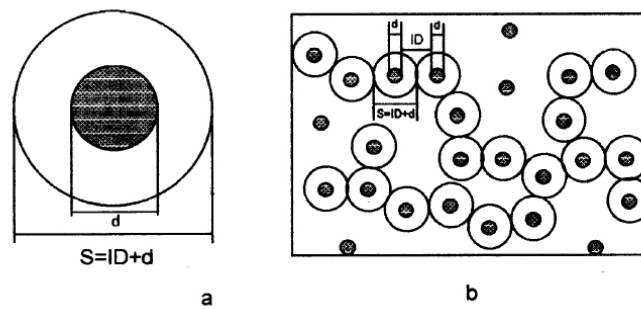


FIGURE 3.9 – Schéma du volume contraint autour d'une particule de renfort (Jiang et al. 1998).

Cela, couplé à l'équation obtenu par Wu (Wu 1985) qui définit la distance interparticulaire comme fonction de la taille des nodules et de leur concentration mais également l'équation d'Eyring, permet d'obtenir un nouveau critère permettant de décrire la transition fragile. Ce critère prend forme grâce à l'équation suivante

$$T = T_g - \sqrt{\frac{QE_s}{[(ID_c + d)^3 - d^3]}} \quad (3.17)$$

avec $ID_c = \Lambda_c$ la distance interparticulaire critique, d le diamètre des nodules et

$$T_g = \frac{\Delta G}{R \ln(B/\dot{\epsilon})} \text{ et } Q = \frac{12E_m V^2}{\pi R^2 [\ln(B/\dot{\epsilon})]^2} \quad (3.18)$$

où E_m représente le module de la matrice.

En combinant les équations 3.16, 3.17 et 3.18, Jiang et al. (2002) déterminent les équations décrivant la transition fragile en incluant l'effet de la cavitation :

$$T_{BD} = T_{BD}^m - T^* - \sqrt{\frac{QE_s}{[(ID_c + d)^3 - d^3]}} \quad (3.19)$$

$$ID_c = \left[\frac{QE_s}{(T_{BD}^m - T^* - T)^2} + d^3 \right]^{1/3} - d \quad (3.20)$$

avec T_{BD} la température de transition ductile fragile, T_{BD}^m de la matrice et

$$T^* = \frac{\bar{P}\alpha V_c}{R \ln(B/\epsilon)} \quad (3.21)$$

T^* est ainsi directement liée au volume de cavitation. Ainsi en observant les équations 3.19 et 3.21, on s'aperçoit que la cavitation entraîne la diminution de la température de transition ductile fragile du polymère thermoplastique renforcé. Jiang *et al.* (2002) ont appliqué leur théorie et comparé leurs résultats obtenus analytiquement à ceux de Borggreve *et al.* (1989a;b) dans les cas du polyamide 6 renforcé par des élastomères (Arnitel E315 et EPDM) et ceux de van der Sanden *et al.* (1994) dans le cas du polycarbonate chargé par de l'EPDM. Enfin, ils utilisent également cette théorie dans les cas des polymères renforcés par des particules rigides. En effet, dans ce cas, la cavitation ne se produit pas en cœur des nodules mais à l'interface entre les nodules et la matrice. Ainsi la valeur de T^* est extrêmement faible entraînant une température de transition ductile fragile élevée. Cependant, pour obtenir un polymère ductile, il est nécessaire de travailler avec des tailles de particules suffisamment petites et à une température suffisamment élevée.

Le modèle proposé par Jiang *et al.* (2002) et ainsi les conclusions établies doivent cependant être prises avec précaution dans le sens où, même s'il apparaît que les auteurs obtiennent des résultats a priori corrects, il n'en est pas moins que le modèle s'appuie sur une assimilation entre le volume de cavitation et le volume d'activation ce qui ne repose sur aucune constatation physique.

3.1.4 Cavitation vs décohésion à l'interface

Les polymères fragiles ou sensibles aux effets d'entaille peuvent voir leurs propriétés mécaniques améliorées grâce à l'ajout d'une seconde phase comme par exemple de petites particules d'élastomère. Bucknall (1977) montre que, dans le cas de polymères fragiles tel que le polystyrène, de multiples mécanismes de craquelage accroissent la ductilité et que l'adhésion nodule-matrice permet de stopper les craquelures. Les particules de caoutchouc ajoutées à des polymères dits ductiles comme les polycarbonates, polyamides ou poly(vinyl chloride) (PVC) facilitent la mobilisation de cisaillement de la matrice. De plus, dans le cas des polymères ductiles, une forte interaction nodule-matrice n'est pas requise. De nombreuses études ont montré l'importance de la cavitation. La cavitation (cavitation interne du nodule) apparaît comme nécessaire pour libérer les contraintes hydrostatiques équivalent à l'augmentation du déviateur (Borggreve *et al.* 1989a;b, Wu 1988). Cependant lorsque la résistance à la cavitation du renfort est grande, un autre phénomène peut prendre : la décohésion à l'interface renfort-matrice. Ce phénomène est d'ailleurs prédominant dans le cas du polycarbonate (Yee 1977, Sue *et al.* 1992).

Dompas *et al.* (1995) se demandent donc si oui ou non, pour une matrice renforcée donnée, le renforcement est influencé par le type de mécanisme de cavitation : cavitation interne à l'élastomère ou cavitation à l'interface (décohésion). Ils étudient cette problématique sur du PVC renforcé

par des nodules de méthyl méthacrylate-butadiène-styrène (MBS). Pour ce faire, ils mettent en œuvre quatre matériaux qui diffèrent par leur adhésion à l'interface. Des observations MET d'échantillons soumis à une traction uniaxiale permettent aux auteurs de détecter les mécanismes de cavitation intervenant pour chaque matériau. Ils s'avèrent que deux subissent de la cavitation interne lorsque les deux autres subissent une décohésion à l'interface. En dépit de cette différence, la réponse mécanique (contrainte-déformation) est exactement la même pour les quatre matériaux. Les essais Izod entraînant de forts taux de triaxialité en pointe d'entaille, la libération de la contrainte hydrostatique par cavitation est essentielle pour permettre l'écoulement en cisaillement de la matrice. La figure 3.10 présente les résultats obtenus à différentes températures pour les quatre matériaux. Ils s'avèrent une nouvelle fois que, quelle que soit la température, les réponses mécaniques sont similaires ; la transition ductile-fragile reste constante également.

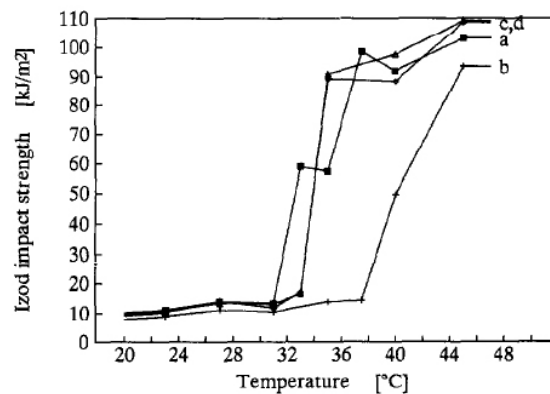


FIGURE 3.10 – Résilience Izod en fonction de la température pour les 4 différents matériaux PVC-MBS (Dompas et al. 1995) : (a) cavitation interne ; (b) cavitation interne ; (c) décohésion ; (d) décohésion.

Dompas et al. (1995) montrent ainsi que, dans le cas de matrices de PVC renforcées par des particules core-shell de MBS, le renforcement est indépendant de la localisation du mécanisme de cavitation. Il apparaît en effet que, quel que soit le mécanisme mis en jeu (décohésion ou cavitation en cœur), la réponse mécanique est analogue. Le mécanisme de décohésion semble ainsi autant efficace que la cavitation et permet également l'amorçage de la déformation plastique de la matrice. La formation de cavités, qu'elle soit à l'interface ou en cœur, est primordiale afin de libérer les contraintes triaxiales et par conséquent la pression hydrostatique, facilitant la plasticité et ainsi conduire vers un comportement ductile donc dissipatif.

3.1.5 Critères de cavitation

Les principaux mécanismes rencontrés au cours d'une rupture ductile se nomment la germination, la croissance et la coalescence de cavités. De ce fait, bon nombre d'études se sont attardées sur l'influence de la croissance de trous se déroulant lors d'une rupture ductile. Par exemple, Rice et

Tracey (1969) ont travaillé sur la croissance d'une cavité sphérique dans un matériau infini ; Gurson (1977) a établi un nouveau critère d'écoulement, critère qui fut de surcroît amélioré par Tvergaard (1981; 1982) et largement utilisé pour simuler des propagations de fissures ductiles (Needleman et Tvergaard 1987, Tvergaard 1990). Xia et Shih (1995a;b), Xia *et al.* (1995) ont également utilisé le modèle de Gurson dans le cadre de l'amorçage et la propagation d'une fissure dans un matériau ductile.

Une des premières études menées sur la cavitation du caoutchouc date de 1959 et a été effectuée par Gent et Lindley (1959). Les auteurs découvrent qu'il est nécessaire d'avoir un rapport module de cisaillement de l'élastomère-module de cisaillement de la matrice $\mu_r/\mu_m = 10$ pour obtenir de bonnes propriétés à l'impact. Hill (1950), dans le célèbre "*Mathematical theory of plasticity*", a résumé les premiers travaux relatant des instabilités liées à la cavitation. Green et Zerna (1954) puis Ball (1982) ont également travaillé sur cette problématique dans le cadre de l'élasticité non linéaire. Tvergaard et Hutchinson (1992), Tvergaard *et al.* (1992) ont ensuite étudié les instabilités de cavitation dans le cadre de matériaux élasto-plastiques.

Dans le contexte des polymères renforcés par l'ajout d'une seconde phase de type élastomère, de nombreuses études ont mis en avant le rôle important de la cavitation (Yee et Pearson 1986, Pearson et Yee 1986; 1991, Lazzeri et Bucknall 1993). De ce fait, il apparaît nécessaire de bien comprendre le processus de cavitation s'amorçant au niveau du renfort et a fortiori le renforcement.

3.1.5.1 Le critère de Lazzeri-Bucknall

Dans un premier temps, (Lazzeri et Bucknall 1993; 1995) ont développé un critère thermodynamique de cavitation basé sur une approche énergétique. Selon leur modèle, la déformation commence avec la cavitation des particules d'élastomères qui progressivement se transforme en bande de dilatation de nodules cavités comme décrit figure 3.11.

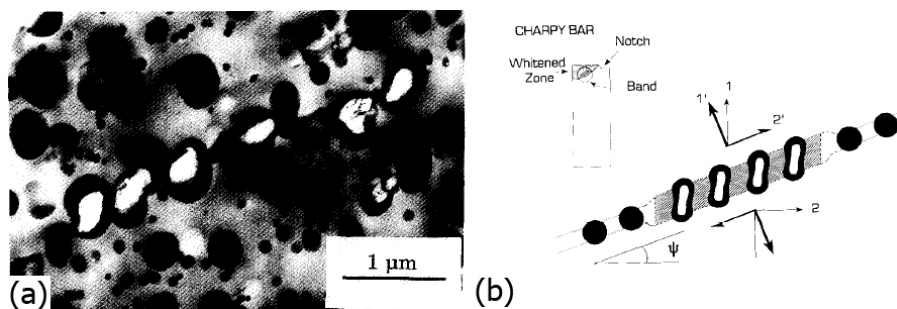


FIGURE 3.11 – (a) Observation au MET d'une bande de dilatation d'un échantillon soumis à un essai Charpy ; (b) représentation schématique d'une bande de dilatation (Lazzeri et Bucknall 1993).

Le principe sous-jacent est qu'une particule cavite lorsque l'énergie libérée pendant la cavitation est supérieure à l'énergie nécessaire pour former une cavité. Pour ce faire, ils définissent l'énergie emmagasinée

dans une particule de rayon R soumise à une déformation volumique Δ_{v0} comme

$$U_0 = \frac{4}{3}\pi R^3 \left(\frac{\sigma_m \Delta_{v0}}{2} \right) = \frac{2}{3}\pi R^3 K_r \Delta_{v0}^2 \quad (3.22)$$

où σ_m est la contrainte moyenne (également appelée dépression) dans l'élastomère et K_r le module en compression (bulk modulus) de l'élastomère.

Si le rayon R est maintenu constant et qu'une cavité de rayon r se forme, la déformation volumique devient $(\Delta_{v0} - r^3/R^3)$. De plus, cela entraîne l'addition de deux nouvelles contributions d'énergie à l'élastomère : une énergie de surface $4\pi r^2 \Gamma$ où Γ est l'énergie de surface du caoutchouc et une énergie de déformation en cisaillement nécessaire pour étirer les particules d'élastomères et ainsi permettre la croissance de la cavité. Selon [Lazzeri et Bucknall \(1993; 1995\)](#), l'énergie de la particule cavité devient

$$U = \frac{2}{3}\pi K_r R^3 \left(\Delta_{v0} - \frac{r^3}{R^3} \right)^2 + 4\pi r^2 \Gamma + 2\pi r^3 G_r F(\lambda_f) \quad (3.23)$$

avec λ_f le rapport d'extension à rupture du caoutchouc sous traction biaxiale.

Remarque 3.6 *Deux remarques apparaissent concernant le modèle de cavitation développé par [Lazzeri et Bucknall \(1993; 1995\)](#), [Bucknall et al. \(1994\)](#) : la première concerne le volume de la particule d'élastomère qui est supposé constant or cela ne reflète pas la réalité ; le second est en relation avec la pression hydrostatique qui, en réalité, dès que la particule a cavité, chute, or le modèle n'en tient pas compte. Les résultats apportés par le modèle semblent donc cruellement manquer d'un véritable sens physique. La relation à considérer est la suivante :*

$$- \Delta V_0 + (r^3 - R^3) \frac{4\pi}{3} \quad (3.24)$$

Si une cavité se forme, le terme ΔV_0 chute quasiment à 0 sauf si le terme $\frac{2\gamma}{r}$ est élevé. Dans ce dernier cas, la tension de surface tend à refermer la cavité et celle-ci ne peut se former.

En ce qui concerne le critère d'écoulement, [Lazzeri et Bucknall \(1993; 1995\)](#) adapte le modèle de Berg ([Berg 1970](#)), développé par Gurson ([Gurson 1977](#)) afin de prendre en compte les effets de la contrainte moyenne sur l'écoulement et ainsi l'appliquer aux polymères renforcés. Gurson développa la fonction d'écoulement suivante dans le cadre d'un matériau ductile comportant une fraction volumique de vide notée f

$$\Phi = \frac{\sigma_{eq}^2}{\sigma_y^2} + 2f \cosh \left(\frac{3\sigma_m}{2\sigma_y} \right) - f^2 - 1 \quad (3.25)$$

où σ_0 est la contrainte d'écoulement lorsque $\sigma_m = 0$.

[Lazzeri et Bucknall \(1993; 1995\)](#) proposent alors la modification suivante pour prendre en compte la dépendance à la pression :

$$\Phi = \frac{\sigma_{eq}^2}{\sigma_0^2} + \frac{2\mu\sigma_m}{\sigma_0} \left(2 - \frac{2\mu\sigma_m}{\sigma_0} \right) + 2f \cosh \left(\frac{3\sigma_m}{2\sigma_0} \right) - f^2 - 1 \quad (3.26)$$

où μ est une constante adimensionnelle du matériau représentant la sensibilité à la pression de l'écoulement et s'exprime comme $3(\sigma_C - \sigma_T) / (\sigma_C + \sigma_T)$ avec σ_C et σ_T les contraintes uniaxiales d'écoulement en compression et traction. Les auteurs précisent que généralement dans les polymères, on trouve $\mu \approx 0.39$.

Remarque 3.7 *Le modèle de Gurson est le premier modèle micromécanique pour la rupture ductile et ne considère que la croissance et uniquement la croissance d'une cavité sphérique supposée être la somme de toutes les cavités environnantes. Il peut sembler étrange de coupler au modèle de Gurson qui se défend d'être un modèle caractérisant physiquement des micromécanismes de cavitation un terme (σ_m) caractérisant un mécanisme microscopique à une échelle microscopique (paramètre utilisé lors de simulations micromécaniques faisant intervenir un volume élémentaire voire un volume élémentaire représentatif). Cette méthode devrait alors être considérée comme une première approche, première approche d'ailleurs qui donne des résultats intéressants.*

La fraction volumique de cavités pouvant évoluer pendant la déformation, cela peut être intégrée de la manière suivante

$$\dot{f} = \dot{f}_{growth} + \dot{f}_{nucleation} \quad (3.27)$$

La vitesse de croissance des cavités est directement proportionnelle à la vitesse de variation de volume étant donné que la matrice, elle-même est isochore en cours de déformation (Gurson 1975), ainsi

$$\dot{f}_{growth} = (1 - f) \dot{\epsilon}_{kk}^p \quad (3.28)$$

Enfin, les auteurs définissent un potentiel plastique

$$\dot{\epsilon}_{ij}^p = \Lambda \frac{\partial \Phi}{\partial \sigma_{ij}} \quad (3.29)$$

Dans un second temps, Bucknall *et al.* (1994) reprennent le modèle initialement développé par Lazzeri et Bucknall (1993; 1995) afin de considérer cette fois, non seulement l'énergie emmagasinée par la particule de caoutchouc mais également l'énergie de la matrice. Les auteurs émettent les hypothèses que les deux phases sont homogènes, isotropes et que la décohésion à l'interface n'est pas possible. Ils considèrent une particule de rayon R dans une matrice de rayon Q comme décrit sur la figure 3.12.

Bucknall *et al.* (1994) montrent que la cavitation ne peut pas être considérée comme un phénomène permettant d'absorber énormément d'énergie. En effet, l'essence de la cavitation est de réduire la résistance du polymère à la variation volumique en réponse au champ de contraintes de dilatation appliqué en pointe de fissure.

3.1.5.2 Le critère de Dompas-Groeninckx

Dompas et Groeninckx (1994) ont également établi un critère de cavitation basé sur un équilibre énergétique. Les auteurs considèrent une particule de caoutchouc sphérique de diamètre d_0 dont le plus gros défaut serait de l'ordre de quelques nanomètres. La rupture s'amorce sur

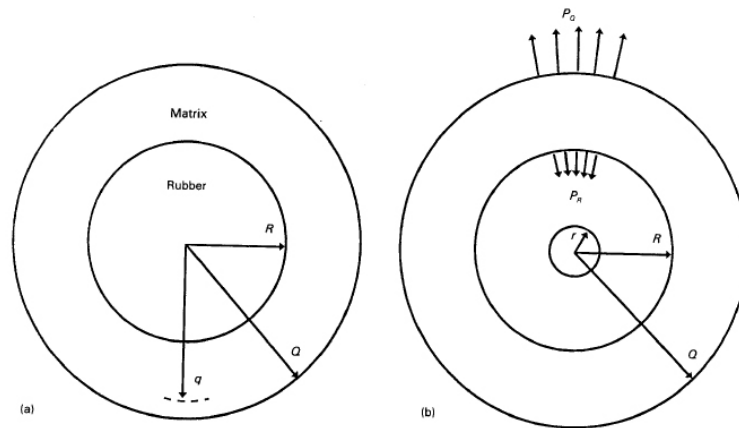


FIGURE 3.12 – Schéma d'une élément composite sphérique avant cavitation (a) et après (b) (Bucknall et al. 1994).

une inhomogénéité locale à l'échelle moléculaire comme par exemple une différence de densité. Ils supposent également que la cavitation est un phénomène instantané comme décrit schématiquement sur la figure 3.13. Se basant sur un bilan énergétique, ils définissent un critère tel que la cavitation a lieu quand l'énergie totale du système U_{total} décroît c'est-à-dire quand l'énergie gagnée en libérant la contrainte U_{strain} est supérieure à l'énergie nécessaire à la création de surface $U_{surface}$, soit :

$$U_{total} = U_{strain} + U_{surface} < 0 \quad (3.30)$$

avec U_{strain} l'énergie élastique stockée dans la particule et $U_{surface}$ l'énergie surfacique associée à la cavitation.

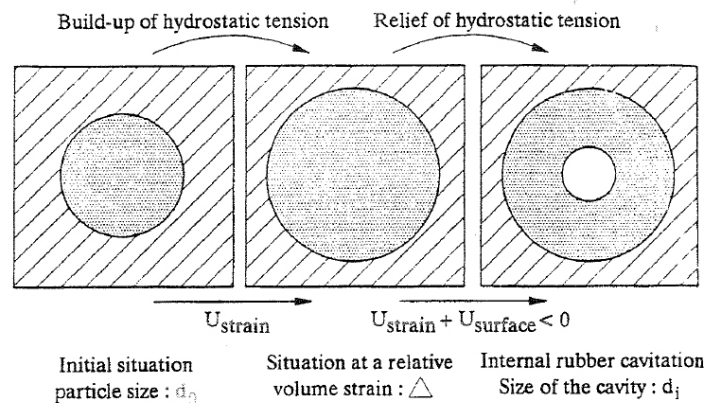


FIGURE 3.13 – Représentation schématique étape par étape de la cavitation d'un élastomère (Dompas et Groeninckx 1994).

Dompas et Groeninckx (1994) définissent l'énergie élastique d'une particule comme le travail de la pression extérieure durant la déformation en supposant qu'aucune cavité ne soit créée :

$$U_{strain} = \int_{V_0}^V -pdV = -\frac{\pi}{12}K_r \left(\frac{\Delta V}{\Delta V_0} \right)^2 d_0^3 \quad (3.31)$$

où $\left(\frac{\Delta V}{\Delta V_0}\right)$ est la variation volumique et K_r le module de compression du caoutchouc.

L'énergie requise à la création d'une surface et donc d'une cavité est définie comme

$$U_{surface} = \Gamma \pi d_i^2 \quad (3.32)$$

avec d_i le diamètre de la cavité et Γ l'énergie de surface par unité de surface (en première approximation, Γ est choisi égale à la tension de surface de van der Waals γ_r puis les auteurs ajoutent Γ_{sc} qui considère l'énergie de scission des chaînes). Les auteurs relient ensuite la taille de la cavité à la taille de la particule et à la variation de volume de la manière suivante :

$$\frac{\left(\frac{\pi}{6}\right) d_i^3}{\left(\frac{\pi}{6}\right) d_0^3} = \frac{\Delta V}{\Delta V_0} \quad (3.33)$$

L'application du critère défini comme tel a permis de mettre en valeur une taille minimale de particule en deçà de laquelle la cavitation ne peut avoir lieu comme le montre la figure 3.14. Cette taille minimale (cf section 3.1.2.2 *La taille des particules est-elle bornée ?*) est déterminée comme suit :

$$d_0 = \frac{12 (\gamma_r + \Gamma_{sc})}{K_r \left(\frac{\Delta V}{\Delta V_0}\right)^{4/3}} \quad (3.34)$$

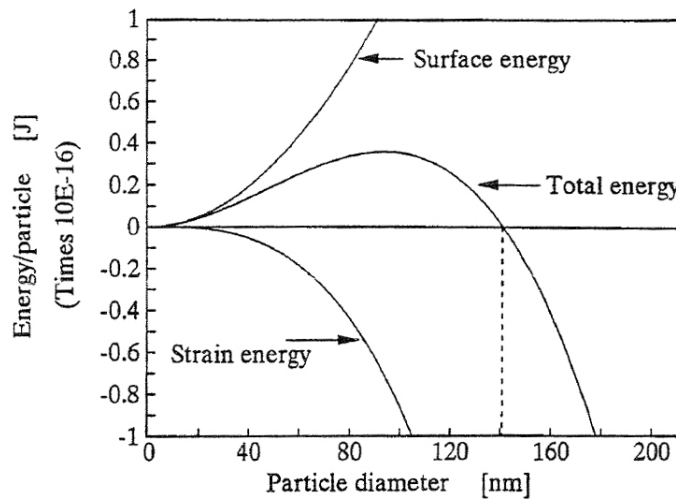


FIGURE 3.14 – Energie de déformation, énergie surfacique et énergie totale associées à la cavitation de l'élastomère en fonction du diamètre de la particule (Dompas et Groeninckx 1994).

Remarque 3.8 Le critère défini et utilisé par Dompas et Groeninckx (1994) s'avère avoir plus de sens physique que celui précédemment détaillé de Lazzeri et Bucknall (1993; 1995), Bucknall et al. (1994). La variation volumique de la particule est effectivement prise en compte mais quelques bémols apparaissent tout de même. Le premier concerne la définition de l'énergie élastique U_{strain} qui est uniquement définie par rapport à la particule de caoutchouc. Or, il semble que la matrice fournit également une énergie de déformation et ainsi il faudrait définir U_{strain} comme

la somme d'un terme lié au nodule $U_{rubber} = \int_{V_0}^V -pdv$ et d'un terme lié à la matrice $U_{matrix} = \frac{1}{2} \int_{V_{matrix}} \sigma_{ii}\epsilon_{ii}dv$. De même, lorsque les auteurs déduisent d_i en le supposant uniquement relié à la taille initiale de la particule (équation 3.33), il faudrait prendre également en compte la variation de volume liée à la matrice et non uniquement celle de la particule.

En intégrant ces remarques, on peut donc considérer que le modèle de Dompas-Groeninckx a très bien posé les bases du problème concernant la particule de caoutchouc : l'énergie de déformation qu'elle stocke et qui est ainsi disponible et libérée en cas de cavitation et l'énergie de surface, somme de la tension de surface et d'énergie de scission des chaînes. Cependant, les effets (énergies) matriciels n'ont pas été pris en compte. Pour autant, Dompas et Groeninckx (1994) mettent bien en évidence que l'énergie élastique stockée dans la particule dépend de la dépression interne. De surcroît, la dépression interne dépendant du volume, il apparaît alors que la taille de celle-ci joue un rôle majeur concernant la possibilité ou non de caviter. La dissipation d'énergie se traduisant par la création d'une surface (une cavité), un rapport surface/volume émerge, d'où une longueur interne.

3.1.5.3 Le critère de Fond-Lobrecht-Schirrer

Fond *et al.* (1996) proposent un modèle prenant en considération l'énergie surfacique de rupture et l'énergie liée à la tension de surface dont celle obtenue pour des particules de petits diamètres. Les auteurs font les mêmes remarques que Lazzeri et Bucknall (1993), Bucknall *et al.* (1994), Dompas et Groeninckx (1994) concernant l'effet de taille des particules en ce qui concerne l'amorçage de la cavitation. Cependant, la stabilité de la cavité, une fois créée, est décrite d'une manière différente : pour la géométrie initiale (sans cavité), l'équilibre énergétique contient les énergies totales ; pour la géométrie finale (avec cavité), l'équilibre énergétique s'effectue avec les dérivées de ces énergies pour lequel l'énergie potentielle de déformation hydrostatique est devenue très faible.

Eshelby (1957) donne la solution analytique de l'état des contraintes dans le cas d'une matrice infinie, élastique et isotrope soumise à une traction uniaxiale contenant une inclusion ellipsoïdale. La contrainte de cisaillement dans l'inclusion s'écrit

$$s_{ij}^p = \frac{5\mu_p}{3\mu_m + 2\mu_p} s_{ij}^\infty \quad (3.35)$$

où s_{ij}^∞ est la partie déviatorique de la contrainte uniforme σ_{ij}^∞ appliquée à l'infini, μ_m est le module de cisaillement de la matrice et μ_p celui de l'inclusion. Dans le cas d'une particule de caoutchouc, le rapport μ_p/μ_m est généralement faible, ainsi le terme s_{ij}^p devient de second ordre et peut être négligé. Les états de contrainte et de déformation de la particule peuvent être divisés en deux situations élémentaires comme schématisé sur la figure 3.15.

Eshelby (1957) définit l'énergie élastique supplémentaire dans la matrice, dans le cas d'un trou sphérique soumis à une pression hydrostatique

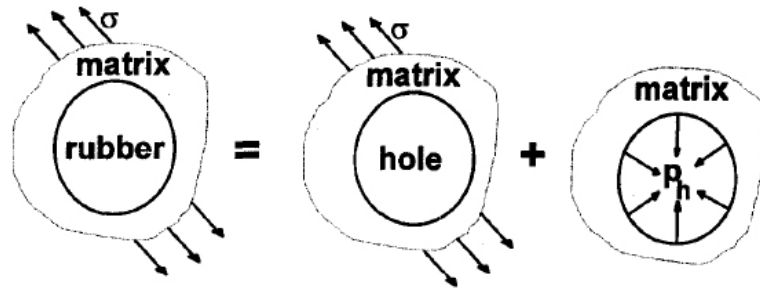


FIGURE 3.15 – Situations élémentaires correspondant à une particule de caoutchouc placée dans une matrice soumise à une force externe (Fond et al. 1996).

p_h comme

$$U_1 = -\frac{V_{pi}}{2} \left[\sum_{i=1}^3 \sum_{j=1}^3 s_{ij}^{\infty 2} \frac{15(1-\nu_m)(1+\nu_m)}{E_m(7-5\nu_m)} \right] - \frac{V_{pi}}{2} \left\{ \sigma_h^{\infty 2} \frac{9(1-\nu_m)}{2E_m} - p_h^2 \frac{3(1+\mu_m)}{2E_m} \right\} \quad (3.36)$$

où E_m est le module de Young de la matrice, ν_m son coefficient de Poisson, V_{pi} le volume de la particule et σ_{ij}^{∞} la composante hydrostatique de la contrainte soumise à l'infini. Le module de compressibilité k_m et le module de cisaillement μ_m se déduisent de E_m et ν_m grâce à

$$k_m = \frac{E_m}{3(1-2\nu_m)} \text{ and } \mu_m = \frac{E_m}{2(1+\nu_m)} \quad (3.37)$$

L'énergie élastique stockée dans la i ème particule est une fonction de la pression hydrostatique telle que

$$U_2 = \frac{V_{pi} p_h^2}{2 k_p} \quad (3.38)$$

Le pression hydrostatique assure la continuité des déplacements à l'interface étant donné qu'il ne peut pas y avoir de décohésion entre la matrice et la particule donc pas de variation de volume à l'interface.

$$p_h = \frac{(1-\nu_m)}{(1+\nu_m)} \frac{9k_p \sigma_h^{\infty}}{4\mu_m + 3k_p} \quad (3.39)$$

Si on considère un faible taux de renforcement v_p où il n'y a donc pas ou très peu d'interactions entre les particules (Fond et al. 2002), il est alors possible de déduire le module élastique à partir des résultats d'Eshelby (1957). Le module de cisaillement est estimé à partir de

$$\mu_{eff} = \frac{\mu_m}{1 + v_p \frac{15(1-\nu_m)}{7-5\nu_m}} \quad (3.40)$$

A partir de l'équation 3.36, en considérant que chaque particule d'élastomère est soumise à la même pression p_h et étant donné que p_h est indépendante de la taille de la particule, le module de compressibilité efficace

d'une particule peut se mettre sous la forme

$$k_{eff} = \frac{k_m}{1 + v_p \frac{3(1-\nu_m)}{2(1-2\nu_m)} \left[1 - \frac{(1+\nu_m)}{3(1-\nu_m)} \left(\frac{p_h}{\sigma_h^\infty} \right)^2 \right]} \quad (3.41)$$

Mauzac et Schirrer (1992) montrent que l'interaction entre les particules pour les polymères renforcés est très importante. Par conséquent, le modèle de Fond *et al.* (1996) ne prenant en compte ces effets d'interaction, ne doit être utilisé que pour des fractions volumiques de nodule de caoutchouc inférieure à 5-10%. L'apparition d'une cavité au sein d'une particule de caoutchouc correspond nécessairement à une rupture du caoutchouc ; la stabilité de la cavité est ensuite régie à la fois par la tension de surface γ_{st} et par l'énergie de rupture γ_F . Lorsque la cavité apparaît au sein de l'élastomère, il est généralement difficile de lui attribuer une forme. En effet, celle-ci est infiniment petite, de l'ordre de l'échelle moléculaire. Fond *et al.* (1996) considère qu'en utilisant une approche moléculaire, une cavité doit être considérée comme obéissant à un mécanisme d'écoulement liquide à travers une forme sphérique, qui progressivement (la cavité grossissant) subit une transition vers un comportement caoutchoutique.

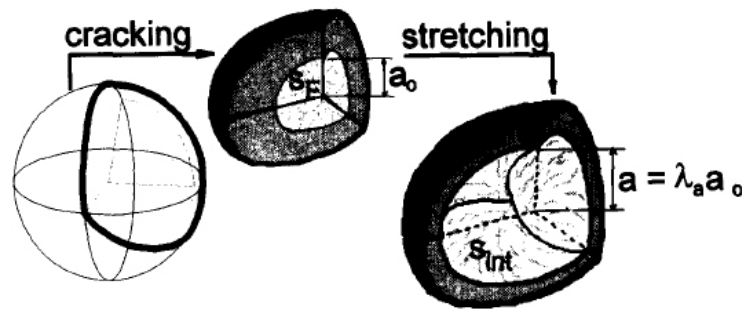


FIGURE 3.16 – Schéma d'une surface de rupture définie par 4 plans à $109^\circ 5$ dans une particule sphérique. Trois des quatre plans de propagation sont montrés ici (Fond *et al.* 1996).

La surface créée, s_F , est donc très près de la surface d'une sphère comme présenté sur les figures 3.16 et 3.17 et ainsi s'exprime comme

$$s_F \approx 3.65\pi a_0^2 \approx 4\pi a_0^2 \quad (3.42)$$

avec a_0 le rayon initial de la cavité. Ainsi l'énergie dissipée, notée U_3 , qui stabilise la cavité s'écrit

$$U_3 = \Gamma_{st} s_{int} + \Gamma_F s_F \quad (3.43)$$

où s_{int} est la surface interne de la cavité étirée, approximée de la manière suivante :

$$s_{int} \approx 4\pi (\lambda_a a_0)^2 \text{ avec } \lambda_a = \frac{a}{a_0} \quad (3.44)$$

A la différence de Lazzeri et Bucknall (1993) qui définissent l'énergie de dissipation comme proportionnelle au volume de la cavité, Fond *et al.* (1996) la définissent comme proportionnelle à la surface de la cavité, en

première approximation. Une décohésion à l'interface ne pouvant se produire, le rayon de la particule b est également le volume du "trou" de la matrice contenant la particule. b s'écrit comme suit

$$b = r_{\rho=b_0} = b_0 \left\{ 1 + \frac{3\sigma_h^\infty (1 - \nu_m)}{2E_m} - \frac{\sigma_{rr_{\rho=b_0}}}{4\mu_m} \right\} \quad (3.45)$$

avec b_0 le rayon initial de la particule, b le rayon de la particule après déformation, $\sigma_{rr_{\rho=b_0}}$ la pression radiale à l'interface.

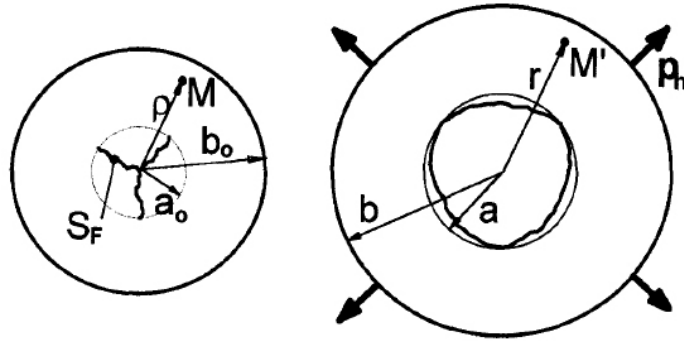


FIGURE 3.17 – Représentation schématique d'une croissance de cavité dans un élastomère (Fond et al. 1996).

Les contraintes radiale et tangentielle sont dérivées de la théorie d'élasticité (Dijkstra et al. 1994, Green et Zerna 1954). Fond et al. (1996) expriment alors la contrainte radiale σ_{rr} à l'interface comme

$$\sigma_{rr} = p_{int} + \frac{\mu_p}{2} \left(4A^{-1/3} + A^{-4/3} - 4\lambda_a^{-1} - \lambda_a^{-4} \right) \quad \text{où } p_{int} = \frac{2\Gamma_{st}}{a} \quad (3.46)$$

où $A = 1 + (\lambda_a^3 - 1) (a_0/b_0)^3$ et p_{int} le chargement interne dû à la tension de surface. Lorsque la particule rompt, λ_a devient supérieur à 1. Les énergies de cisaillement U_2^s et hydrostatiques U_2^h sont données par

$$U_2^s = 2\pi\mu_p \left[b_0^3 \left(2A^{2/3} - A^{-1/3} - 1 \right) - a_0^3 \left(2\lambda_a^2 - \lambda_a^{-1} - 1 \right) \right] \quad (3.47)$$

$$U_2^h = \frac{\pi\mu_p^2}{3k_p} b_0^3 \left[\frac{1}{2} C^2 + \frac{1}{30} \left(400A^{1/3} - 80A^{4/3} + 56A^{-2/3} - A^{-5/3} \right) \right] + \frac{\pi\mu_p^2}{3k_p} \left[b_0^3 C \left(4A^{2/3} + A^{-1/3} \right) - a_0^3 D \right] \quad (3.48)$$

avec

$$C = \frac{2p_{int}}{\mu_p} - 4\lambda_a^{-1} - \lambda_a^{-4}$$

$$D = \frac{1}{2} C^2 + \frac{1}{30} \left(400\lambda_a - 80\lambda_a^4 + 56\lambda_a^{-2} - \lambda_a^{-5} \right) + C \left(4\lambda_a^2 + \lambda_a^{-1} \right)$$

Pour de grandes valeurs de b_0/a_0 (à partir d'un facteur 10), ces énergies se réduisent à leurs limites quand a_0/b_0 tend vers 0.

$$\lim_{a_0/b_0 \rightarrow 0} U_2^\gamma = 2\pi\mu_p a_0^3 \left(\frac{5\lambda_a^3}{3} - 2\lambda_a^2 + \lambda_a^{-1} - \frac{2}{3} \right) \quad (3.49)$$

$$\lim_{a_0/b_0 \rightarrow 0} U_2^h = \frac{2\pi b_0^3 p_h^2}{3k_p} - \frac{\pi\mu_p^2 a_0^3}{3k_p} \left[D + (\lambda_a^3 - 1) \left(\frac{359}{30} - \frac{10p_h}{\mu_p} \right) \right] \quad (3.50)$$

Les auteurs définissent l'énergie en dehors de la particule avant rupture comme

$$\Delta U_1 = \frac{V_p}{2} \frac{3(1 + \nu_m)(p_h^2 - \sigma_{rr}^2)}{2E_m} \quad (3.51)$$

Seulement, pour prendre en compte la diminution soudaine de la pression à l'interface lorsqu'une cavité apparaît, l'équilibre de l'énergie est écrit avant et après la formation de la cavité. Comme la force externe augmente, les cavités peuvent apparaître quand

$$\Delta U_1 + (U_2 - U_2^h - U_2^\gamma) - U_3 \geq 0 \quad (3.52)$$

Fond *et al.* (1996) établissent comme condition de croissance d'une cavité de rayon initial a_0 le critère suivant :

$$p_{ext} > p_{int} \text{ avec } p_{int} = \frac{2\Gamma_{st}}{a_0} \text{ et } p_{ext} = p_h = A\sigma_h^\infty \quad (3.53)$$

c'est-à-dire que la tension de surface doit être inférieure à la pression externe appliquée par la matrice à la particule. De plus, il apparaît une taille initiale minimale de cavité afin de causer la rupture :

$$a_0 > \frac{2\Gamma_{st}}{A\sigma_h^\infty} \text{ avec } A = \frac{(1 - \nu_m)}{(1 + \nu_m)} \frac{9k_p}{4\mu_m + 3k_p} \quad (3.54)$$

Fond *et al.* (1996) considèrent que la formation et la croissance d'une cavité sont régies par les quatre conditions suivantes :

- la conservation de l'énergie (Griffith) ;
- la compatibilité de variation de volume entre la particule et la matrice environnante ;
- l'extension de la cavité ne peut être supérieure à l'extension maximale du caoutchouc sous traction biaxiale à l'échelle microscopique ;
- la taille de la cavité étirée doit être plus grande qu'une taille minimale. Cela implique que la pression interne due à la tension de surface doit être petite.

Le modèle de Fond *et al.* (1996) prédit que le chargement critique entraînant la création d'une cavité dépend de la taille de la particule dans le cas de petites particules (inférieur à 100 nm) et dans le cas de particules plus grandes (de l'ordre de 1 μm) de la barrière énergétique pour amorcer la cavité. Enfin, les interactions entre les particules jouant un rôle important (Fond *et al.* 2002, Scodellaro 1998) et n'étant pas prises en compte dans le modèle de Fond *et al.* (1996), celui-ci ne doit pas être utilisé au delà d'une fraction volumique de renfort de 10%.

Les modèles développés par Lazzeri *et Bucknall* (1993; 1995), Dompas *et Groeninckx* (1994), Bucknall *et al.* (1994), Fond *et al.* (1996) pour décrire

la cavitation des nodules de caoutchouc dans le cas de polymères renforcés sont formulés en faisant l'hypothèse d'un comportement linéaire élastique de la matrice. [Géhant et al. \(2003\)](#) propose ainsi une extension de ces modèles en supposant, cette fois, un comportement élasto-plastique s'agissant de la matrice ; il met en évidence le fait que, l'écoulement plastique de la matrice engendre une saturation de la contrainte hydrostatique dans la phase caoutchoutique et que, l'histoire de la cavitation influence peu la progression de la plasticité dans la matrice.

3.2 DÉFORMATION, ENDOMMAGEMENT ET RUPTURE À L'ÉCHELLE MICROSCOPIQUE, LES MÉCANISMES DU RENFORCEMENT

Les études concernant le renforcement des polymères grâce à l'ajout d'une seconde phase se sont donc multipliées afin de traiter les différents paramètres comme la taille des particules ([Borggreve et al. 1987](#), [Margolina et Wu 1988](#)), la concentration de caoutchouc ([Borggreve et al. 1987](#)) ou la distance interparticulaire ([Wu 1988](#)). En résultent des conclusions portant sur l'amélioration du renforcement : augmenter la concentration de caoutchouc, diminuer la taille des particules ou encore diminuer la distance interparticulaire rendent le renforcement plus efficace. Wu ([Wu 1985](#); [1988](#)) a montré expérimentalement qu'il existe une épaisseur de ligament critique entre deux particules de renfort à laquelle il existe une transition abrupte de la résilience. Cette longueur caractéristique est indépendante de la densité de renforts et de leurs tailles. Cette transition apparaît dans le cas du polyamide 66 pour $\Lambda_c = 0.3 \mu m$ et dans le cas du polyéthylène pour $\Lambda_c = 0.6 \mu m$ ([Bartczak et al. 1999b](#)).

Plusieurs mécanismes ont été proposés afin d'expliquer cette transition abrupte et il est possible de distinguer deux grandes classes : la théorie du recouvrement des contraintes initialement adoptée par Wu et la théorie des couches orientées développée par Muratoğlu.

3.2.1 La théorie du recouvrement des champs de contraintes

Wu, dans un premier temps, proposa qu'un recouvrement des champs de contraintes aux environs des particules créait du cisaillement et du craquelage au niveau de la matrice et de cette manière renforçait le mélange polyamide 6-caoutchouc. Lors d'une étude suivante, Wu a reconnu l'inexactitude de son modèle en expliquant l'effet de la taille de particule sur le renforcement ([Wu 1988](#)). Le niveau de contraintes locales dans une matrice comportant des inclusions est uniquement fonction du rapport de la distance centre-centre de deux particules (noté L) par le diamètre de la particule (d). Ainsi ce rapport reste constant pour une fraction de particule donnée sans prendre en compte leurs tailles. Cependant, selon le modèle du recouvrement des champs de contraintes, le renforcement devrait être non affecté par la présence de grosses particules pour un rapport L/d donné. Cela est contradictoire avec les résultats expérimentaux qui montrent que les petites particules sont bien plus efficaces pour le renforcement.

Dans un second temps, Wu a effectué une nouvelle tentative pour expliquer les mécanismes du renforcement. Il a mis en place un second modèle basé sur la transition de l'état de contraintes à une distance interparticulaire critique Λ_c . Ce modèle fait état que, quand la densité de particule augmente et que la distance interparticulaire est inférieure à la distance interparticulaire critique, le matériau, dans cette région, passe d'un état de déformation plane à un état de contrainte plane. La conséquence première de ce changement d'état est la diminution de la résistance à la déformation qui tend à rendre le mélange renforcé.

Des études mettant en jeu des modèles micromécaniques par éléments finis à la fois en deux et trois dimensions ont effectivement vérifié que le renforcement est dû à une déformation plastique importante de la matrice (Fukui *et al.* 1991, Dijkstra et Bolscher 1994). Cependant, ces travaux ne mettent pas en lumière une distance caractéristique. En effet, ceux-ci sont basés sur des champs de contrainte et sont caractérisés par des grandeurs géométriques sans dimension comme par exemple le rapport L/d qui consiste en la distance cœur-cœur entre deux nodules divisée par le diamètre des particules.

Selon Yee et Pearson (1986), Bucknall *et al.* (1989), Bagheri et Pearson (2000), la cavitation des particules suivie de la déformation plastique serait le mécanisme majeur du renforcement pour beaucoup de polymères renforcés par des nodules de caoutchouc. Les chercheurs s'accordent sur le fait que la cavitation, seule, ne serait pas une source suffisante pour renforcer. Or, l'importance de la déformation plastique a fait l'objet de nombreux débats. Bagheri et Pearson (2000), dans le cas des résines epoxy, montrent que la résistance à la cavitation des particules de caoutchouc ne joue aucun rôle dans les mécanismes de renforcement tant que le nodule peut caviter. Il explique que la source de la transition ductile-fragile se trouve dans le passage de l'état de déformation plane à celui de contrainte plane qui se produit au sein du ligament. Le rôle de la cavitation est alors de libérer la contrainte de déformation plane de la matrice environnante et ainsi de permettre la déformation plastique au niveau du ligament. Les études de Bagheri et Pearson (2000) semblent montrer qu'il n'existe pas de distance critique (Λ_c) à laquelle se produit la transition ductile-fragile.

3.2.2 La théorie des couches orientées

En désaccord avec l'explication des mécanismes de renforcement fournie par Wu (1988), Margolina et Wu (1988), Muratoğlu (Muratoğlu *et al.* 1995c) propose une nouvelle approche qui, cette fois n'est pas de l'ordre mécanique mais morphologique. En effet, il s'intéresse à la modification de la texture cristalline de la matrice suite à l'ajout d'une seconde phase.

Au cours d'une autre étude, Muratoğlu *et al.* (1995a) se sont intéressés au polyamide 6 sous la forme de couche mince et plus particulièrement à l'effet de l'épaisseur du film sur la morphologie cristalline du PA 6 cristallisé sur un substrat de type caoutchouc (figure 3.18).

Les études traitant de la morphologie cristalline de polymères semi-cristallins massifs ont montré que ces derniers présentent une structure sphérolitique. Cependant, dans le cas des films minces d'une épaisseur

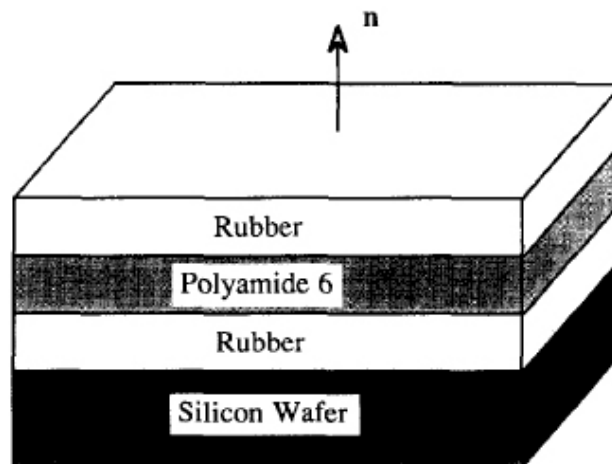


FIGURE 3.18 – Schéma de la préparation de films minces de PA-6 obtenus par spin-coating et confinés entre deux couches de substrats avec n la normale au plan du film. (Muratoğlu et al. 1995a).

de $0.15 \mu\text{m}$, les observations MET attestent d'une modification de la morphologie cristalline : la structure est devenue bidimensionnelle avec des agrégats cristallins de type "discoïde" (figure 3.19). De plus, la croissance des lamelles est contrainte par la géométrie du film et n'est donc libre que dans le plan du film. La figure 3.20 présente les lamelles cristallines formant ces agrégats disposées perpendiculairement à l'interface quand l'axe des chaînes lui est parallèle. A mesure que l'on s'éloigne du substrat, cette cristallisation préférentielle disparaît. Dans le cas du polyamide 6, Muratoğlu et al. (1995a) montrent que l'épaisseur de la couche orientée est de l'ordre de $0.07 \mu\text{m}$. Des analyses structurales par diffraction électronique et rayons-X aux grands angles mettent en valeur le fait que dans le cas de films minces de polyamide-6, les plans (001) sont préférentiellement orientés parallèlement à l'interface initiale du substrat. Or, ce sont eux qui contiennent les liaisons hydrogènes. Keller (1959), Scott (1959) avaient indépendamment effectué les mêmes observations (alignement parallèle des plans contenant les liaisons hydrogènes à l'interface du substrat) dans le cas de polyamide-6,6 et polyamide-6,10. Cette orientation préférentielle de la structure serait donc due à la minimisation de l'énergie interfaciale lors de la cristallisation.

L'anisotropie constatée de l'orientation cristalline implique une isotropie des propriétés mécaniques. Lin et Argon (1992) ont montré que la déformation plastique d'un monocristal de PA-6 peut être activée selon trois mécanismes de cisaillement : deux glissements selon l'axe des chaînes pour les systèmes cristallins (001)[010] et (100)[010] et un glissement transverse aux chaînes pour le système (001)[100]. Le plan de glissement (001)[010] est le plus facilement activé. A titre d'exemple, dans des conditions de cisaillement pur et à température ambiante, la contrainte d'écoulement plastique est de 16.2 MPa pour le système (001)[010] et 23.1 MPa pour les systèmes (001)[010] et (100)[010]. De plus, des com-

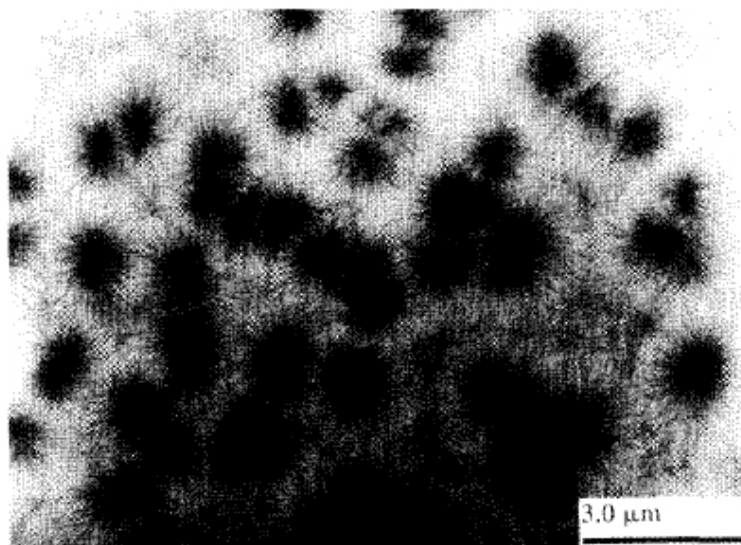


FIGURE 3.19 – Micrographie MET de la structure cristalline de type "discoïde" dans un film mince de PA-6 d'épaisseur $0.15 \mu\text{m}$ confiné entre deux couches de polystyrène. Le faisceau d'électron détruit les cristaux ce qui produit un contraste dû aux variations d'épaisseur entre zones amorphes et zones cristallines détruites (Muratoğlu *et al.* 1995a).

paraisons d'écoulement entre ces trois modes de déformations ont mis en valeur le fait que les liaisons hydrogène existantes dans le nylon 6 jouent un rôle important dans la gouvernance des résistances au glissement. En effet, quand les liaisons hydrogènes se situent dans le plan de glissement, comme le système $(001)[010]$, celles-ci ne sont pas cassées par cisaillement interplanaire. Par contre, quand elles se trouvent à travers le plan de glissement (cas du système $(100)[010]$), elles augmentent de manière significative la résistance au glissement.

Dans les cas de films minces de polyamide 6, Muratoğlu *et al.* (1995a) ont établi que les plans (001) de polyamide 6 contenant des liaisons hydrogènes s'alignent préférentiellement de manière parallèle à l'interface caoutchouc/polyamide. En se basant sur cette information, dans la cas de polyamide renforcé par des nodules de caoutchouc, ils proposent que l'interface caoutchouc-matrice soit également le lieu de phénomènes de la sorte.

A la différence de l'étude concernant les films minces, l'interface n'est plus plane. Les nodules étant de forme sphérique, l'interface a donc une courbure finie. La figure 3.21 consiste en une micrographie TEM d'un nodule d'EPDR-g-MA contenu dans une matrice de polyamide 6. Les zones sombres coïncident avec les régions amorphes et les blanches avec les lamelles cristallines. Le nodule est également en blanc. Les lamelles sont orientées au hasard dans la matrice mais à l'interface matrice-caoutchouc, la morphologie est différente. En effet, les lamelles sont parallèles les unes par rapport aux autres et perpendiculaires à l'interface. Une cause de l'obtention d'une telle structure pourrait être liée à la germination des lamelles à l'interface : les plans des liaisons hydrogènes seraient orientés parallèlement à la surface de l'interface pour des raisons énergétiques.

Lin *et Argon* (1992), Bartczak *et al.* (1992) ont montré que le compor-

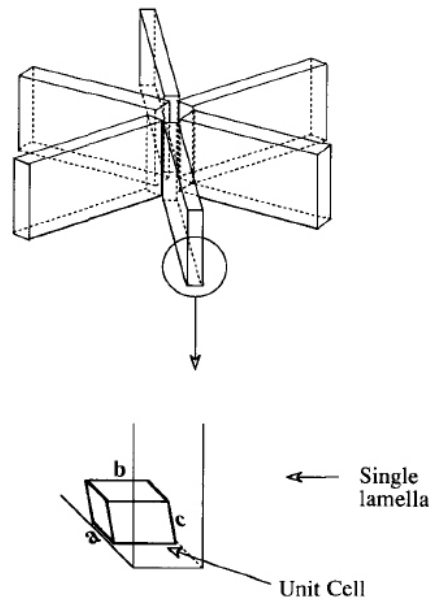


FIGURE 3.20 – Modèle proposé par [Muratoğlu et al. \(1995a\)](#) pour décrire l'organisation des lamelles d'un film très mince de PA-6. L'axe des chaînes et les plans (001) sont parallèles à l'interface avec le substrat.

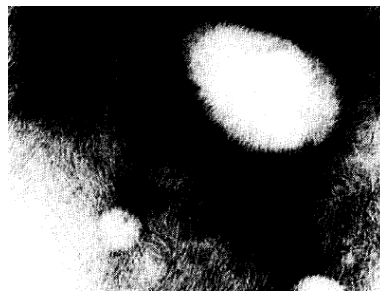


FIGURE 3.21 – Micrographie MET de polyamide 6 modifié avec de l'EPDR-g-MA ([Muratoğlu et al. 1995c](#)). Les lignes sombres représentent les régions amorphes, les lignes blanches les lamelles. Les particules sont en blancs.

tement à la déformation des polymères semi-cristallins est fortement lié à l'orientation cristalline. Par conséquent, les polymères renforcés possèdent une anisotropie mécanique locale dans les régions interparticulaires qui présentent une orientation préférentielle. [Muratoğlu et al. \(1995c\)](#) proposent ainsi un modèle comportant une anisotropie locale composé des trois régions distinctes suivantes : (1) particules de caoutchouc avec un faible module ; (2) région interparticulaire orientée ; (3) la matrice. La figure 3.22a présente un schéma d'une matrice renforcée de sept particules. Les lignes parallèles représentent l'intersection des lamelles avec le plan du papier. Les plans des liaisons hydrogènes sont perpendiculaires aux lamelles. La 3.22b décrit le changement de forme attendu de ce modèle soumis à une traction uniaxiale : les particules de caoutchouc ont cavité et les lignes parallèles dans la fenêtre représentent l'intersection des plans des liaisons hydrogènes avec le plan du papier.

Dans le mécanisme de renforcement proposé par [Muratoğlu et al.](#)

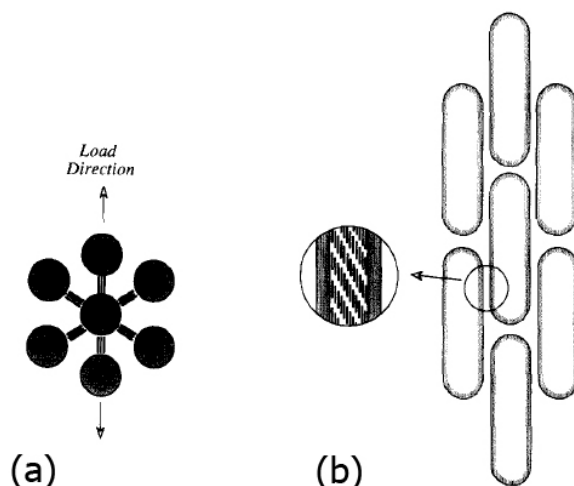


FIGURE 3.22 – Schéma des mécanismes de déformation d'une morphologie idéalisée sous tension uniaxiale : (a) avant et (b) après déformation (Muratoğlu et al. 1995c).

(1995c), la contrainte d'écoulement dans ces régions est minimisée et facilite la déformation plastique et donc améliore le renforcement. Wu (1985) avait mis en valeur l'existence d'une distance critique Λ_c à laquelle se produisait la transition ductile-fragile. Les modèles de Muratoğlu et Wu convergent sur ce point. En effet, si $\Lambda > \Lambda_c$, la structure cristalline de la matrice a un comportement isotrope et le mélange se comporte comme la matrice seule et est donc fragile comme le décrit la figure 3.23a. Dans le cas contraire $\Lambda < \Lambda_c$, les couches orientées sont interconnectées et percolent au travers de tout l'échantillon permettant une déformation plastique importante de la matrice et qui s'accompagne de la formation de cavités allongées (figure 3.23b).

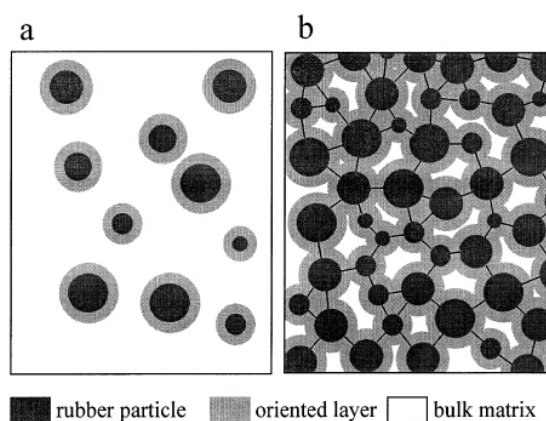


FIGURE 3.23 – Représentation schématique de la structure des mélanges renforcés (Muratoğlu et al. 1995c, Bartczak et al. 1999b). Les particules de renforcement sont en noir, la matrice cristalline isotrope en blanc et la couche de matrice orientée en gris. (a) Λ est supérieur à deux fois l'épaisseur de la couche orientée : le comportement est fragile. (b) Λ est inférieur à deux fois l'épaisseur de la couche orientée : la structure est ainsi fortement orientée avec une résistance plastique réduite étendue. Les lignes noires représentent l'orientation des lamelles cristallines dans les ligaments interparticulaires

Remarque 3.9 *Bartczak et al. (1992; 1999a;b;c) ont travaillé sur du PolyEthylène Haute Densité renforcé (PEHD) à l'aide de nodules en caoutchouc. La particularité du PEHD est qu'il ne contient pas de liaisons hydrogènes. Ainsi ils tentent de généraliser l'explication des mécanismes de renforcement formulée par Muratoğlu et al. (1995c) à l'ensemble des polymères semi-cristallins. Ils démontrent non seulement que le PEHD subit une transition ductile-fragile pour une distance interparticulaire critique de 0.6 µm mais également que le haut niveau de renforcement de ce matériau est dû à la présence d'une cristallisation orientée dans des couches d'une certaine épaisseur autour de chaque inclusion. Dans ces couches, les cristaux de polyéthylène sont orientés avec leurs plans faible énergie (100) parallèlement à l'interface caoutchouc-matrice. Il en résulte donc que la théorie des couches orientée développée par Muratoğlu et al. (1995c) peut être généralisée et contrôle le renforcement des polymères semi-cristallins.*

3.2.3 Une théorie plus récente : le modèle de Corté

Corté et Leibler (2007) proposent une explication différente des deux énoncées précédemment et postulent l'existence d'une longueur de confinement minimal engendrant la ductilité. En se basant sur les constatations de Kuksenko et Tamuzs (1981) qui, ont étudié les mécanismes de rupture d'une matrice semi-cristalline non renforcée à l'aide de rayons X et mis en évidence le fait qu'un nombre conséquent de fissures de l'ordre du micron et en dessous apparaissent dans les zones amorphes bien avant la rupture finale, Corté et Leibler (2007) font l'hypothèse d'une concentration de fissures notée ρ^* à partir de laquelle s'opèrerait une coalescence des fissures et occasionnerait une rupture fragile.

Les auteurs considèrent une matrice semi-cristalline poreuse contenant une fraction volumique f de cavités de diamètre d , les nodules de seconde phase ayant cavité afin de minimiser l'état de contrainte triaxiale (figure 3.24).

$$\Lambda_e(\tilde{\sigma}_1) = \Lambda - 2r_y(\tilde{\sigma}_1) \quad (3.55)$$

avec Λ l'épaisseur du ligament initial moyen soit la distance interparticulaire et $r_y(\tilde{\sigma}_1)$ la taille de la zone plastique.

Evidemment la croissance de la zone plastique implique l'amincissement de la zone élastique (figure 3.24d). Corté et Leibler (2007) font alors l'hypothèse que les régions élastiques supportent l'intégralité de la charge appliquée, assimilent $\tilde{\sigma}_1 \propto K_{notch} \left(1 - \alpha (f + f_y)^{2/3}\right)^{-1} \sigma_1^\infty$ (avec f_y la fraction volumique de zones plastiques et α une constante géométrique) et $r_y(\tilde{\sigma}_1) \propto d (K_T \tilde{\sigma}_1 / \sigma_y)^2$. L'équation 3.55 devient

$$\Lambda_e(\tilde{\sigma}_1) = \Lambda + d \left(\frac{C \sigma_B}{\sigma_y} \right)^2 \quad (3.56)$$

où C est un facteur dimensionnel dépendant de la vocation des particules à libérer la contrainte et σ_B la contrainte de traction à rupture.

Remarque 3.10 *Il apparaît tout de même relativement étrange de considérer que ce sont les régions non encore plastifiées qui supportent la charge à la place de celles sont plastifiées. Une simple simulation à l'aide d'un code aux éléments finis soulignera*

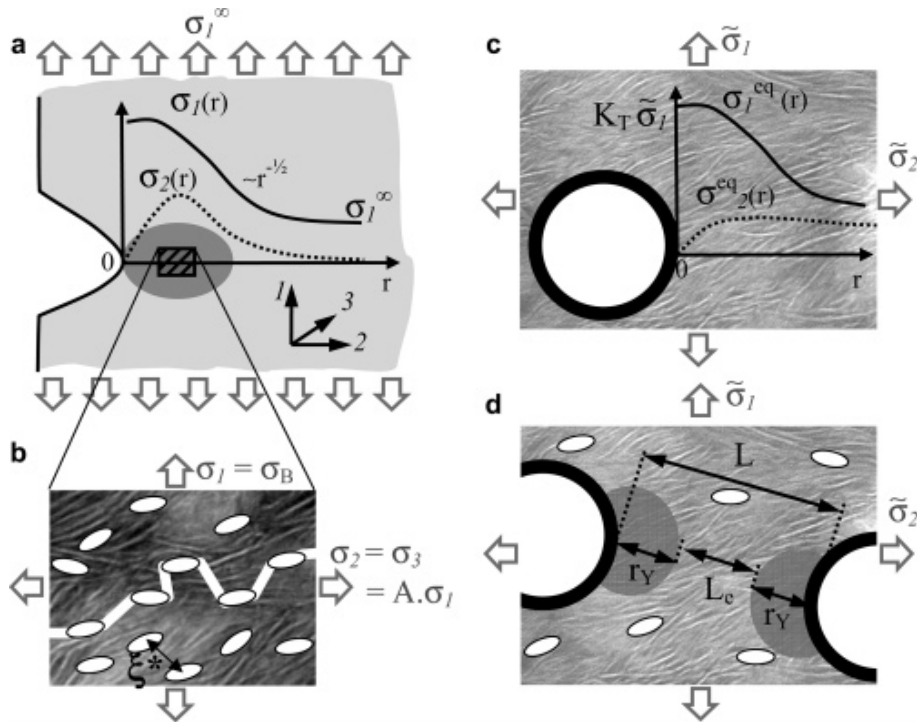


FIGURE 3.24 – a) Distribution de la contrainte en front d'entaille soumise à une contrainte de traction σ_1^∞ ; b) état des contraintes au niveau de la "process zone"; c) distribution locale des contraintes au voisinage d'une particule cavitée; d) schéma des processus de déformation dans les systèmes renforcés ($L = \Lambda$ et $L_c = \Lambda_c$) : apparition de zones plastiques en gris et de microfissures dans la matrice élastique (Corté et Leibler 2007).

bien le fait que les régions plastiques supportent cette charge et non les régions élastiques.

Ainsi, en considérant que la taille de la zone élastique s'écrit $\Lambda_c(\sigma_B)$ et que la distance moyenne entre deux microfissures est ζ^* (figure 3.24b), Corté et Leibler (2007) distinguent deux cas :

- $\Lambda_c(\sigma_B) > \zeta^*$ où la coalescence des microfissures n'est pas perturbée par le confinement engendré par l'apparition des régions plastifiées. Une rupture fragile peut toujours se produire.
- $\Lambda_c(\sigma_B) < \zeta^*$ où cette fois, le confinement est assez important pour faire barrière aux interactions entre les microfissures impliquant le fait que pour qu'une rupture brutale se produise, une concentration supérieure de microfissures est requise.

Incontestablement un cas critique existe lorsque $\Lambda_c(\sigma_B) = \zeta^*$ qui se traduit comme suit :

$$\Lambda_c = \zeta^* + d \left(\frac{C \sigma_B}{\sigma_y} \right)^2 \quad (3.57)$$

L'équation 3.57 exprime le fait que la longueur critique Λ_c ne serait plus une caractéristique intrinsèque de la matrice car tributaire non seulement des propriétés de cette dernière à travers ζ^* , σ_B et σ_y mais également de la seconde phase par l'intermédiaire de la taille des nodules d . L'exposition de leur modèle à des résultats expérimentaux, présents dans la littérature sur des matériaux tels que le polyamide 66 renforcé (Wu 1985) et le poly-

amide 12 (Corté *et al.* 2005, Corté 2006), donne des résultats prometteurs et confirme l'effet de la taille de la particule des renforts sur la transition ductile-fragile. Les résultats obtenus sont également en adéquation avec ceux obtenus par Kuksenko et Tamuzs (1981) concernant la distance critique entre deux microfissures ζ^* .

Le modèle de Corté (Corté et Leibler 2007) ne contredit pas celui développé par Muratoğlu *et al.* (1995c), d'ailleurs les comparaisons effectuées par Corté et Leibler (2007) mettent en évidence des tendances similaires. Corté et Leibler (2007) constatent que le renforcement dépend de la matrice et donc a fortiori, de l'orientation des lamelles cristallines qui influe sur le comportement du matériau, mais aussi de la taille des particules de la seconde phase. Le fait est que les auteurs ont développé leur modèle à partir des observations réalisées par Kuksenko et Tamuzs (1981) qui a mis en évidence la présence de microfissures et conséquemment postulé l'existence d'une densité critique de microfissures et d'une distance critique entre deux microfissures. Dès lors, cela s'avère hypothétique et n'apporte aucune information quant à la raison de l'apparition de ces microfissures au sein du matériau : qu'advient-il si aucune microfissure ne s'amorce ?, quelles sont les conditions d'apparition de ces microfissures ? quelle facteur stoppe leur propagation ?...

3.2.4 Conclusion

Il semble donc qu'un bon nombre de polymères semi-cristallins peut être renforcé par l'ajout d'une seconde phase bien dispersée si tant est que la distance interparticulaire Λ est inférieure à une distance interparticulaire critique Λ_c . Ce paramètre critique est une caractéristique spécifique du matériau de base (la matrice) et peut être obtenu par de multiples combinaisons de fraction volumique de la seconde phase et de la taille des inclusions. Récemment, des améliorations importantes ont été obtenues concernant les mécanismes de renforcement lorsque $\Lambda < \Lambda_c$: le plus plausible est qu'ils seraient liés à une transition morphologique localisée à l'interface lors de la cristallisation ; cette transition a une épaisseur de $\Lambda_c/2$.

3.3 MODÉLISATION MICROMÉCANIQUE DES POLYMÈRES RENFORCÉS

3.3.1 Quelques outils préliminaires...

La modélisation micromécanique commence obligatoirement par le choix d'un volume élémentaire. Cette première étape est primordiale car le volume élémentaire doit être représentatif à la fois de la géométrie microstructurale et des déformations. Un matériau renforcé par des particules consiste en une distribution aléatoire d'une fraction volumique donnée de particules au sein d'une matrice. De plus, généralement, une distribution de la taille des particules existe. Par exemple dans le cas des élastomères chargés constituant la gomme des pneumatiques, la microstructure est biphasée et présente des agrégats. Dès lors, l'étude de la microstructure

nécessite la simulation de ces agrégats de noir de carbone. Ces simulations sont obtenues à partir d'un modèle de morphologie mathématique dont les paramètres sont identifiés à partir des images au microscope à transmission (figure 3.25). Ensuite, afin d'étudier l'influence de la microstructure sur les propriétés mécaniques par l'intermédiaire d'un code aux éléments finis, il est nécessaire de définir un volume élémentaire représentatif qui s'obtient par une méthode statistique (Kanit 2005).

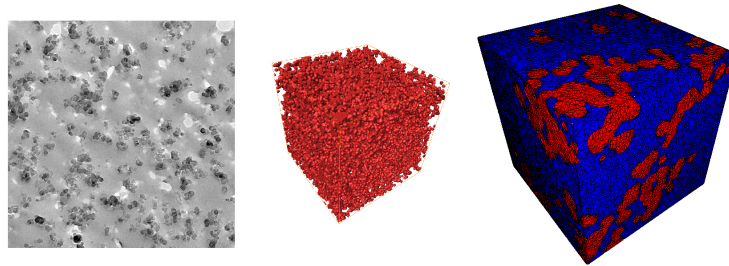


FIGURE 3.25 – Calculs de la microstructure basés sur des observations MET et maillage et calculs pour atteindre les propriétés macroscopiques liées à la nature des micro-interactions entre les constituants de l'élastomère (Jean 2009).

3.3.1.1 Arrangement anti-parallèle des cellules

La modélisation micromécanique de matériaux renforcés par des nodules nécessitent le choix d'un volume élémentaire représentatif (VER). Le VER peut être un VER axisymétrique, un VER irrégulier en déformation plane (*irregular plane strain RVE*) ou encore un VER en 3 dimensions (3.26).

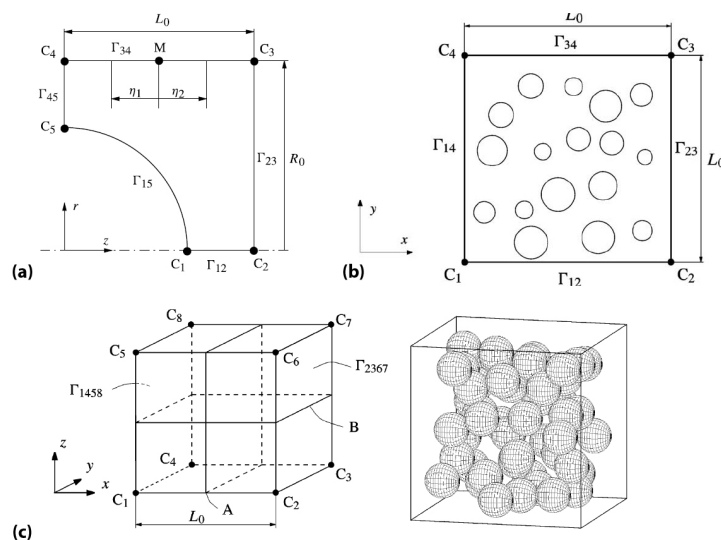


FIGURE 3.26 – (a) VER axisymétrique; (b) VER irrégulier en déformation plane; (c) VER en 3D.

Dans le cas des VER axisymétriques, il est fréquent qu'il soit appliqué des conditions d'anti-symétrie. Ces conditions d'anti-symétrie ont été introduites initialement par Tvergaard (1996; 1998) et permettent de prendre

en compte la présence des particules voisines en autorisant la frontière latérale à se courber en cours de déformation. Dans l'arrangement anti-parallèle des cellules, la compatibilité axiale requiert que le haut et le bas du VER restent plan en cours de déformation. De plus, les points le long de la frontière latérale se déplacent tel que

$$u_z(\eta_1) + u_z(\eta_2) = 2u_{z|F}, \text{ pour } \eta_1 = \eta_2 \quad (3.58)$$

où $u_z(\eta_1)$ et $u_z(\eta_2)$ sont les déplacements dans la direction z des points localisés aux distances axiales η_1 et η_2 du point F . F est le milieu de la frontière CD (figure 3.27) et se déplace selon

$$2u_{z|F} = u_{z|B} \quad (3.59)$$

avec $u_{z|B}$ le déplacement axial de la frontière BC étant entendu que le déplacement en z est bloqué pour la frontière ED . Le déplacement radial des points appartenant à la frontière latérale doit satisfaire l'équation suivante :

$$[r_0 + u_r(\eta_1)]^2 + [r_0 + u_r(\eta_2)]^2 = 2[r_0 + u_{r|F}]^2, \text{ pour } \eta_1 = \eta_2 \quad (3.60)$$

avec r_0 le rayon initial du VER, $\pi \left([r_0 + u_r(\eta_1)]^2 + [r_0 + u_r(\eta_2)]^2 \right)$ et $2\pi [r_0 + u_{r|F}]^2$, les aires de la section dont la normale est l'axe z d'une distance axiale η_1 (ou η_2) du point F et au point F , respectivement, dans la configuration déformée. Enfin, la condition de symétrie requiert

$$u_{r|AB} = 0 \quad (3.61)$$

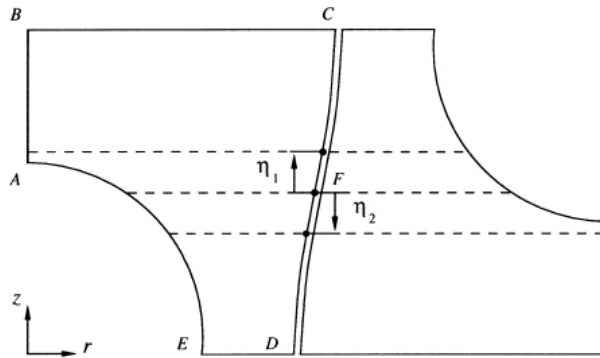


FIGURE 3.27 – Schéma d'un arrangement de cellules anti-parallèles (Tzika et al. 2000)

3.3.1.2 Le critère d'écoulement anisotrope de Hill

Hill (1947) développe un critère d'écoulement anisotrope initialement pour des métaux de symétrie orthotropes. Dans un repère cartésien dont les axes sont définis par les contraintes principales, le critère de Hill prend la forme suivante

$$F(\sigma_{22} - \sigma_{33})^2 + G(\sigma_{33} - \sigma_{11})^2 + H(\sigma_{11} - \sigma_{22})^2 + 2L\sigma_2^2 + 2M\sigma_1^2 + 2N\sigma_3^2 = \sigma_y^2 \quad (3.62)$$

avec σ_{ij} les composantes du tenseur des contraintes et les constantes anisotropiques F, G, H, L, M et N données par

$$F = \frac{1}{2} \left(\frac{1}{R_{22}^2} + \frac{1}{R_{33}^2} - \frac{1}{R_{11}^2} \right), G = \frac{1}{2} \left(\frac{1}{R_{11}^2} + \frac{1}{R_{33}^2} - \frac{1}{R_{22}^2} \right) \quad (3.63)$$

$$H = \frac{1}{2} \left(\frac{1}{R_{11}^2} + \frac{1}{R_{22}^2} - \frac{1}{R_{33}^2} \right), L = \frac{3}{2R_{23}^2}, M = \frac{3}{2R_{13}^2}, N = \frac{3}{2R_{12}^2} \quad (3.64)$$

Les constantes R_{11}, R_{22} et R_{33} correspondent aux rapports de la contrainte d'écoulement en traction du matériau anisotrope par la contrainte virtuelle d'écoulement du matériau pur, σ_y . Les constantes R_{12}, R_{13} et R_{23} sont obtenues en cisaillement, $\tau_y = \sigma_y / \sqrt{3}$.

3.3.2 Le modèle de Tzika

L'étude menée par [Tzika et al. \(2000\)](#) consiste à élucider la micromécanique et les micromécanismes responsables du renforcement en se basant sur la théorie de [Muratoğlu et al. \(1995a;c\)](#) développée précédemment dans ce mémoire (3.2.2 "La théorie des couches orientées") par l'intermédiaire de plusieurs modèles micromécaniques. Pour rappel, [Muratoğlu et al. \(1995a;c\)](#) montrent que lorsque la distance interparticulaire Λ est inférieure à une distance critique Λ_c , le renforcement est grandement amélioré grâce à une transition morphologique prenant place à l'interface. Cette cristallisation préférée, appelée également transcristallisation consiste en des lamelles cristallines grandissant parallèlement les unes par rapport aux autres et perpendiculairement à la seconde phase. La figure 3.28 schématise les deux cas exposés par Muratoglu : à savoir si $\Lambda > \Lambda_c$, le mélange est fragile et dans le cas contraire, renforcé.

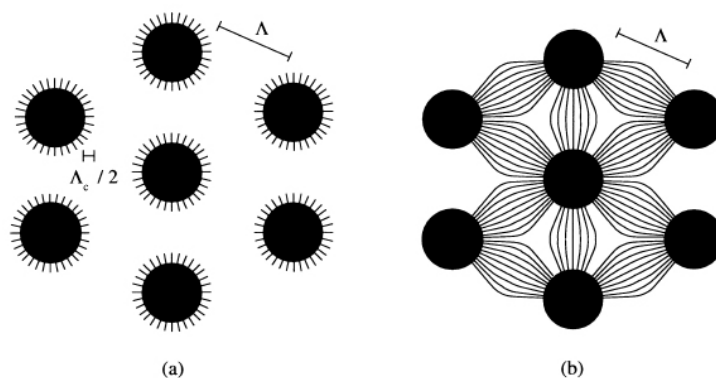


FIGURE 3.28 – Schéma de la morphologie matricielle : (a) mélange fragile, $\Lambda \gg \Lambda_c$; (b) mélange renforcé $\Lambda \leq \Lambda_c$. Les lignes indiquent la direction de croissance des lamelles ([Tzika et al. 2000](#)).

Les différents modèles construits par [Tzika et al. \(2000\)](#) sont tels qu'ils permettent d'étudier l'influence de la morphologie de la matrice, de la fraction volumique d'élastomère et du chargement triaxial. Les auteurs définissent un volume élémentaire représentatif (VER) (ici un "Staggered

Array model" également connu sous le nom de SA modèle défini par [Socrate et Boyce \(2000\)](#)) soumis aux conditions d'anti-symétrie développées par [Tvergaard \(1996; 1998\)](#). Ils prennent le cas de PA-6 modifié; de plus, il est à noter que les particules de caoutchouc sont modélisées par des vides soit des particules cavités. En effet, [Baumann \(1998\)](#) a démontré que la cavitation ne contribue pas directement de manière significative sur le renforcement dans le cas du polyamide tant que celle-ci s'opère en début de déformation (cf l'équation 3.46 exprimée par [Fond et al. \(1996\)](#)).

3.3.2.1 Réponse macroscopique de la cellule

Pour calculer la réponse mécanique du VER, [Tzika et al. \(2000\)](#) prennent en compte le fait que la continuité de la contrainte nécessite que la contrainte de la cellule $\underline{\underline{\Sigma}}_{VER}$ soit égale à la contrainte macroscopique appliquée $\underline{\underline{\Sigma}}$. A savoir que

$$\underline{\underline{\Sigma}} = \underline{\underline{\Sigma}}_{VER} = \frac{1}{V_{VER}} \int_{V_{VER}} \underline{\underline{\Sigma}}(x) dV \quad (3.65)$$

avec \underline{x} le vecteur position d'un point arbitraire dans la configuration déformée, $\underline{\underline{\Sigma}}(x)$ le tenseur de Cauchy au même point et V_{VER} le volume déformé du VER. Etant donné que $div \underline{\underline{\Sigma}} = 0$ de l'équilibre et $grad \underline{x} = \underline{I}$, le tenseur de Cauchy peut alors être écrit comme

$$\underline{\underline{\Sigma}}(x) = sym [(div \underline{\underline{\Sigma}}) \otimes \underline{x} + \underline{\underline{\Sigma}}(grad \underline{x})] = sym [grad (\underline{\underline{\Sigma}} \underline{x})] \quad (3.66)$$

En utilisant cette relation et le théorème de la divergence, l'intégrale sur le volume de l'équation 3.65 devient une intégrale sur une surface :

$$\underline{\underline{\Sigma}}_{VER} = \frac{1}{2V_{VER}} \int_S (\underline{x} \otimes \underline{t} + \underline{t} \otimes \underline{x}) dS \quad (3.67)$$

où $\underline{t} = \underline{\underline{\Sigma}} \underline{n}$ est le vecteur de traction appliqué à un point x arbitraire sur la frontière S de la configuration déformée du VER. De plus, le volume déformé du VER est donné par

$$V_{VER} = \int_S \underline{x} \cdot \underline{n} dS \quad (3.68)$$

avec \underline{n} la normale extérieure de l'aire dS . Le champ lointain de contraintes peut être simplement calculé en utilisant l'équation 3.67 à partir des forces de réaction aux nœuds le long de la frontière de la cellule. De la même manière, le gradient de déformation macroscopique, $\underline{\underline{E}}$, est obtenu grâce à

$$\underline{\underline{E}} = \underline{\underline{R}} \underline{\underline{U}} = \underline{\underline{V}} \underline{\underline{R}} = \underline{\underline{I}} + \frac{1}{V_0} \int_{V_0} Grad \underline{u}(\underline{y}) dV_0 = \underline{\underline{I}} + \frac{1}{V_0} \int_{V_0} \underline{u} \otimes \underline{n}_0 dS_0 \quad (3.69)$$

où \underline{y} est le vecteur position d'un point arbitraire dans la configuration de référence, $\underline{u}(\underline{y})$ le déplacement de ce point, V_0 le volume du VER non déformé, S_0 la surface limite du VER non déformé et \underline{n}_0 le vecteur normal extérieur d'un élément de cette surface dS_0 . Enfin, pour les déformations telles que $\underline{\underline{R}} = \underline{\underline{I}}$, la déformation macroscopique logarithmique appliquée, $\underline{\underline{E}}$, peut être calculée à partir de

$$\underline{\underline{E}} = \ln \underline{\underline{U}} = \ln \underline{\underline{V}} \quad (3.70)$$

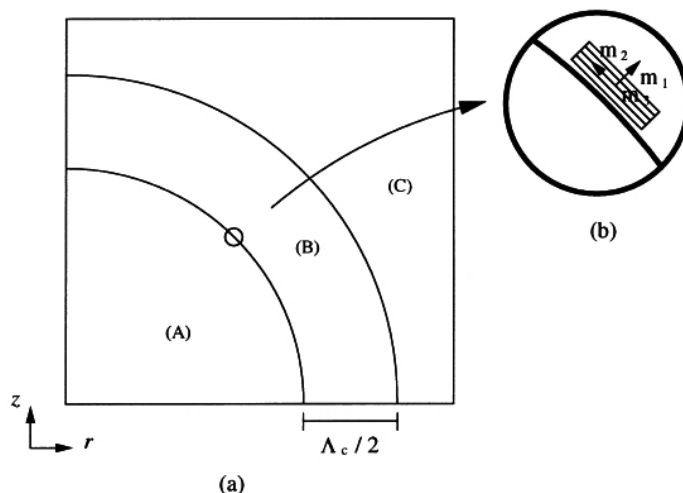


FIGURE 3.29 – (a) Schéma du modèle proposé d'un matériau composé de la particule (A) de la matrice transcristallisée (B) et de la matrice isotrope orientée aléatoirement (C); (b) directions locales du matériau près de l'interface particule-matrice (les lignes parallèles indiquent l'orientation des plans des liaisons hydrogènes par rapport à l'interface) (Tzika et al. 2000).

3.3.2.2 Comportement de la matrice

Le comportement de la matrice dépend principalement de la distance interparticulaire considérée Λ . Tzika *et al.* (2000) s'intéressent donc plus particulièrement aux deux cas limites que sont $\Lambda \gg \Lambda_c$ et $\Lambda \leq \Lambda_c$. Lorsque $\Lambda \gg \Lambda_c$, la matrice est considérée isotrope et modélisée en utilisant un modèle constitutif développé pour les polymères vitreux par Boyce *et al.* (1988), Arruda et Boyce (1993). Le PA de l'étude étant approximativement constitué d'une phase amorphe de 60%, le modèle de Boyce et Arruda rend bien compte du comportement de la matrice. Dans le cas contraire, $\Lambda \leq \Lambda_c$, la matrice adopte un comportement anisotrope à la fois dans le domaine élastique et plastique. Tzika *et al.* (2000) se basent sur les travaux et résultats expérimentaux de Lin et Argon (1992) (corrélation entre le PA-6 et un cristal simple) pour simuler l'élasticité anisotrope ainsi que sur ceux de Hill (1947) concernant la plasticité anisotrope en modélisant la réponse plastique du matériau orienté par le critère d'écoulement anisotrope de Hill.

3.3.2.3 Directions locales du matériau

Pour définir les directions locales du matériau, Tzika *et al.* (2000) utilisent un système de vecteurs dans un repère cartésien $\{\underline{m}_1, \underline{m}_3, \underline{m}_3\}$ qui coïncident avec les axes principaux de l'anisotropie (figure 3.29). Par exemple, lorsque $\Lambda > \Lambda_c$, $\underline{m}_1(y)$ suit la direction des lamelles orientées (perpendiculairement à l'interface matrice-particule). Lorsque $\Lambda \leq \Lambda_c$, les lamelles subissent une rotation afin de rencontrer les lamelles des particules proches; $\underline{m}_1(y)$ en fait alors de même. L'utilisation d'un repère local $\{\underline{m}_1, \underline{m}_3, \underline{m}_3\}$ pour chaque élément est obtenu en appliquant des analyses de flux de chaleur.

Remarque 3.11 Les auteurs appliquent des analyses de transfert de chaleur et de contraintes sur le même maillage et définissent le vecteur $\underline{m}_1(\mathbf{y})$ parallèle au vecteur de flux de chaleur à chaque point d'intégration. La figure 3.30 présente le problème de transfert de flux à résoudre pour obtenir le résultat obtenu figure 3.31. Les frontières devant être perpendiculaires au vecteur $\underline{m}_1(\mathbf{y})$, c'est-à-dire les frontières AE, BG et GH sont soumises à deux températures constantes T_L et T_H . Celles devant être parallèles avec $\underline{m}_1(\mathbf{y})$ (AB et EH) sont adiabatiques.

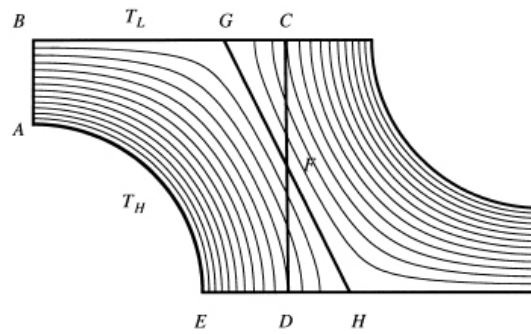


FIGURE 3.30 – Analyse des flux de chaleur dans le modèle SA (Tzika et al. 2000) : les lignes épaisses décrivent les frontières du VER ; les lignes de faible épaisseur correspondent aux isothermes obtenues après analyse.

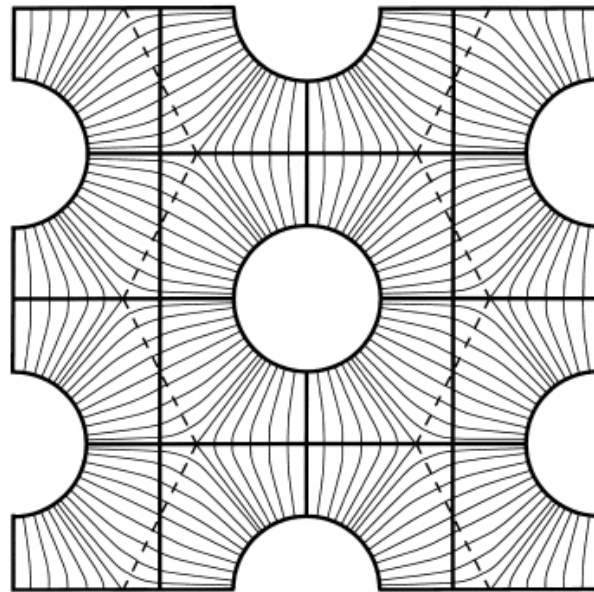


FIGURE 3.31 – Schéma de la texture pour $\Lambda < \Lambda_c$ obtenue par le modèle SA (Tzika et al. 2000) : les lignes épaisses décrivent les frontières du VER ; les lignes de faible épaisseur correspondent aux directions de croissance des lamelles.

3.3.2.4 Conditions de chargement

Le paramètre triaxial Σ_t est le rapport de la contrainte hydrostatique moyennée de la cellule $\bar{\Sigma}_{kk}/3$ par la contrainte équivalente moyenne de la




cellule $\bar{\Sigma}_{eq}$ tel que

$$\Sigma_t = \frac{\bar{\Sigma}_{kk}}{3\bar{\Sigma}_{eq}} = \frac{(2\bar{\Sigma}_{rr} + \bar{\Sigma}_{zz})}{3|\bar{\Sigma}_{zz} - \bar{\Sigma}_{rr}|} \quad (3.71)$$

3.3.2.5 Résultats

Les auteurs mettent en évidence que le comportement macroscopique et les micromécanismes sous-jacents dépendent fortement de la morphologie de la matrice, de la fraction volumique d'élastomères et du taux de triaxialité appliqué. Pour ce faire, ils ont ainsi développé trois modèles distincts selon la proportion de matériau orienté comme résumé par le tableau 3.1 : le modèle AM où l'intégralité de la matrice est considérée comme anisotrope ; le modèle IM où cette fois la matrice est isotrope et un cas intermédiaire, modèle PAM, où la matrice est scindée en deux régions : anisotrope autour des particules et isotrope ailleurs telle que la zone anisotrope soit égale à 5% du volume.

TABLEAU 3.1 – Acronymes et symboles utilisés par Tzika et al. (2000).

Description du modèle	Acronyme	Symbole
SA-Isotropic Matrix model	SA-IM	
SA-Anisotropic Matrix model	SA-AM	
SA-Partially Anisotropic Matrix model	SA-PAM	

La figure 3.32 présente les cartographies de vitesse de déformation plastique équivalente normalisée par la vitesse de déformation macroscopique $\dot{\epsilon}_{eq}^p / \dot{\bar{E}}_{eq}$ où $\bar{E}_{eq} = \frac{2}{3} [\bar{E}_{zz} - \bar{E}_{rr}]$ à différents taux de déformation macroscopique \bar{E}_{zz} . Dans le cas du modèle SA-IM, la plasticité apparaît à l'équateur des particules d'élastomères en raison de la concentration des contraintes à cet endroit. La déformation macroscopique augmentant, la déformation plastique se concentre en bandes qui vont d'une particule à l'autre indiquant un cisaillement interparticulaire de la matrice. Considérant le modèle SA-AM, on s'aperçoit que la plasticité ne suit pas le même déroulement. En effet, plutôt que de s'amorcer à l'équateur, celle-ci se manifeste dans la matrice à la diagonale par rapport à l'interface particule-matrice et forme plusieurs bandes de cisaillement distinctes. Ces bandes sont formées dans des régions où la force de cisaillement est minimisée par les orientations préférentielles. Enfin concernant le dernier modèle SA-PAM, l'évolution de la plasticité est une combinaison des évolutions des deux premiers modèles. La déformation plastique de la portion anisotrope s'initie loin de l'interface et se propage le long de directions perpendiculaires aux droites reliant les centres des particules voisines par le biais de multiples bandes de cisaillement. Simultanément, la plasticité dans les régions isotropes se révèle à l'équateur des particules et se propage selon une bande unique rejoignant les particules voisines.

Tzika et al. (2000) observent que les mécanismes de déformation locaux dans les modèles IM et AM semblent indépendants de la fraction volumique d'élastomères. Cependant, lorsque que le volume de la matrice

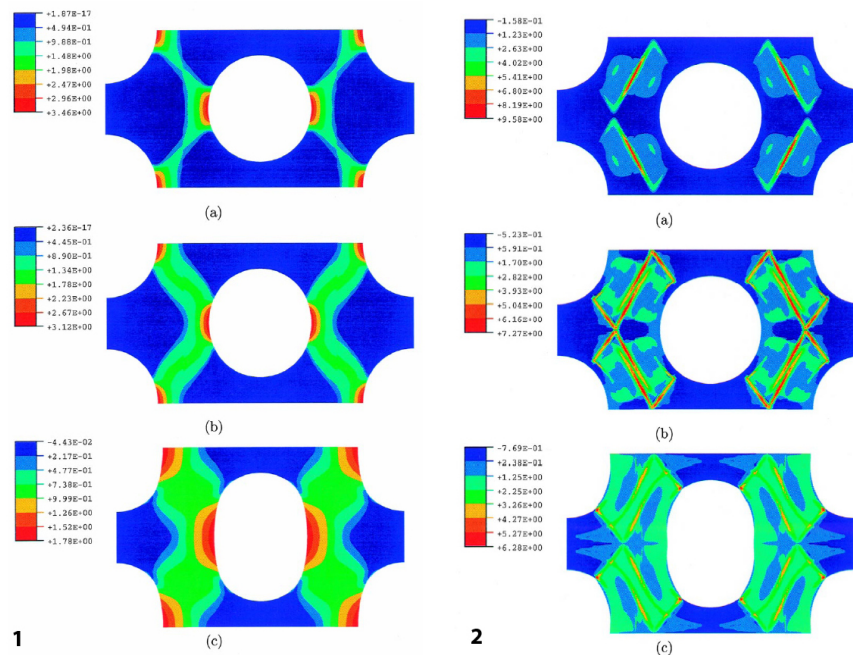


FIGURE 3.32 – Cartographies de la vitesse de déformation plastique équivalente $\dot{\epsilon}_{eq}^p / \dot{\underline{E}}_{eq}$ pour 2 des 3 modèles (1. SA-IM; 2. SA-AM) à : (a) $\underline{E}_{zz} = 0.02$; (b) $\underline{E}_{zz} = 0.03$; (c) $\underline{E}_{zz} = 0.0$ (Tzika et al. 2000).

diminue, cela tend à accélérer la succession des évènements de déformation locale. De plus, l'augmentation de la fraction volumique de particules résulte dans les deux cas à une diminution de la contrainte macroscopique, diminution équivalente pour les deux modèles.

Tzika et al. (2000) montrent également que la présence d'un fort taux de triaxialité entraîne une diminution du renforcement du PA-6. Un adoucissement prononcé de la contrainte déviatorique est mis en valeur lorsque la triaxialité augmente; ceci est un résultat bien connu concernant la plasticité des matériaux isotropes poreux (Gurson 1977). La triaxialité augmentant, les bandes de cisaillement apparaissent à des déformations plus faibles.

3.3.2.6 Conclusions

Les travaux de Tzika et al. (2000) permettent ainsi de mettre en évidence le fait que la déformation plastique des systèmes à morphologie altérée s'amorce et se propage différemment si on la compare à la déformation apparaissant dans des matrices isotropes. Lorsque $\Lambda > \Lambda_c$, l'orientation préférentielle des chaînes moléculaires parallèlement à l'interface particule-matrice implique une réponse macroscopique plus rigide et plus élevée que celle obtenue dans le cas d'une matrice isotrope. Lorsque $\Lambda \leq \Lambda_c$, la déformation plastique change localement que cela soit en terme d'amorçage ou de propagation. En effet, la matrice se déforme plastiquement à travers des bandes de cisaillement distinctes plutôt qu'une bande de cisaillement unique comme dans le cas des matrices isotropes. Ces modifications de micromécanismes ont très peu d'influence

sur la réponse globale macroscopique du matériau en traction uniaxiale. Leur influence s'accroît dans des conditions à triaxialité plus importante.

3.3.3 Le modèle de van Dommelen

3.3.3.1 Présentation de l'étude

L'étude de [van Dommelen et al. \(2003\)](#) est dans la continuité des travaux menés par [Tzika et al. \(2000\)](#). En effet, les auteurs s'intéressent également aux micromécanismes de déformation liés aux orientations préférentielles du PA-6 observées par [Muratoğlu et al. \(1995c;a\)](#). Ainsi ils considèrent une matrice anisotrope répondant au critère de plasticité anisotrope de Hill ([Hill 1947](#)) associé à une contrainte d'écoulement dépendant de la vitesse de déformation (équation 3.72). Les particules de caoutchouc sont supposées cavitées et sphériques et le système contient une distance caractéristique définie comme le rapport de la distance moyenne entre les particules et une distance critique. Dans le calcul, cette longueur caractéristique consiste en l'épaisseur de la couche anisotrope autour des particules.

$$\sigma_y = \sigma_{y_0} \left\{ h\tilde{\epsilon}^p + q^{1/n} \left[1 + \left(\frac{\dot{\tilde{\epsilon}}^p}{q\dot{\gamma}_0} \right)^2 \right]^{1/(2n)} \right\} \quad (3.72)$$

avec

$$\tilde{\epsilon}^p = \int_0^t \dot{\tilde{\epsilon}}^p dt, \quad \dot{\tilde{\epsilon}}^p = \frac{\text{tr}(\underline{\underline{\sigma}} \cdot \underline{\underline{\dot{\epsilon}}^p})}{\sigma_y} \quad (3.73)$$

où σ_{y_0} est la contrainte d'écoulement initial, h le paramètre définissant l'écroutissage linéaire, n l'exposant de la vitesse de déformation et $\tilde{\epsilon}^p$ la mesure de la déformation plastique.

Comme suggéré par [Socrate et Boyce \(2000\)](#), [Tzika et al. \(2000\)](#), [van Dommelen et al. \(2003\)](#) utilisent un VER axisymétrique avec des conditions d'anti-symétrie. Cependant, se basant sur les conclusions apportées par [Smit et al. \(1999\)](#), les auteurs utilisent également un VER en déformation plane représentant un système de particules. Enfin pour valider, ils considèrent également un modèle 3D. Les trois modèles sont présentés figure 3.26 et répondent chacun à des conditions aux limites spécifiques.

Les auteurs s'intéressent à l'étude du potentiel d'anisotropie locale dans le cadre de polymères semi-cristallins renforcés par dispersion d'une seconde phase d'élastomères. Plus précisément, ils étudient la sensibilité aux directions d'anisotropie locale et comparent les modèles SA ([Tzika et al. 2000](#)) et ID (irregularly dispersed soit le VER en déformation plane avec des particules dispersées) et tentent de valider par l'intermédiaire d'un modèle 3D. A travers les constantes R_{ij} intervenant dans le critère de Hill, les auteurs font varier la résistance plastique dans les directions locales de cisaillement 12 et 13 (la direction 1 est celle, à l'interface particule-matrice, perpendiculaire à l'interface); la réduction est contrôlée par le paramètre ajustable ζ . En effet, $R_{ij} = 1$ pour $i = j$, $R_{23} = 1$ et R_{12} et R_{13} sont pris égal à $1/\zeta$. Enfin les auteurs étudient deux échelles : la plus petite consiste en un matériau anisotrope où la distance interparticulaire est inférieure à la distance interparticulaire critique définie par [Muratoğlu et al.](#)

(1995c;a) ; la plus grande est le cas contraire où la matrice est considérée comme isotrope.

3.3.3.2 Conclusions

Il apparaît qu'à grande échelle (grande distance interparticulaire), la déformation plastique se localise sur un chemin spécifique à travers la matrice entraînant un comportement fragile quand pour la plus petite échelle, des ponts de cisaillement entre les particules se créent caractérisant un comportement macroscopique renforçant. Ils mettent en évidence l'effet de l'anisotropie locale sur le champ de contrainte hydrostatique. Cet effet est caractérisé par la délocalisation de la plus grande contrainte triaxiale de traction de l'équateur de la particule (où les normales à la surface sont perpendiculaires à la direction de chargement) vers la région polaire de la particule (où les normales sont cette fois alignées avec la direction de chargement). Par conséquent, les contraintes principales maximales sont considérablement réduites à l'équateur.

van Dommelen *et al.* (2003) confirment ainsi le mécanisme de renforcement identifié par Muratoğlu *et al.* (1995a;c) et donc insistent sur l'existence d'une échelle critique qui coïncide avec l'épaisseur d'une couche anisotrope de la matrice enveloppant les particules dispersées. Les auteurs définissent alors trois conditions pour obtenir un bon renforcement par l'intermédiaire de ce mécanisme :

- un matériau composé de particules bien dispersées dont la distance interparticulaire est inférieure à la distance critique de la matrice ;
- un matériau localement anisotrope dont la direction principale 1 est radialement orientée par rapport à la surface de la particule la plus proche ;
- une résistance à l'écoulement en cisaillement dans les directions locales 12 et 13 suffisamment basse.

Deuxième partie

Les matériaux

LE POLYAMIDE 11 NON VIEILLI

4

SOMMAIRE

4.1	GÉNÉRALITÉS	121
4.2	SPECTROMÉTRIE MÉCANIQUE	122
4.2.1	Dynamic Mechanical Analysis	122
4.2.2	Procédure expérimentale	122
4.2.3	Résultats	122
4.3	CRYOFRACTOGRAPHIE	123
4.3.1	Principe de la cryofractographie	123
4.3.2	Observation du PA11	124

Ce chapitre s'intéresse à la description des propriétés mécaniques du matériau de base de l'étude : le polyamide 11. Afin de comprendre au mieux les mécanismes de déformation, d'endommagement ou encore de rupture du polyamide plastifié et vieilli, voire plastifié, renforcé et vieilli, il apparaît naturel de porter, au préalable, l'attention sur le polyamide 11 neuf.

4.1 GÉNÉRALITÉS

Le matériau de l'étude est fourni par ARKEMA ; il a été extrudé sans plastifiant et n'a pas été soumis au vieillissement. Le polyamide 11 est un matériau qui blanchit sous charge multiaxiale, signe de l'existence d'un endommagement par cavitation qui génère également une variation volumique. De plus, pour ce type de matériau, on suppose que la croissance et coalescence des cavités préexistantes précèdent probablement la rupture finale. Le tableau 4.1 résume quelques propriétés clés du PA11.

TABLEAU 4.1 – Quelques propriétés clés du polyamide 11 - Données fournies par ARKEMA.

Température de fusion	184 – 188°C
Taux de cristallinité	20 – 25%
Température de transition vitreuse (état sec)	50°C (DSC)
Module de Young	1500 MPa
Coefficient de Poisson	0.42

Remarque 4.1 *Il apparaît que la zone de température de transition vitreuse du PA11 se situe aux alentours de 50°C. Ceci implique que, par exemple, dans le cas d'essais réalisés à température ambiante, l'auto-échauffement du polymère dans une zone à forte déformation plastique, pourrait aisément engendrer un changement d'état local et donc une modification des propriétés mécaniques. En effet, en supposant une température ambiante de 20°C, il ne suffit que d'une augmentation locale de la température de 30°C pour franchir le seuil de température de transition vitreuse.*

Rittel (2000) s'est intéressé à l'augmentation de chaleur au sein de deux polymères vitreux : le polycarbonate (PC) et le polyméthylméthacrylate (PMMA) (figure 4.1). Il montre qu'un polycarbonate (PC) soumis à un chargement monotone en compression, à une vitesse de déformation de 0.14 s^{-1} et à 0°C , subit une augmentation de température de l'ordre de 25°C . Soumis à des conditions similaires, l'augmentation de la température pour du PMMA est légèrement inférieure (20°C environ).

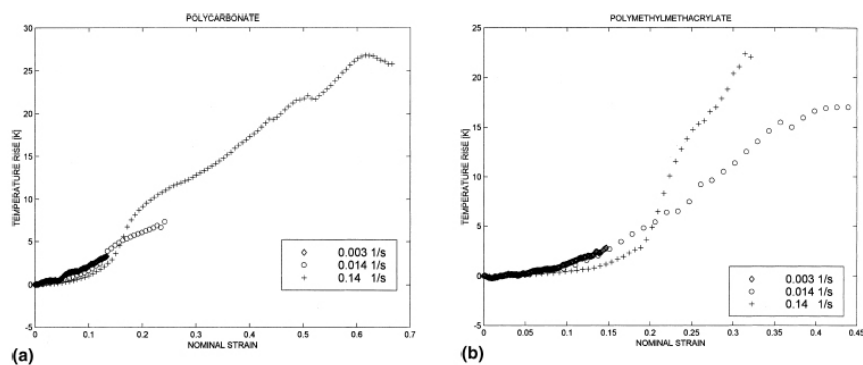


FIGURE 4.1 – Evolution de la température en cœur d'échantillons en fonction de la déformation lors d'essais de compression (Rittel 2000) : (a) PC ; (b) PMMA.

4.2 SPECTROMÉTRIE MÉCANIQUE

4.2.1 Dynamic Mechanical Analysis

L'analyse dynamique mécanique (Dynamic Mechanical Analysis ou DMA) est une technique expérimentale couramment utilisée pour étudier les propriétés des polymères par la détermination de paramètres intrinsèques au matériau comme la zone de températures de transition vitreuse, le module de Young complexe, le coefficient de Poisson ou encore sa dépendance à la fréquence. La technique consiste à solliciter un échantillon sur une large plage de températures et de fréquences et peut être réalisée en traction (éprouvette lisse, barreau par exemple) ou en compression sur un pion, l'essentiel étant de connaître la valeur de la section de l'échantillon de manière précise. Elle peut être effectuée grâce à un analyseur dynamique mécanique (ou viscoanalyseur) ou une machine de traction de type Instron ou MTS.

Le module complexe se compose du module de conservation E' et du module de perte E'' tel que $E = E' + iE''$ et est ainsi obtenu en calculant le module $\sqrt{(E')^2 + (E'')^2}$. Le facteur de perte est défini grâce au rapport des modules de perte et de conservation tel que $\tan \delta = E''/E'$.

4.2.2 Procédure expérimentale

Les essais de DMA ont été effectués sur une machine de traction de type Instron avec une cellule de charge de 10 kN. Ainsi, l'échantillon qui consiste en un barreau et dont la section était connue, fut soumis à un déplacement sinusoïdal connu dont la valeur moyenne est positive. L'amplitude du signal est choisie de telle sorte que nous nous assurons de rester dans le domaine purement élastique du matériau (par exemple pour le PMMA, la déformation imposée est inférieure à 0.5%); ici, elle est prise égale à 0.5 mm pour une longueur $l_0 = 100$ mm soit une déformation axiale de 0.5%. Pour s'assurer que le matériau ne subit pas de compression en cours d'essai, une précontrainte considérée négligeable est imposée de l'ordre de 0.25 MPa. Les essais sont réalisés tous les 10°C sur une plage de températures comprises entre -60°C et +90°C pour trois fréquences : 0.05, 0.5 et 5 Hz. Les déformations mesurées par les capteurs couplées aux valeurs de la force et du déplacement sont ensuite traitées par l'intermédiaire d'un programme maison développé par R. Schirrer et D. Favier, et nous permettent d'accéder aux paramètres du matériau.

4.2.3 Résultats

Les résultats présentés ici sont dans le cas d'un barreau de PA11 avec colorant extrait d'un tube extrudé sans plastifiant. D'autres essais ont été réalisés sur des bandes extrudées de PA11 avec et sans colorant afin de s'affranchir de tout effet du colorant et du processus de mise en œuvre. Ces résultats sont présentés en annexe B et mettent en évidence que la présence ou absence de colorant n'a aucun effet sur les paramètres intrinsèques du matériau.

La figure 4.2 présente les évolutions du module d'Young et du facteur de perte en fonction de la température et de la fréquence. Ces deux courbes permettent de mettre en lumière le caractère visqueux du matériau qui semble relativement sensible à la vitesse de sollicitation; des essais de traction uniaxiale, décrits au cours du chapitre 6, confirmeront cette tendance du matériau.

Ce type d'analyse donne également la possibilité d'accéder à la température de transition vitreuse du polymère considéré. Il s'avère qu'elle serait de l'ordre de 50°C pour le PA11. Cette valeur obtenue est donc similaire à la valeur mesurée par ARKEMA par calorimétrie différentielle (differential scanning calorimetry ou DSC).

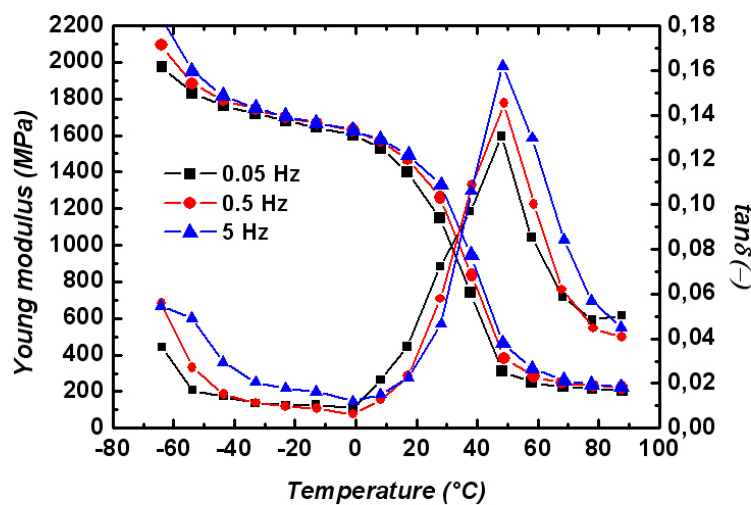


FIGURE 4.2 – Evolutions du module de Young et du facteur de perte $\tan\delta$ en fonction de la température et de la fréquence obtenues par analyse DMA sur du PA11 neuf.

La majorité des essais de l'étude concernant le polyamide 11 ont été faits à 0°C. Comme le montre la courbe 4.2, cette température est inférieure à la température de transition ductile-fragile.

4.3 CRYOFRACTOGRAPHIE

4.3.1 Principe de la cryofractographie

Afin de révéler la microstructure initiale d'un matériau, une des techniques utilisées est la cryofractographie. Cette technique consiste à amorcer une rupture fragile rapide ne laissant pas le temps au matériau de se déformer. L'échantillon est d'abord refroidi dans de l'azote liquide à -196°C (une lame de rasoir est au préalable fixée dans l'échantillon dans le but de pouvoir le casser plus rapidement dès sa sortie du bain d'azote). Aux très basses températures, les chaînes macromoléculaires sont quasiment figées. Par conséquent, les faciès de rupture révèlent exactement la microstructure initiale du polymère. En utilisant cette technique couplée à un microscope électronique à balayage à effet de champ (MEBFEG) pour

observer le faciès de PA11 neuf, [Lefebvre \(2002\)](#) a mis en évidence une microstructure sphérolitique d'une taille de 5 microns de diamètre environ (figure 4.3).

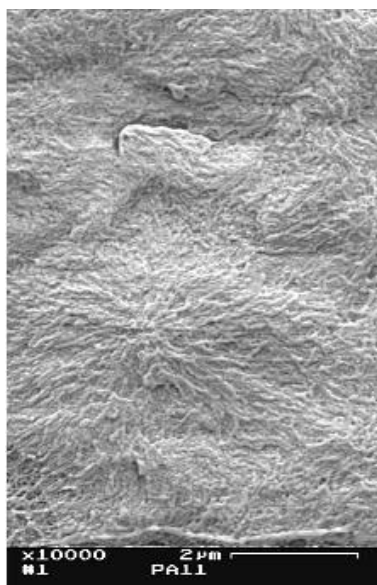


FIGURE 4.3 – Observation au microscope électronique à effet de champ après attaque chimique d'une surface rompue dans l'azote liquide de PA11 neuf (*10000) ([Lefebvre 2002](#)).

4.3.2 Observation du PA11

Des faciès de polyamide 11 neuf obtenus par cryofractographie ont été observés. Ces faciès n'ont pas permis d'obtenir des observations de la structure sphérolitique (aucune attaque chimique n'a été effectuée), mais ont permis de mettre en valeur l'existence de cavités initiales dans le matériau.

Comme le montre la figure 4.4, il semble que deux populations de cavités coexistent : une première située dans une gamme de taille de l'ordre du micron et une seconde de taille nettement inférieure, de l'ordre de quelques centaines de nanomètres. Dans ses travaux, [Lafarge \(2004\)](#) avait émis le même constat après observation de faciès obtenus par cryofractographie sur du PolyVinylDiFluore (PVDF). Concernant les cavités de 1 – 2 μm dans le PVDF, [Castagnet \(1998\)](#) relie leur existence aux conditions d'extrusion et de recristallisation. Concernant les cavités plus petites, la littérature ne les mentionne pas.

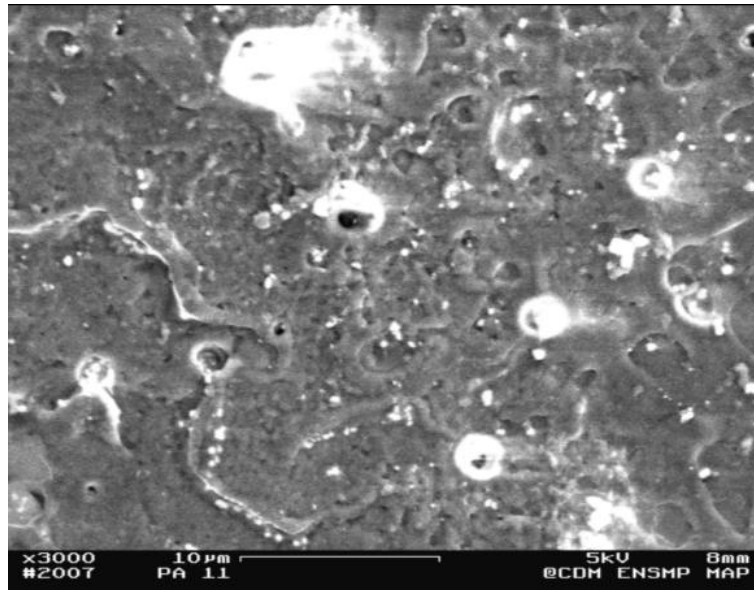


FIGURE 4.4 – Observation au microscope électronique à balayage d'une surface rompue dans l'azote liquide de PA11 neuf (*3000) mettant en évidence l'existence d'une porosité initiale.

Le traitement des images MEB par analyse d'images a permis de quantifier le taux de porosité initiale. Cette porosité initiale, notée f_0 , semble être de l'ordre de 1% soit du même ordre que le taux décelé par [Doh \(2004\)](#) dans le cas du PVDF. Cependant, bien qu'étant de l'ordre du pourcent, cette porosité initiale se doit d'être considérée. En effet, le matériau s'endommageant par cavitation, il est moins coûteux en énergie de faire croître des cavités que de les créer. Cependant, la présence initiale de vides n'empêche en rien la germination de nouvelles cavités.

LES MATÉRIAUX VIEILLIS

5

SOMMAIRE

5.1	LES MATÉRIAUX	129
5.1.1	Description des matériaux	129
5.1.2	Description des renforts	129
5.1.3	Le vieillissement	130
5.2	SPECTROMÉTRIE MÉCANIQUE	130
5.2.1	Introduction	130
5.2.2	Résultats	130
5.3	OBSERVATIONS MICROSCOPIQUES	135
5.3.1	Cryofractographie	135
5.3.2	Distances interparticulaires	137

APRÈS la présentation de la matrice que constitue le polyamide 11, ce chapitre présente trois autres matériaux vieillis et plastifiés, dont deux comportent une seconde phase de type élastomère. Tout comme le chapitre précédent, il s'agit d'une description globale des matériaux, décrivant à la fois leur formulation et leurs propriétés mécaniques intrinsèques mises en évidence par spectrométrie mécanique.

5.1 LES MATÉRIAUX

5.1.1 Description des matériaux

Les matériaux ont été fournis par ARKEMA soit sous forme de tube extrudé, soit sous forme de plaque extrudée et possèdent une matrice de polyamide 11, matériau décrit précédemment (chapitre 4). Les trois matériaux ont été vieillis pour le contexte de l'étude et sont décrits comme suit

- "aged P40" est un polyamide 11 plastifié. Le taux initial de plastifiant est de 13% et devient égal à 5% après vieillissement ;
- "aged P20 EPR" est plastifié à 3% (6% avant vieillissement) auquel a été ajoutée une seconde phase élastomérique. Il s'agit, plus précisément de 10% d'EPR dont le diamètre des particules avoisine 200 – 300 nm ;
- "aged P20 NBR" est également plastifié à 3% (6% avant vieillissement) et est renforcé par 10% d'NBR. Le diamètre des particules de NBR est supérieur à celui des nodules d'EPR et atteint 500 nm.

5.1.2 Description des renforts

Le tableau 5.1 résume les principales caractéristiques des deux élastomères utilisés afin d'améliorer la ductilité du polyamide 11 : EPR (Ethylene-Propylene Rubber) et NBR (Carboxylated Nitrile Rubber).

TABLEAU 5.1 – Propriétés de l'Ethylene-Propylene and Nitrile Butadiene Rubber (EPR et NBR) (IISRP 2005), (RRP 2005).

	EPR	NBR
Densité relative, gm/ml	0.855 – 0.88	0.98
Dureté, Shore A Durometer	30A à 95A	50A à 90A
Contrainte à rupture, MPa	7 à 21	6.9 à 24.1
Elongation, %	100 à 600	250 à 600
Compression Set B, %	20 à 60	juste à bien
Température d'utilisation, °C	–50 à +160	30 à 150
Résistance à la déchirure	juste à bien	excellent
Résistance à l'abrasion	bien à excellent	excellent
Résilience	juste à bien	juste à bien

La figure 5.1 présente leurs formulations chimiques respectives.

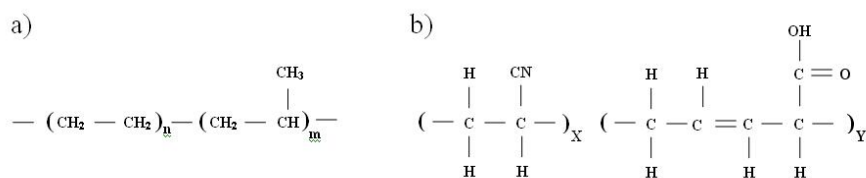


FIGURE 5.1 – Formulations des élastomères : (a) EPR ; (b) NBR.

5.1.3 Le vieillissement

Comme indiqué précédemment, les trois matériaux considérés ont été vieillis pour le contexte de l'étude. Les conditions de vieillissement sont les suivantes : 7 jours dans l'eau à pH 7, à une température de 140°C et à une pression de quelques bars (pression de la vapeur d'eau à 140°C). Les mécanismes du vieillissement ont été décrits au cours du chapitre 1. On peut tout de même rappeler que le vieillissement engendre une modification des propriétés mécaniques et/ou des caractéristiques physico-chimiques du polymère : augmentation du taux de cristallinité, équivalent à l'obtention d'un matériau plus raide, et une réduction du taux de plastifiant initialement contenu par le matériau (ATOFINA 2002).

5.2 SPECTROMÉTRIE MÉCANIQUE

5.2.1 Introduction

Des analyses DMA ont été effectuées sur les matériaux "aged P40" et "aged P20 EPR" usinés en forme d'éprouvettes lisses à partir de bandes extrudées d'épaisseur 2 mm. Les essais ont été conduits sur une machine Instron, en traction uniaxiale et pour trois fréquences (0.05, 0.5 and 5 Hz). La précontrainte négligeable utilisée est fixée à 0.5 MPa et diffère de celle utilisée dans le cas de la matrice en PA11 pour la simple raison que la section de l'éprouvette est différente (ici la section est plus faible). La plage de température est de -60°C à 90°C avec des mesures effectuées chaque décade ; le temps de stabilisation est fixé à 60 secondes. Les échantillons consistent en des éprouvettes plates sans entaille de longueur $l_0 = 90$ mm et de section $S_0 = 12$ mm * 2 mm. Deux jauges de déformation sont utilisées afin de mesurer les déformations axiale (de l'ordre de 0.5%) et transverse.

5.2.2 Résultats

Les résultats sont présentés sur la figure 5.2. Il s'agit des évolutions du module d'Young et du facteur de perte en fonction de la température pour les trois fréquences étudiées. En dépit de l'ajout de plastifiant, le matériau garde un comportement visqueux. L'augmentation de la fréquence n'a que très peu d'effet sur l'évolution du module de Young. L'effet le plus probant concerne le pic obtenu au niveau de la température de transition vitreuse, pour une fréquence de 5 Hz.

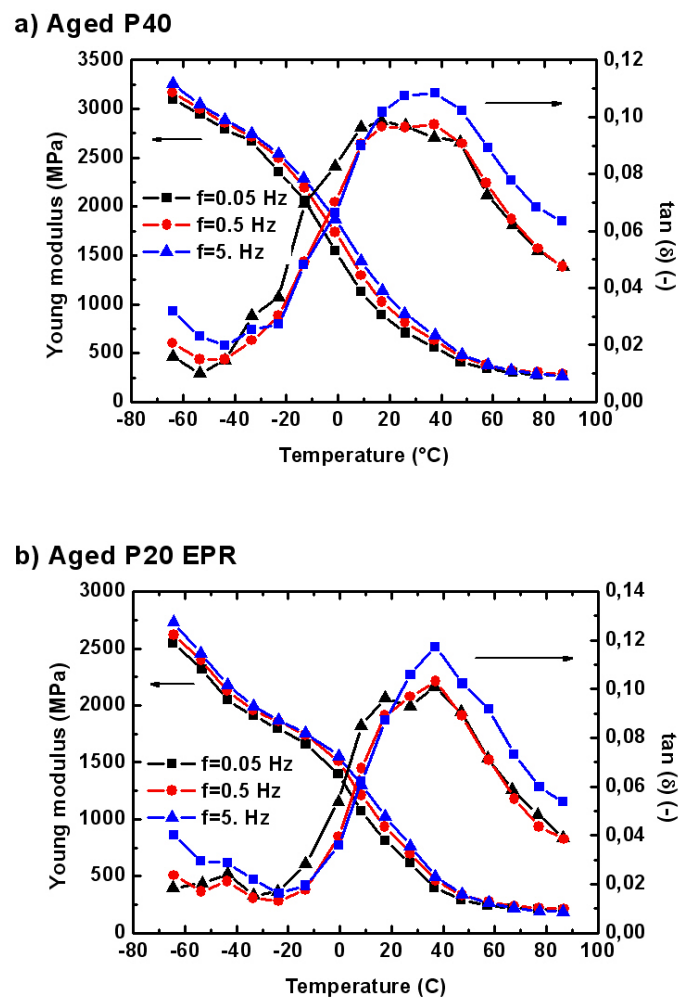


FIGURE 5.2 – Evolutions du module d'Young et du facteur de perte $\tan \delta$ en fonction de la température et de la fréquence obtenues par analyse DMA : (a) "aged P40" ; (b) "aged P20 EPR".

La figure 5.3 présente les évolutions du module d'Young et du facteur de perte pour le polyamide 11 et les deux matériaux vieillissants pour une fréquence de 0.05 Hz (une seule fréquence étant présentée pour des raisons de clarté). Les résultats peuvent être scindés en trois parties :

- de -60°C à -10°C : en dessous de -10°C , le module d'Young du "aged P40" est le plus important ; cela est probablement dû à sa teneur en plastifiant qui a engendré une recristallisation. A -60°C , E_{agedP40} est égal à 3500 MPa lorsque $E_{\text{agedP20 EPR}}$ et E_{PA11} sont respectivement de l'ordre de 2500 MPa et 2200 MPa . Si seulement le PA11 et le "aged P20 EPR" sont considérés, cette étape peut être subdivisée :
 - ◇ de -60 à -45°C : $E_{\text{aged P20 EPR}} \geq E_{\text{PA11}}$
 - ◇ de -45 à -10°C $E_{\text{aged P20 EPR}} \leq E_{\text{PA11}}$

Cela peut peut-être s'expliquer par la transition vitreuse des particules d'EPR qui se situe aux environs de -50°C . En deçà de cette température, les particules d'élastomères se trouvent dans un état

vitreux ce qui pourrait expliquer la rigidité accrue du "aged P20 EPR".

- de -10°C à 40°C : cette plage de températures coïncide avec la plage de températures des transitions vitreuses des trois grades, ce qui tend à expliquer les évolutions constatées. Les évolutions de module d'Young des deux matériaux vieilliss sont quasiment les mêmes mais différent de celle du PA11. En effet, on constate que $E_{\text{aged P40, aged P20 EPR}} \leq E_{\text{PA11}}$
- de 40°C à 90°C : les trois matériaux sont à l'état caoutchoutique avec un module de Young de l'ordre de 300 MPa .

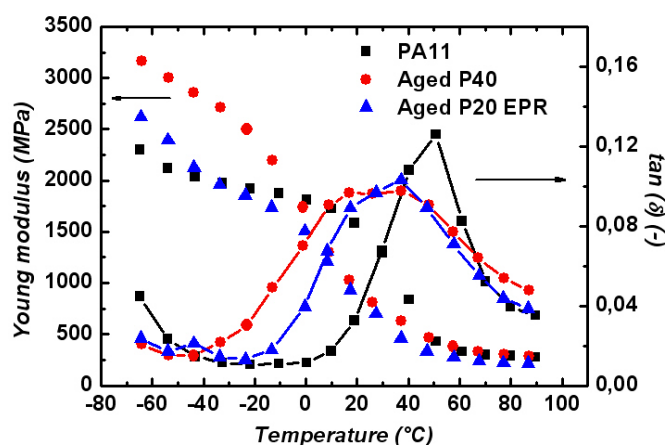


FIGURE 5.3 – Influence du vieillissement et du taux de plastifiant sur le module d'Young et la température de transition vitreuse ($f = 0.05\text{ Hz}$).

Remarque 5.1 *Un effet mineur peut être ajouté aux différentes remarques précédemment effectuées et concerne le plastifiant qui, en dessous d'une température de -40°C , gèle. Le gel du plastifiant engendrerait ainsi une rigidité supplémentaire.*

Il est connu que l'ajout de plastifiant a tendance à réduire la zone de température de transition vitreuse, T_g . En effet, la figure 5.3 met en évidence un décalage de la T_g entre le PA11, dont la T_g a été évaluée par DSC à 50°C , le "aged P40" dont la T_g se situe autour de $20 - 25^{\circ}\text{C}$ et celle du "aged P20 EPR" atteignant $25 - 30^{\circ}\text{C}$. Il peut être considéré comme surprenant de trouver une T_g équivalente pour les deux matériaux vieilliss étant donné que les taux initiaux (avant vieillissement) de plastifiant sont différents.

En effet, pour rappel, avant vieillissement, le P40 contient un taux de plastifiant de 13% soit près de deux fois plus que le P20 EPR dont le taux ne s'élève qu'à 6%. Cependant, il s'avère que la diminution du taux de plastifiant, occasionné par le vieillissement subi par les matériaux, est nettement plus importante pour le P40. Ainsi, après vieillissement, les deux matériaux détiennent un taux de plastifiant équivalent (5% pour le "aged P40" et 3% pour le "aged P20 EPR") ce qui explique probablement le fait qu'ils aient une zone de température de transition vitreuse équivalente.

La T_g du P40 se situe autour de 0°C et augmente de 20°C après le vieillissement. Par contre, la T_g du P20 EPR ne subit que très peu les effets du vieillissement. Cette légère variation de la température de transition vitreuse du P20 EPR, avant et après vieillissement, peut s'expliquer par la faible diminution de son taux de plastifiant.

Remarque 5.2 *Les zones de température de transition vitreuse des deux matériaux vieillis sont très proches de la température ambiante. Ceci implique qu'une variation infime (de quelques degrés) locale de la température due à l'auto-échauffement, à température ambiante, suffit pour franchir le seuil de la transition vitreuse et ainsi générer d'éventuels changements de mécanisme ou de modifier le comportement mécanique du matériau. Même à 0°C, température de la majorité des essais réalisés dans cette étude, il semble assez probable qu'un phénomène de ce type soit rencontré.*

Le tableau 5.2 résume quelques données obtenues suite aux analyses de spectrométrie mécanique.

TABLEAU 5.2 – Résumé de quelques propriétés du PA11, "aged P40" et "aged P20 EPR" obtenues par spectrométrie mécanique.

Matériaux	Taux de plastifiant initial	Taux de plastifiant final	Module d'Young à 0°C avant vieillissement	Module d'Young à 0°C après vieillissement	T _g avant vieillissement	T _g après vieillissement
PA11	(-)	(-)	1700 MPa	(-)	40 – 42°C	(-)
P40	13%	6%	(-)	1700 MPa	0°C	20 – 25°C
P20 EPR	6%	3%	(-)	1500 MPa	25 – 30°C	25 – 30°C

5.3 OBSERVATIONS MICROSCOPIQUES

5.3.1 Cryofractographie

La technique de la cryofractographie est utilisée sur les trois matériaux vieilliss afin de révéler leurs microstructures initiales. Les observations du "aged P40" (figure 5.4) mettent en évidence, tout comme le polyamide 11, la présence de cavités. Ces cavités ont un diamètre de quelques μm et sont donc identiques à celles observées dans le PA11, mais la fraction volumique semble inférieure à 1%.

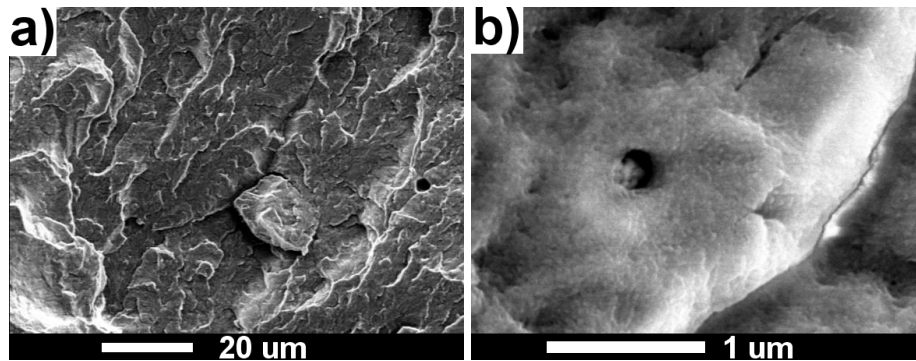


FIGURE 5.4 – Observations MEB d'une surface de "aged P40" obtenue par cryofractographie : (a) $\times 1000$; b) $\times 30000$.

Sur la figure 5.5 présentant la microstructure du "aged P20 EPR", un fort taux de cavités apparaît. Ces cavités possèdent un diamètre de l'ordre de 200 – 300 nm . De plus, les analyses d'images effectuées révèlent une fraction volumique de 10%. Or la taille et la fraction volumique des vides observés coïncident avec la taille et la fraction volumique des nodules initialement injectés (figure 5.6). Il s'avère donc que les trous ne sont que les empreintes de nodules.

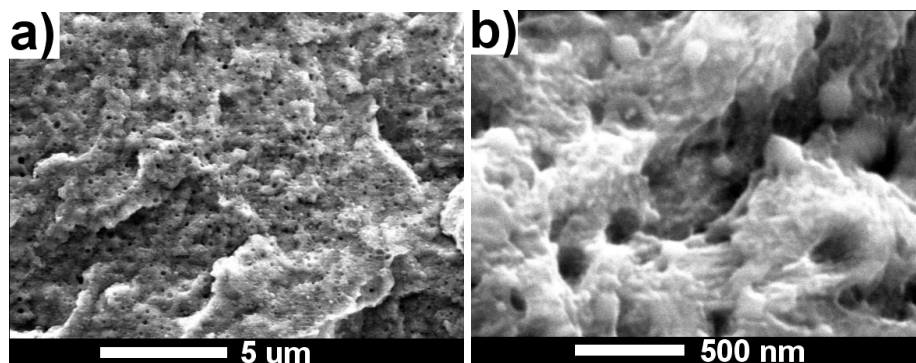


FIGURE 5.5 – Observations MEB d'une surface de "aged P20 EPR" obtenue par cryofractographie : a) $\times 1000$; b) $\times 50000$.

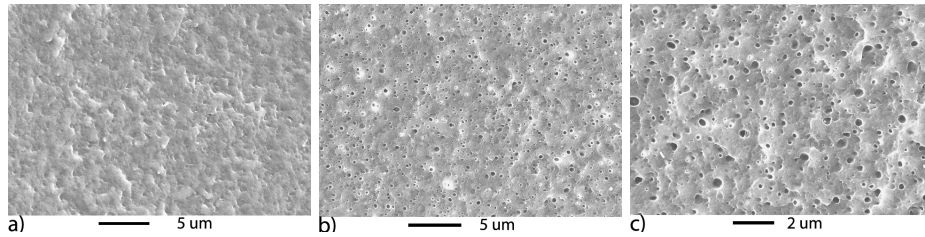


FIGURE 5.6 – Observations MEB d'une surface de "aged P20 EPR" (source : ARKEMA) : (a) avant extraction *4000 ; (b) après extraction *4000 ; (c) *8000.

Remarque 5.3 L'extraction sélective de la phase dispersée s'effectue par le chloroforme à 50°C.

Concernant le "aged P20 NBR", les observations (figure 5.7) mettent en évidence également un taux de cavités important. Ces cavités représentent environ 10% et possèdent un diamètre de 500 nm. Une nouvelle fois, ces données coïncident avec la taille et la fraction volumique des particules de NBR observables sur la figure 5.8. Ces cavités seraient ainsi les empreintes des nodules d'élastomères initialement ajoutés à la matrice de polyamide 11.

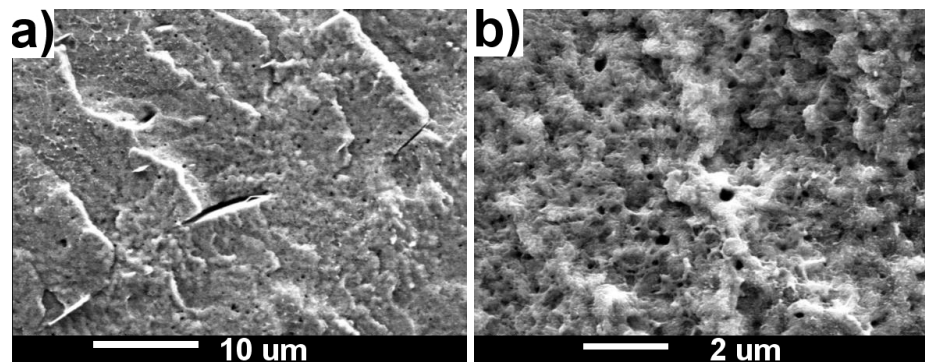


FIGURE 5.7 – Observations MEB d'une surface de "aged P20 NBR" obtenue par cryofractographie : (a) *3000 ; (b) *10000.

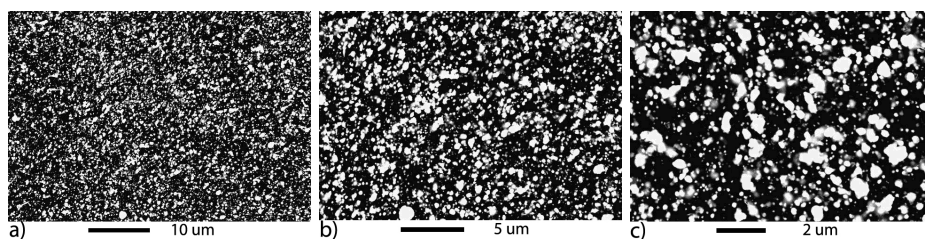


FIGURE 5.8 – Observations MEB d'une surface de "aged P20 NBR" (source : ARKEMA) : (a) *2500 ; (b) *5000 ; (c) *10000.

5.3.2 Distances interparticulaires

Des analyses d'images ont été effectuées par ARKEMA sur la distance interparticulaire dans le cas du P20 EPR, à partir d'un cliché grossissement *8000. Les résultats sont présentés dans le tableau 5.3.

TABLEAU 5.3 – *Mesure de la distance interparticulaire du P20 EPR (source : ARKEMA).*

Nom	Valeur
Nombre	300‡
Moyenne	327.09 nm
Minimum	86.62 nm
Maximum	1010.19 nm
Ecart type	145.07 nm

Troisième partie

Mise en évidence de l'élasto-visco-plasticité

TRACTION UNIAXIALE SUR DES ÉPROUVETTES LISSES

SOMMAIRE

6.1	LA MATRICE : LE POLYAMIDE 11	143
6.1.1	Première série d'essais	143
6.1.2	Seconde série d'essais	144
6.2	LES MATÉRIAUX VIEILLIS	146
6.2.1	Protocole opératoire	146
6.2.2	La matrice plastifiée et vieillie : "aged P40"	147
6.2.3	Avec renforts : "aged P20 EPR"	148
6.3	CONCLUSIONS	149

CE chapitre s'intéresse à la mise en évidence du comportement élasto-visco-plastique des matériaux de l'étude par l'intermédiaire d'essais de traction uniaxiale, à 0°C, sur des éprouvettes lisses obtenues à partir de plaques extrudées. Pour ce faire, différents taux de déformation sont mis en jeu, afin de s'intéresser aux courbes contrainte-déformation. Ce chapitre permet également, de comparer la réponse des matériaux et ainsi, d'étudier l'effet du vieillissement, de l'ajout de plastifiant et également de l'ajout d'une seconde phase élastomère.

6.1 LA MATRICE : LE POLYAMIDE 11

6.1.1 Première série d'essais

6.1.1.1 Protocole opératoire

Les essais de traction uniaxiale sont effectués sur une machine Instron pour les vitesses de déformation axiale suivantes : 0.001, 0.01, 0.1 et 1 s^{-1} . Les vitesses de déformation sont déterminées grâce au déplacement du vérin et en considérant la longueur utile de l'éprouvette. Nous nous intéressons à l'effet de la vitesse de déformation sur le comportement du matériau. Les essais sont réalisés à une température de 0°C . Pour ce faire, une enceinte thermostatique, réglée à la température de consigne par jets d'azote, est nécessaire. Une jauge de déformation est fixée sur l'échantillon afin de mesurer la déformation axiale locale.

Une fois la température de consigne obtenue, l'échantillon est mis en place. Un délai de 20 minutes est alors nécessaire pour s'assurer que l'échantillon atteigne également cette température, non seulement en surface mais également à cœur.

6.1.1.2 Les échantillons

Les éprouvettes sont usinées à partir de bandes extrudées de polyamide 11. L'épaisseur B est de 4 mm , la largeur W est de 10 mm et la longueur de la zone utile théorique L_0 est de 65 mm . La section utile est ainsi de 40 mm^2 (cf figure 6.1).

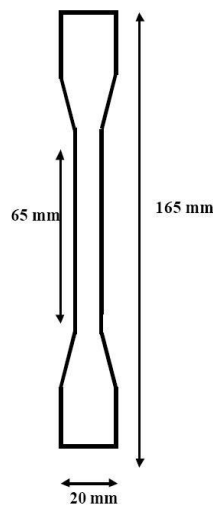


FIGURE 6.1 – Géométrie des éprouvettes lisses.

6.1.1.3 Dispersion des résultats

La figure 6.2 présente l'intégralité des résultats obtenus sous forme de l'évolution de la contrainte nominale en fonction de la déformation nominale axiale mesurée à l'aide du capteur de déformation. Pour rappel, les déformations et contraintes nominales s'obtiennent comme suit :

$$\epsilon_n = \frac{l - l_0}{l_0} \text{ et } \sigma_n = \frac{F}{S_0} \quad (6.1)$$

avec l la longueur déterminée par le capteur, l_0 la longueur de référence du capteur, F la force relevée et $S_0 = B.W$ la section initiale de l'éprouvette.

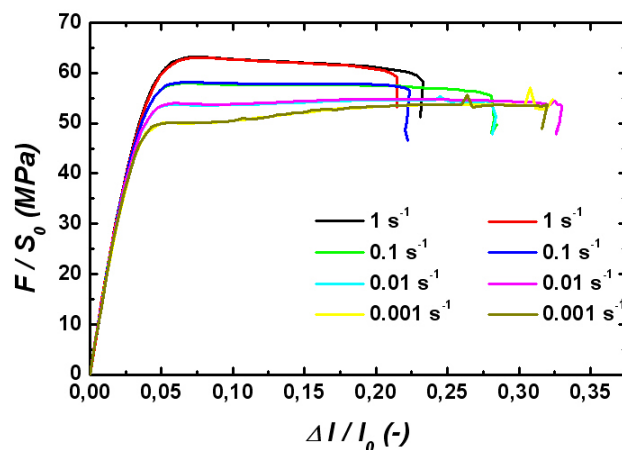


FIGURE 6.2 – Courbes contrainte nominale-déformation nominale à 0°C pour des éprouvettes lisses de PA11 jusqu'à striction de l'éprouvette.

Les courbes conventionnelles semblent assez reproductibles. Seule la déformation nominale à striction varie quelque peu avec une tendance laissant présager que l'augmentation de $(F/S_0)_{max}$ engendre la diminution de $(\Delta l/l_0)_{striction}$.

6.1.1.4 Un comportement élasto-visco-plastique

Les résultats obtenus, notamment décrits en terme d'évolution de la contrainte nominale en fonction de la déformation nominale, comme présenté figure 6.3 mettent en évidence un comportement élasto-viscoplastique. La vitesse de déformation influe sur la contrainte nominale du crochet. En effet, plus la vitesse de déformation est élevée, plus la valeur de cette contrainte est importante. Il est assez difficile de porter une quelconque conclusion sur la déformation à rupture. En effet, une fissure peut s'amorcer à partir d'un défaut intrinsèque voire d'un défaut extrinsèque, lié, par exemple, à l'usinage. Il serait éventuellement possible d'écrire que la déformation à rupture tend à diminuer avec l'augmentation de la vitesse de déformation. Cependant, la dispersion expérimentale constatée ne permet pas de l'affirmer.

6.1.2 Seconde série d'essais

6.1.2.1 Protocole opératoire

Les essais sont effectués sur une machine Instron pour les vitesses de déformation axiale suivantes : 0.001, 0.01 et 0.1 s^{-1} . Les vitesses de déformation sont déterminées grâce au déplacement du vérin et en considérant la longueur utile de l'éprouvette. La température d'essai est de 0°C obtenue en plaçant l'échantillon dans une enceinte thermostatique régulée. Afin de connaître la déformation axiale à rupture, une grille de points de diamètre de 1 mm et espacés de 2.5 mm est peinte sur les échantillons ; en

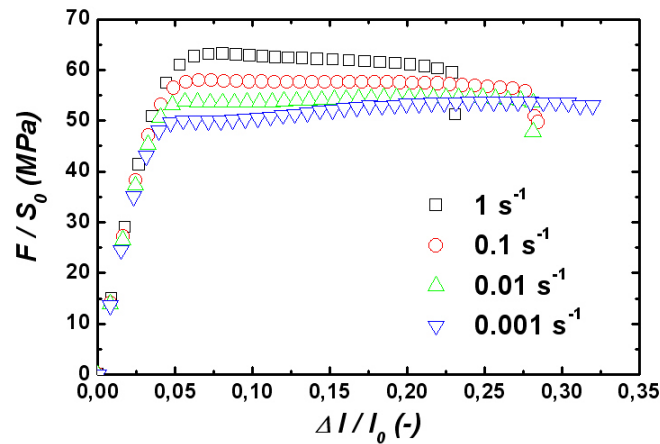


FIGURE 6.3 – Courbes contrainte nominale-déformation nominale à 0°C pour des éprouvettes lisses de PA11 jusqu'à striction de l'éprouvette.

effet, la mesure de l'écart des points après déformation permet d'accéder à la déformation locale au niveau de la striction.

6.1.2.2 Les échantillons

Les échantillons sont issus de bandes extrudées d'épaisseur $B = 5 \text{ mm}$. La largeur et longueur utile sont respectivement égales à 12 mm et 90 mm . La section des échantillons est alors égale à 60 mm^2 .

6.1.2.3 Les résultats

Les courbes contrainte-déformation sont représentées sur la figure 6.4; il s'agit de l'évolution de la contrainte nominale déterminée par l'intermédiaire de l'équation 6.1 en fonction de la déformation axiale calculée comme suit :

$$\epsilon = \frac{L - L_0}{L_0} \quad (6.2)$$

avec L_0 la longueur utile de l'éprouvette.

Les résultats sont équivalents à ceux obtenus lors de la première série d'essais; les différences observées s'expliquent par le fait que, concernant cette série d'essais, la contrainte n'est pas tracée en fonction de la déformation locale mesurée par le capteur, mais par une déformation "approchée" étant donné que la déformation n'est pas homogène sur l'ensemble de l'éprouvette.

La mesure de l'écartement des points, au préalable peints sur l'échantillon, permet de déterminer la valeur de la déformation axiale en fin d'essai, donc a priori, après rupture. Seule la déformation finale dans la zone strictionnée, donc à l'endroit où la déformation est la plus importante, nous intéresse. Ces valeurs de déformations sont répertoriées dans le tableau 6.1 avec la contrainte maximale obtenue en cours d'essai. Il est alors possible de constater que la contrainte maximale atteinte augmente avec le taux de déformation. Il apparaît être de même pour la valeur de la déformation à rupture. A grande vitesse de déformation, l'échantillon devient

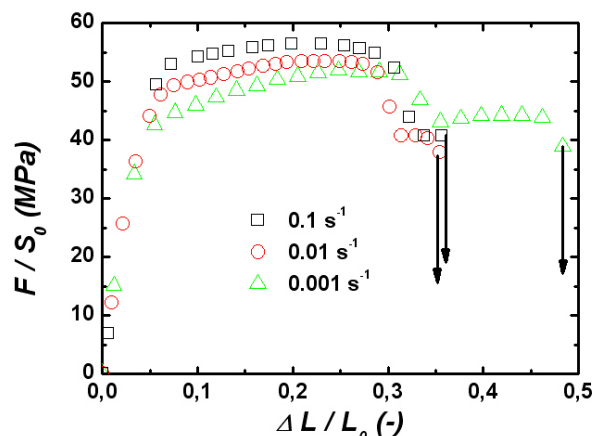


FIGURE 6.4 – Courbes contrainte nominale-déformation nominale à 0°C pour des éprouvettes lisses de PA11 jusqu'à rupture de l'éprouvette.

plus raide, atteint une contrainte plus importante mais la rupture arrive plus tôt.

TABLEAU 6.1 – Contrainte maximale et déformation axiale dans la zone strictionnée à rupture après traction uniaxiale à 0°C sur des éprouvettes lisses.

$\dot{\epsilon}$ (s^{-1})	σ_{max} (MPa)	$\epsilon_{failure}$ (%)
0.001	51	182
0.01	53	145
0.1	56	79

Remarque 6.1 Les valeurs de déformations à rupture "globales", c'est-à-dire calculées en divisant le déplacement imposé par la longueur utile L_0 de l'éprouvette, semblent inférieures aux déformations généralement admises par le PA11 dans des conditions similaires. Dès lors, cette rupture anticipée serait due à l'usinage des échantillons et à la présence de défauts générant des effets de bord.

6.2 LES MATÉRIAUX VIEILLIS

6.2.1 Protocole opératoire

Le protocole opératoire employé coïncide en tout point avec celui usité pour la deuxième série d'essais sur le PA11 : essais de traction uniaxiale à 0°C pour des vitesses de déformation de 0.001, 0.01 et 0.1 s^{-1} . Les échantillons de "aged P40" et de "aged P20 EPR" sont obtenus à partir de plaques extrudées fournies par ARKEMA. Les dimensions des échantillons sont :

- "aged P40" : $L_0 = 90 \text{ mm}$, $W = 12 \text{ mm}$, $B = 2 \text{ mm}$ et donc $S_0 = 24 \text{ mm}^2$;
- "aged P20 EPR" : $L_0 = 90 \text{ mm}$, $W = 12 \text{ mm}$, $B = 2 \text{ mm}$ et donc $S_0 = 24 \text{ mm}^2$.

6.2.2 La matrice plastifiée et vieillie : "aged P40"

Les résultats obtenus en terme de contrainte-déformation sont visibles figure 6.5. Il s'agit toujours de la déformation comme exprimée équation 6.2. Les résultats sont similaires à ceux obtenus pour le polyamide 11 dans le sens où l'on retrouve l'étalonnage des courbes avec l'augmentation du taux de déformation. L'ajout de plastifiant et le vieillissement du polyamide 11 ne perturbe pas son caractère élasto-visco-plastique.

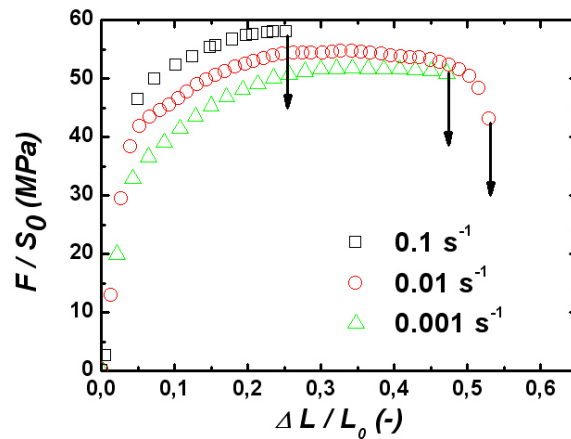


FIGURE 6.5 – Courbes contrainte nominale-déformation nominale à 0°C pour des éprouvettes lisses de "aged P40".

Comme précédemment, les valeurs de la contrainte maximale et de la déformation dans la zone strictionnée, pour chaque vitesse, sont relevées et inscrites dans le tableau 6.2. Si les contraintes maximales relevées du "aged P40" sont équivalentes à celles du PA11, il n'en est rien concernant les déformations. Il apparaît que le "aged P40" est un matériau qui se déforme très peu. A grande vitesse de déformation, le PA11 strictionne et se déforme d'environ 100% quand le "aged P40" ni ne strictionne, ni ne se déforme; la rupture est brutale avec l'apparition de branchements de fissures. Le vieillissement a amenuisé la capacité à se déformer du polyamide 11. Il semble que la déformation élastique du PA11 de l'ordre de 5 – 10% devient de l'ordre de 20 – 25% une fois plastifié et vieilli. De plus, la part élastique adopte un comportement non linéaire sous l'effet du plastifiant.

TABLEAU 6.2 – Contrainte maximale et déformation axiale relevée dans la zone strictionnée à rupture après traction uniaxiale à 0°C sur des éprouvettes lisses.

$\dot{\epsilon}$ (s^{-1})	σ_{max} (MPa)	$\epsilon_{failure}$ (%)
0.001	52	20
0.01	5	30
0.1	58	≈ 0

6.2.3 Avec renforts : "aged P20 EPR"

La figure 6.6 rassemble les courbes contrainte-déformation obtenues en traction uniaxiale à 0°C sur des éprouvettes lisses dans le cas du "aged P20 EPR". Il semble, une nouvelle fois, que le matériau a un comportement élasto-visco-plastique : la vitesse de chargement influe sur les caractéristiques du matériau par l'intermédiaire de l'augmentation de la contrainte maximale ou l'augmentation de la raideur. L'ajout d'une seconde phase élastomérique semble accroître la capacité du matériau à se déformer.

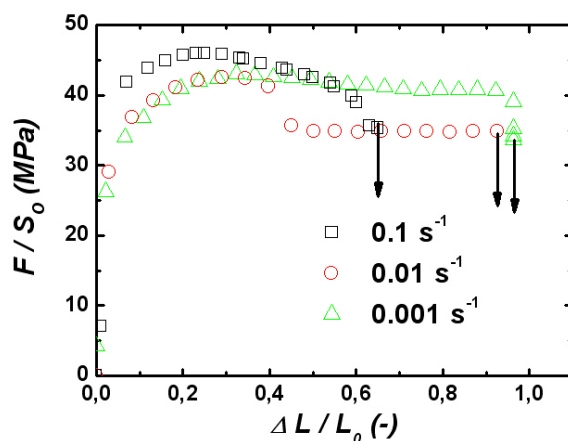


FIGURE 6.6 – Courbes contrainte nominale-déformation nominale à 0°C pour des éprouvettes lisses de "aged P20 EPR".

Comme pour les deux précédents matériaux considérés, les contraintes maximales et déformations, dans la zone fortement déformée, sont relevées et répertoriées dans le tableau 6.3. Il apparaît que les contraintes maximales sont inférieures à celles obtenues précédemment ; cela est probablement en relation avec l'ajout de caoutchouc. De plus, les déformations, même à grande vitesse de déformation, sont nettement supérieures à celles relevées précédemment. Il semblerait donc, que la présence de caoutchouc, même après vieillissement, augmente la capacité du matériau à se déformer. Le vieillissement atténue peut être l'effet du caoutchouc - il n'est pas possible de conclure sur ce point, il faudrait comparer le matériau avant et après vieillissement - mais ne l'annihile pas.

Remarque 6.2 La déformation obtenue pour $\dot{\epsilon} = 0.01 \text{ s}^{-1}$ (entre parenthèses dans le tableau) est la déformation de la zone fortement déformée en fin d'essai ; elle se trouve entre parenthèses car l'échantillon n'a pas rompu.

TABLEAU 6.3 – Contrainte maximale et déformation axiale dans la zone strictionnée à rupture après traction uniaxiale à 0°C sur des éprouvettes lisses.

$\dot{\epsilon}$ (s^{-1})	σ_{max} (MPa)	$\epsilon_{failure}$ (%)
0.001	43	190
0.01	42	(310)
0.1	46	110

6.3 CONCLUSIONS

Trois grades de polyamide 11 ont ainsi pu être soumis à des essais de traction uniaxiale à 0°C pour différents taux de déformation sur des éprouvettes lisses :

- le polyamide 11
- le "aged P40" (PA11 plastifié et vieilli)
- le "aged P20 EPR" (PA11 plastifié, vieilli et contenant une seconde phase de type élastomère)

Ces essais ont ainsi pu permettre de mettre en valeur le comportement élasto-visco-plastique de ces matériaux qu'ils soient neufs, plastifiés et vieillis ou plastifiés, vieillis et renforcés. Ces essais permettent également de s'intéresser à l'effet de l'ajout du plastifiant et du vieillissement (en comparant le PA11 et le "aged P40") et à l'effet de l'ajout de nodule d'EPR (en regardant le comportement du "aged P20 EPR") soit en étudiant les courbes contrainte-déformation (figure 6.7) soit en étudiant les contraintes maximales et déformations après essais répertoriées sur la figure 6.8.

Le "aged P20 EPR" est le matériau qui présente les contraintes maximales les moins élevées et les déformations dans la zone de striction les plus élevées. Ce résultat ne s'avère guère surprenant. En effet, il semble logique que le matériau réponde ainsi de par la présence des nodules de caoutchouc. Dès lors, il semble que l'ajout de cette seconde phase permet de compenser le vieillissement subi par le matériau, dans le sens où il préserve la ductilité lorsque l'on compare les déformations à rupture du polyamide 11 et du "aged P20 EPR". Les contraintes maximales entre le PA11 et le "aged P40" sont du même ordre. Cependant les déformations relevées sont différentes et moins importantes dans le cas du matériau plastifié et vieilli. Le vieillissement du P40 induit non seulement, une diminution du taux de plastifiant initialement intégré dans le matériau (le taux de plastifiant chute de 6 à 3%), mais également une re-cristallisation qui compense l'effet du taux de plastifiant résiduel.

Remarque 6.3 *Il n'a pas été possible de mettre en évidence le comportement mécanique du "aged P20 NBR" par l'intermédiaire d'essais de traction uniaxiale sur des éprouvettes lisses. La raison est que nous n'avons malheureusement pas pu disposer de bandes extrudées de P20 NBR vieilli.*

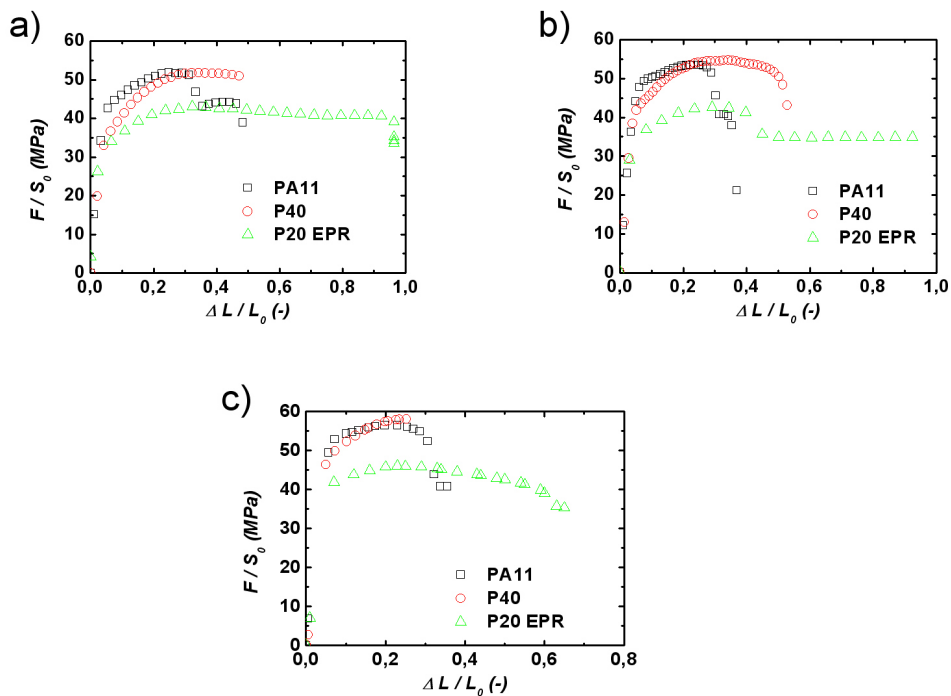


FIGURE 6.7 – Courbes contrainte nominale-déformation nominale à 0°C pour des éprouvettes lisses de PA11, "aged P40" et "aged P20 EPR" pour : a) $\dot{\epsilon} = 0.001 \text{ s}^{-1}$; b) $\dot{\epsilon} = 0.01 \text{ s}^{-1}$; c) $\dot{\epsilon} = 0.1 \text{ s}^{-1}$.

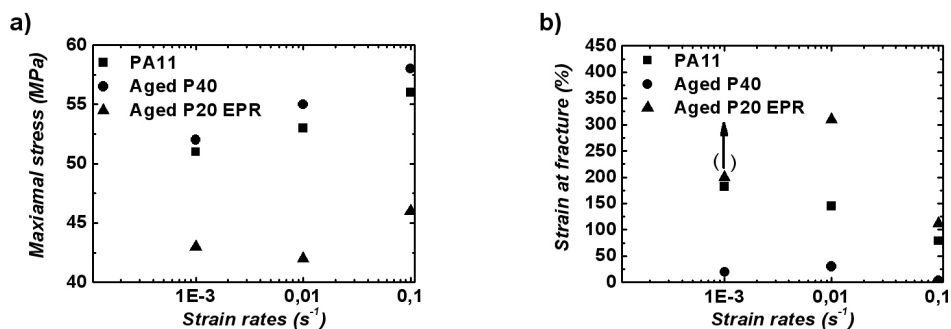


FIGURE 6.8 – Traction uniaxiale à 0°C sur éprouvettes lisses : a) Contrainte maximale ; b) Déformation à rupture.

TRACTION UNIAXIALE SUR DES ÉPROUVETTES ENTAILLÉES

7

SOMMAIRE

7.1	INTRODUCTION	153
7.2	MÉCANIQUE DES ÉPROUVETTES ENTAILLÉES	153
7.3	LA MATRIE NON VIEILLIE À 0°C	155
7.3.1	Protocole opératoire	155
7.3.2	Effet du taux de triaxialité sur le comportement mécanique	157
7.4	LES MATÉRIAUX VIEILLIS	159
7.4.1	Choix de la géométrie	159
7.4.2	Résultats et analyses	159
7.5	CONCLUSIONS	161

C E chapitre s'intéresse, dans le cas du polyamide 11 pur et non vieilli, à l'effet du taux de triaxialité des contraintes sur le comportement mécanique, à travers des essais de traction uniaxiale sur des éprouvettes entaillées ("Notched Tensile" soit NT) avec différents rayons d'entaille : 4 mm, 1.6 mm, 1.2 mm et 0.8 mm notées respectivement NT_4 , $NT_{1.6}$, $NT_{1.2}$ et $NT_{0.8}$. Concernant les matériaux vieillis, un seul rayon d'entaille est considéré, mais plusieurs températures d'essais sont entreprises notamment en dessous de la température de transition vitreuse des renforts.

7.1 INTRODUCTION

L'étude des éprouvettes axisymétriques entaillées offrent plusieurs avantages : d'une part, il est possible à travers une même géométrie de considérer différents taux de triaxialité des contraintes τ_σ , simplement en faisant varier le rayon de l'entaille ; d'autre part, il est possible d'étudier des sollicitations multiaxiales, simplement en faisant intervenir une machine de traction ; enfin, elles permettent de s'affranchir des conditions de contraintes ou déformations planes.

7.2 MÉCANIQUE DES ÉPROUVETTES ENTAILLÉES

Remarque 7.1 *Le passage suivant est fortement inspiré du livre "Comportement mécanique des matériaux" par François et al. (1993).*

Dans le cas d'une éprouvette entaillée, lorsque la limite d'élasticité n'est pas atteinte, la contrainte maximale se situe en fond d'entaille. Il s'avère alors, qu'à cet endroit, la limite d'élasticité est atteinte en premier. La zone déformée plastiquement s'étend pour occuper toute la zone entaillée. La charge atteint alors sa charge limite, bien supérieure à la charge limite de la même éprouvette sans entaille. Si l'on considère le cylindre de matière dans la partie entaillée : s'il était isolé, il s'allongerait selon son axe et serait contraint à diminuer son diamètre afin de conserver un volume constant. Inclus dans l'entaille, entre les deux parties non entaillées se déformant très peu et restant élastiques, il ne peut se contracter de la même façon. Il apparaît alors des contraintes radiales de tension. Pour satisfaire le critère de plasticité et en supposant l'absence de piezo-dépendance, il est nécessaire d'augmenter d'autant la contrainte axiale. La déformation plastique confinée élève le niveau général des contraintes et donc le taux de triaxialité des contraintes τ_σ défini tel que :

$$\tau_\sigma = \frac{\sigma_m}{\sigma_{eq}} \quad (7.1)$$

avec σ_m la contrainte moyenne définie telle que $\sigma_m = \frac{1}{3}(\sigma_{11} + \sigma_{22} + \sigma_{33})$ et σ_{eq} , la contrainte de von Mises.

On considère une éprouvette cylindrique comportant une gorge de rayon à fond d'entaille R laissant subsister un col de rayon a dans la section minimale, comme le montre la figure 7.1. La gorge peut être le fruit d'un usinage ou d'une striction. Le calcul des champs de contraintes et déformations, non résolu analytiquement, nécessite de prendre quelques hypothèses pour le simplifier. En particulier, on suppose que les déformations radiales et tangentielles sont égales et uniformes dans la section minimale, c'est-à-dire dans le plan $z = 0$. Cela résulte en l'égalité des contraintes radiales et tangentielles d'une part ; de plus, le déviateur, dans cette section, est alors indépendant de la coordonnée r .

Grâce à ces hypothèses, les équations d'équilibre et le critère de plasticité, il vient :

$$\frac{d\sigma_{rr}}{dr} = -\frac{\sigma_{eq}}{\rho_{iso}} \quad (7.2)$$

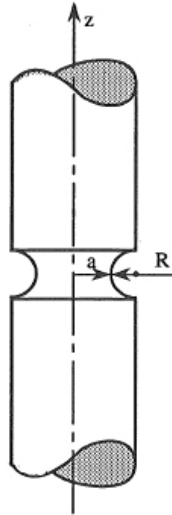


FIGURE 7.1 – Schéma d'une éprouvette axisymétrique entaillée.

où ρ_{iso} est le rayon de courbure des lignes isostatiques lorsqu'elles interceptent le plan $z = 0$.

A cette étape, il est nécessaire de considérer une nouvelle hypothèse qui concerne la forme des isostatiques. [Bridgman \(1944\)](#) fait l'hypothèse que ces isostatiques forment des cercles coupant à angle droit la surface torique de l'entaille. Le rayon de courbure ρ_{iso} devient :

$$\rho_{iso} = \frac{a^2 + 2aR - r^2}{2r} \quad (7.3)$$

La résolution de l'équation différentielle 7.2 permet de déterminer le champ de contrainte :

$$\begin{cases} \sigma_{rr} = \sigma_{\theta\theta} = \sigma_{eq} \ln \left(1 + \frac{a^2 - r^2}{2aR} \right) \\ \sigma_{zz} = \sigma_{eq} \left[1 + \ln \left(1 + \frac{a^2 - r^2}{2aR} \right) \right] \end{cases} \quad (7.4)$$

Il est alors possible de déterminer la contrainte axiale moyenne $\bar{\sigma}_{zz}$, équivalente à la charge appliquée à l'éprouvette.

$$\bar{\sigma}_{zz} = \sigma_{eq} \left(1 + \frac{2R}{a} \right) \ln \left(1 + \frac{a}{2R} \right) \quad (7.5)$$

Le taux de triaxialité des contraintes est maximale sur l'axe de l'éprouvette et est défini comme :

$$(\tau_{\sigma})_{max} = \left(\frac{\sigma_m}{\sigma_{eq}} \right)_{max} = \frac{1}{3} + \ln \left(1 + \frac{a}{2R} \right) \quad (7.6)$$

Le profil des contraintes, calculé par [Bridgman \(1944\)](#) (equation 7.4), représenté sur la figure 7.2, est très proche d'une parabole. Le maximum est obtenu au centre de l'éprouvette. Enfin, le taux de triaxialité des contraintes sera d'autant plus élevé, que le rayon à fond d'entaille sera faible.

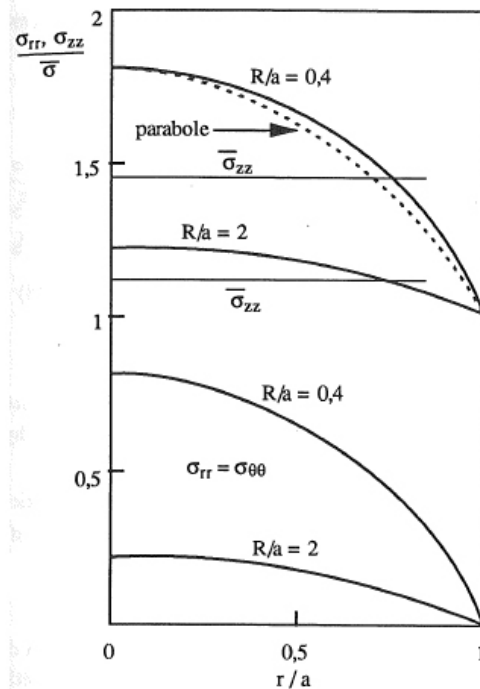


FIGURE 7.2 – Répartition des contraintes axiales (σ_{zz}), radiales (σ_{rr}) et tangentielles ($\sigma_{\theta\theta}$) dans une éprouvette entaillée selon le calcul de Bridgman (trait plein) et de Davidenkova et Spiridonova en pointillé pour deux valeurs de R/a .

Remarque 7.2 Ce taux de triaxialité des contraintes, calculé selon les hypothèses de Bridgman qui suppose un comportement parfaitement plastique n'est utilisé ici que pour introduire les éprouvettes entaillées. Il a été montré au cours du chapitre 6 que le polyamide 11 avait un comportement élasto-visco-plastique et donc en toute rigueur les hypothèses de Bridgman ne peuvent s'appliquer. De plus, il est à rappeler que le taux de triaxialité change dans le temps et dans l'espace en cours de traction. Cependant, le calcul du taux de triaxialité des contraintes par simulation numérique a montré que la triaxialité définie par Bridgman est une bonne approximation de celle rencontrée pour le polyamide 11.

7.3 LA MATRICE NON VIEILLIE À 0°C

7.3.1 Protocole opératoire

7.3.1.1 Choix des essais

Précédemment, il a été montré que le rayon de fond d'entaille était directement lié au taux de triaxialité des contraintes. Ainsi, différents rayons R permettent d'étudier le comportement du matériau pour différentes valeurs du taux de triaxialité. Le chapitre précédent portait sur la mise en valeur du comportement élasto-visco-plastique des matériaux de l'étude par l'intermédiaire d'essais de traction uniaxiale sur des éprouvettes lisses. Une éprouvette lisse peut être considérée comme une éprouvette dont le rayon d'entaille est infinie. Lors d'une étude antérieure sur le PVDF, Lafarge (2004) avait opté pour trois rayons d'entaille : 4 mm, 1.6 mm et

0.8 mm. Dans cette étude, le nombre de géométries différentes s'élève à quatre avec l'ajout, aux trois rayons précédents, d'un rayon intermédiaire $R = 1.2 \text{ mm}$. Ce choix de rayon de fond d'entaille permet d'étudier une large plage de taux de triaxialité et ainsi de mettre en valeur l'effet de la triaxialité sur le comportement mécanique du matériaux et, au cours du chapitre 9, sur l'endommagement de la matrice.

7.3.1.2 Géométrie des échantillons

Les éprouvettes axisymétriques sont prélevées à partir d'un tube d'épaisseur 10 mm. Afin de s'affranchir des effets cœur-peau, une légère épaisseur est prélevée à l'intérieur et à l'extérieur du tube. La longueur entre les congés de l'éprouvette est fixée à 65 mm. En effet, les éprouvettes doivent être suffisamment grandes pour permettre la fixation d'un extensomètre dans l'entaille. Le diamètre de l'éprouvette est de 7.2 mm et le diamètre de la section minimale de 4 mm. Enfin, la hauteur de la zone entaillée, fonction du rayon d'entaille, varie selon la géométrie. La figure 7.3 résume les quatre géométries impliquées dans les essais.

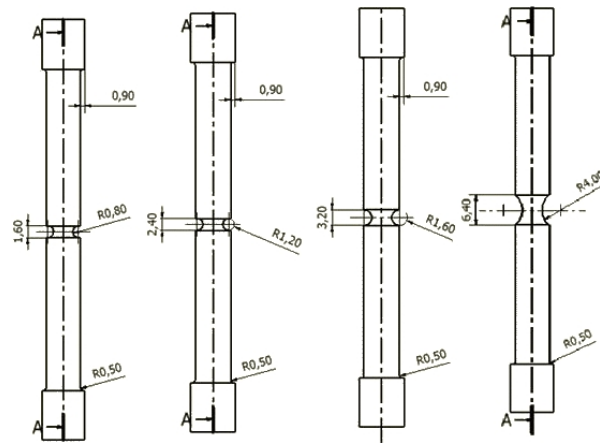


FIGURE 7.3 – Géométries des éprouvettes axisymétriques entaillées de PA11.

Remarque 7.3 Le montage des éprouvettes est présenté en annexe C.

Connaissant le rayon de la section minimale $a = \Phi_0/2 = 2 \text{ mm}$ et les rayons d'entaille, il est possible, à titre indicatif, en appliquant l'équation 7.6 de déterminer le taux de triaxialité maximal (sur l'axe de l'éprouvette), pour chaque éprouvette. Ceux-ci sont résumés dans le tableau 7.1 ; de plus, l'évolution du taux de triaxialité des contraintes, en fonction du rapport adimensionnel $\Phi_0/2R$ pour $\Phi_0 = 4 \text{ mm}$, est présentée sur la figure 7.4.

TABLEAU 7.1 – Taux de triaxialité des contraintes pour chaque rayon d'entaille selon Bridgman (1944).

Rayon d'entaille (mm)	∞	4	1.6	1.2	0.8
τ_σ (-)	0.33	0.56	0.82	0.94	1.14

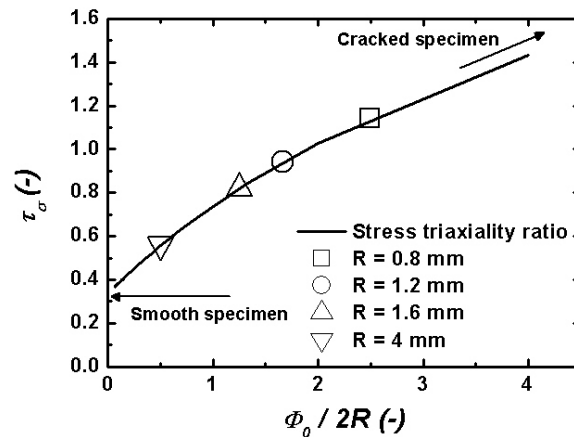


FIGURE 7.4 – Evolution du taux de triaxialité maximal des contraintes en fonction du rapport adimensionnel $\Phi_0/2R$.

7.3.1.3 Conditions expérimentales

Les essais consistent en des essais de traction uniaxiale à 0°C pour une vitesse de déplacement de 0.05 mm.s^{-1} . Il aurait également été possible de piloter les essais en vitesse de réduction diamétrale (Tanguy 2001, Lafarge 2004); en effet, Tanguy (2001) montre que ce mode de pilotage permet d'accéder à la cinétique de coalescence des cavités, information inaccessible en pilotage par vitesse de déplacement. Afin de suivre la réduction du diamètre de la section minimale en cours de déformation, un extensomètre, de préférence à tiges (figure 7.5), est placé au niveau de l'entaille. L'extensomètre à tiges se compose de deux tiges en aluminium de diamètre 0.2 mm ; la forme cylindrique des tiges permet d'éviter un ré-entaillage de l'éprouvette, tout en assurant un contact avec le fond de l'entaille.

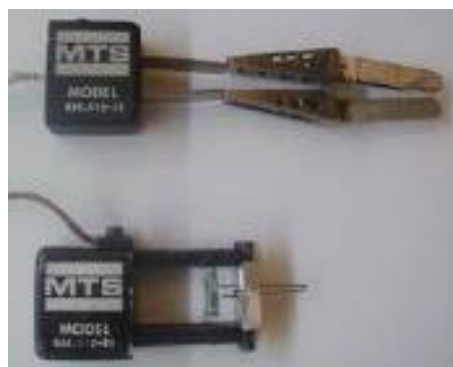


FIGURE 7.5 – Extensomètres à couteaux et à tiges pour mesurer la réduction du diamètre de la section minimale d'éprouvettes axisymétriques entaillées.

7.3.2 Effet du taux de triaxialité sur le comportement mécanique

La figure 7.6 présente, pour les quatre géométries considérées (NT_4 , $NT_{1.6}$, $NT_{1.2}$ et $NT_{0.8}$), l'évolution de la contrainte nominale ($\sigma_n = F/S_0$

avec F la charge et $S_0 = \pi\Phi_0^2/4$ où Φ_0 est le diamètre de la section minimale initiale en fonction de la réduction diamétrale ($-\Delta\Phi/\Phi_0$ avec Φ le diamètre de la section minimale en cours de déformation). Les courbes présentent des réponses similaires quel que soit le taux de triaxialité des contraintes. Cependant, une hiérarchie est mise en évidence. En effet, le taux de triaxialité des contraintes influe sur la valeur de la contrainte nominale maximale atteinte. Ainsi, plus celui-ci est élevé et donc plus l'entaille est sévère, plus la contrainte nominale maximale est grande. Il apparaît également que la réduction diamétrale à rupture est d'autant plus faible que la triaxialité est importante. Les valeurs de la contrainte nominale maximale et de la réduction diamétrale à rupture sont répertoriées dans le tableau 7.2.

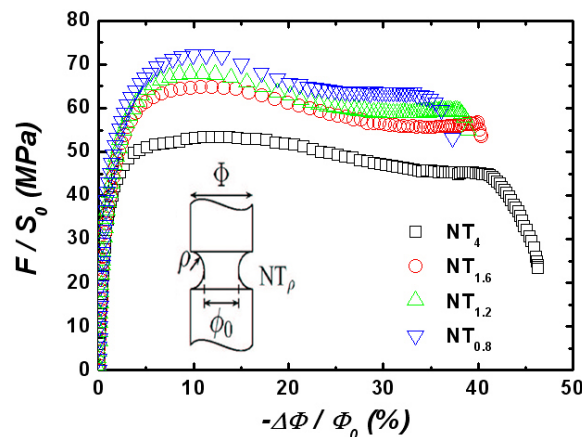


FIGURE 7.6 – Courbes contrainte nominale-réduction diamétrale pour les 4 géométries.

TABLEAU 7.2 – Contrainte nominale maximale et réduction diamétrale à rupture pour les quatre géométries.

R (mm)	τ_σ (-)	$(\sigma_n)_{max}$ (MPa)	$-\left(\frac{\Delta\Phi}{\Phi_0}\right)_{rupture}$ (%)
0.8	1.14	72	33
1.2	0.94	67	37
1.6	0.82	65	39
4	0.56	53	41

Pour des raisons de clarté, et comme les courbes présentent des tendances similaires quelle que soit la triaxialité considérée, la figure 7.7 présente l'évolution de la contrainte nominale et de la réduction diamétrale en fonction du temps pour une seule géométrie : la géométrie NT_4 . Cette courbe peut être divisée en trois étapes :

- au départ, alors que la contrainte augmente de manière quasi linéaire, il est possible de constater une faible réduction de diamètre de l'ordre de quelques pourcents ;
- puis, au niveau du crochet de contrainte, la cinétique de réduction diamétrale s'accélère. La diminution rapide de la réduction diamétrale entraîne dans un premier temps l'arrêt de l'augmentation de la

contrainte puis, sa diminution. Au cours de cette étape, on assiste au ré-entaillage de l'éprouvette c'est-à-dire l'apparition d'une striction au niveau de l'entaille ;

- enfin, la contrainte cesse de diminuer, se stabilise (aux alentours de 47 MPa) et augmente légèrement jusqu'à 50 MPa. Cela correspond également à une stabilisation de la réduction diamétrale qui atteint alors sa valeur maximale de l'ordre de 30%. A cette étape, on observe une augmentation de la déformation axiale à une section minimale constante et à une contrainte nominale constante ; il s'agit de la propagation de la striction afin de former un ligament. Ce ligament peut être considéré comme une éprouvette lisse cylindrique. L'issue de cette étape est la rupture finale du ligament.

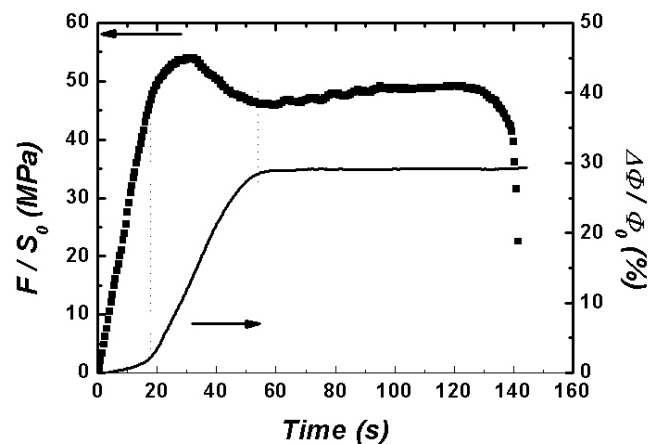


FIGURE 7.7 – Evolution de la contrainte nominale et de la réduction diamétrale en fonction du temps à 0°C et $0.05\text{ mm}\cdot\text{s}^{-1}$ pour une NT_4 .

7.4 LES MATÉRIAUX VIEILLIS

7.4.1 Choix de la géométrie

Précédemment, l'influence du taux de triaxialité des contraintes sur le comportement mécanique a été mise en valeur par l'intermédiaire d'essais de traction uniaxiale sur des éprouvettes entaillées avec différents rayons d'entaille. Ici, des essais similaires sont présentés mais uniquement pour une seule géométrie c'est-à-dire pour un rayon d'entaille de 4 mm. Selon [Bridgman \(1944\)](#), le taux de triaxialité augmente lorsque le rayon d'entaille diminue ; ainsi, parmi les quatre géométries étudiées précédemment, celle-ci présente le plus faible taux de triaxialité. Le choix de cette géométrie devrait permettre de minimiser l'influence du taux de triaxialité.

7.4.2 Résultats et analyses

Des essais ont été entrepris à 0°C , -10°C et -60°C mais uniquement les résultats obtenus à 0°C et -60°C sont présentés. Les résultats obtenus à -10°C sont similaires à ceux obtenus à 0°C et sont présentés en annexe **D** ;

seules la complaisance (qui diminue à -10°C) et la contrainte maximale (qui augmente à -10°C) des matériaux diffèrent quelque peu.

A 0°C , trois vitesses de déplacement sont considérées : 0.05 mm.s^{-1} et 3 mm.s^{-1} . Les courbes contrainte-déformation diamétrale sont présentées figure 7.8. Le "aged P40" se caractérise par l'absence d'un plateau de contrainte sur les courbes contrainte-déformation et cela quelle que soit la vitesse considérée. Cependant, pour les deux matériaux renforcés, ce plateau existe. Concernant le "aged P20 NBR", la durée du plateau dépend de la vitesse : en effet, à 3 mm.s^{-1} , la déformation à contrainte constante est très faible voire, selon les cas, inexistante et est suivie par une chute stable de la contrainte jusqu'à la rupture finale de l'échantillon ; à 0.05 mm.s^{-1} , le plateau est, cette fois, bien marqué et une importante propagation de la striction est observée. Le "aged P20 EPR" est le matériau dont le comportement mécanique s'apparente le plus à celui du PA11 : après l'atteinte de la contrainte maximale, un adoucissement s'opère dû à la striction localisée dans la section minimale, puis la striction se stabilise et enfin se propage engendrant l'apparition du plateau de contrainte sur la courbe de comportement. A 3 mm.s^{-1} et 0.05 mm.s^{-1} , le comportement du "aged P20 EPR" évolue peu : le crochet est moins marqué, la contrainte maximale avoisinant la contrainte du plateau.

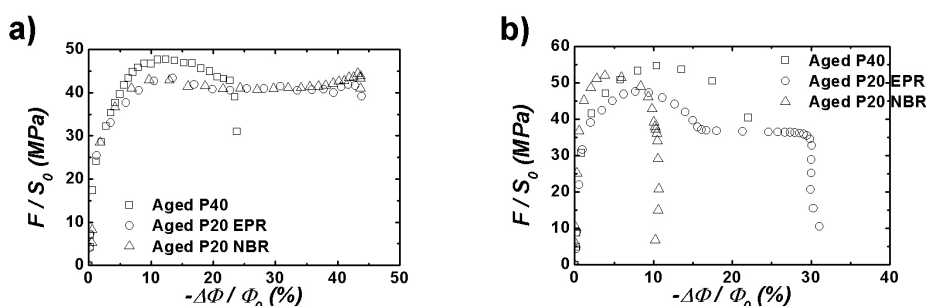


FIGURE 7.8 – Courbes contrainte- $(-\Delta\Phi/\Phi_0)$ à 0°C : a) 0.05 mm.s^{-1} , b) 3 mm.s^{-1} .

La température de transition vitreuse, de la seconde phase caoutchoutique de l'ordre de -30°C (source ARKEMA), justifie l'intérêt de faire quelques essais à -60°C . Les résultats obtenus pour deux vitesses de déplacement (3 mm.s^{-1} et 200 mm.s^{-1}) sont visibles figure 7.9. A 200 mm.s^{-1} , aucune striction n'apparaît et la rupture finale s'opère avant l'atteinte de la contrainte maximale ("aged P40") ou dès l'atteinte de celle-ci ("aged P20 EPR" et "aged P20 NBR"). A 3 mm.s^{-1} , un commentaire équivalent peut être donné. Il doit être noté qu'en dépit de la température d'essai, bien en dessous de la T_g des nodules de caoutchouc, le renforcement par l'ajout d'une seconde phase permet encore d'obtenir une rupture à une déformation plus importante.

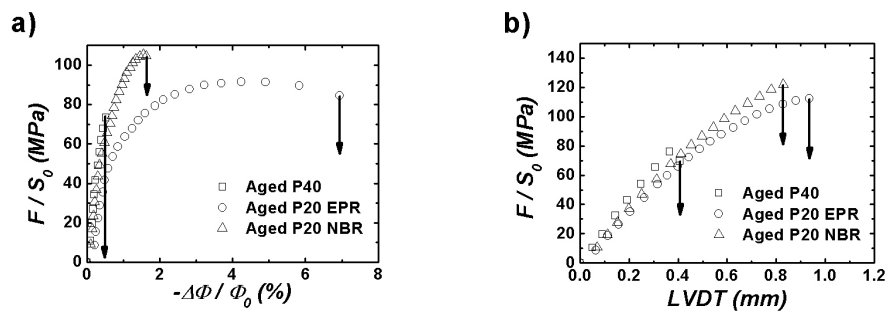


FIGURE 7.9 – A -60°C : a) Courbes contrainte- $(-\Delta\Phi/\Phi_0)$ à 3 mm.s^{-1} ; b) Courbes contrainte-LVDT à 200 mm.s^{-1} .

7.5 CONCLUSIONS

Les figures 7.10 et 7.11 présentent les évolutions de la contrainte nominale et de la réduction diamétrale pour les quatre grades de polyamide 11, respectivement à 0.05 mm.s^{-1} et 3 mm.s^{-1} , à 0°C , pour des éprouvettes entaillées de type NT_4 . Les deux figures permettent ainsi de comparer les matériaux et donc l'effet du plastifiant et du vieillissement d'une part, et d'autre part l'effet de l'ajout d'une seconde phase de type élastomère.

Une première constatation est que le polyamide 11 pur et non vieilli est, parmi l'ensemble des matériaux, celui qui se déforme le plus et qui tolère des contraintes plus élevées. De plus, sa réponse mécanique à 0.05 mm.s^{-1} et 3 mm.s^{-1} est la même, ce qui laisse supposer qu'il n'y a pas de changement dans les mécanismes de déformation et d'endommagement. Lorsque le polyamide 11 est plastifié et vieilli (et devient alors le "aged P40"), sa réponse mécanique change. En effet, le "aged P40" devient moins ductile et se déforme beaucoup moins. Cependant, comme le PA11, la réponse mécanique du "aged P40", aux deux vitesses considérées, reste similaire.

Comparer les matériaux "aged P40", "aged P20 EPR" et "aged P20 NBR" permet de voir l'influence de l'ajout de particules de caoutchouc d'une part et, d'autre part, de comparer les deux types de renforts. En effet, le vieillissement subi par les trois matériaux est identique ; seul le taux de plastifiant avant vieillissement diffère. Cependant, le vieillissement réduit le taux de plastifiant et il se trouve, qu'après vieillissement, les taux de plastifiant des trois matériaux sont proches : 5% pour le "aged P40" et 3% pour le "aged P20 EPR" et le "aged P20 NBR". Les figures 7.10 et 7.11 mettent en lumière l'effet du renfort qui permet de compenser le vieillissement de la matrice, en préservant la ductilité du matériau, en particulier à faible vitesse soit 0.05 mm.s^{-1} . A 3 mm.s^{-1} , l'efficacité des particules de NBR est fortement diminuée, même si on dénote toujours une différence de comportement avec le "aged P40". Par contre, les particules de EPR permettent toujours de préserver la ductilité du matériau.

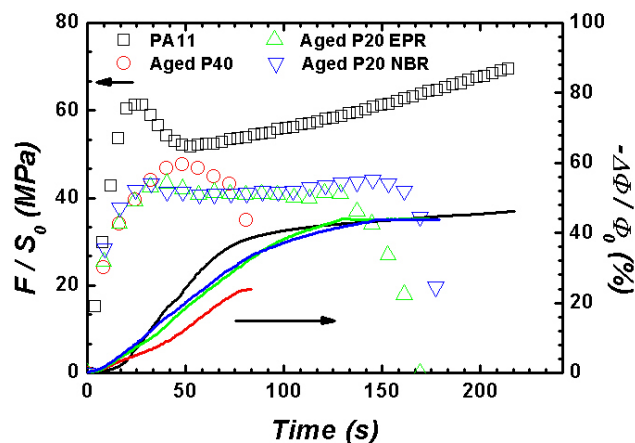


FIGURE 7.10 – Evolution de la contrainte nominale et de la réduction diamétrale pour les 4 grades de PA11 en fonction du temps (0°C , $0.05\text{ mm}\cdot\text{s}^{-1}$, NT_4).

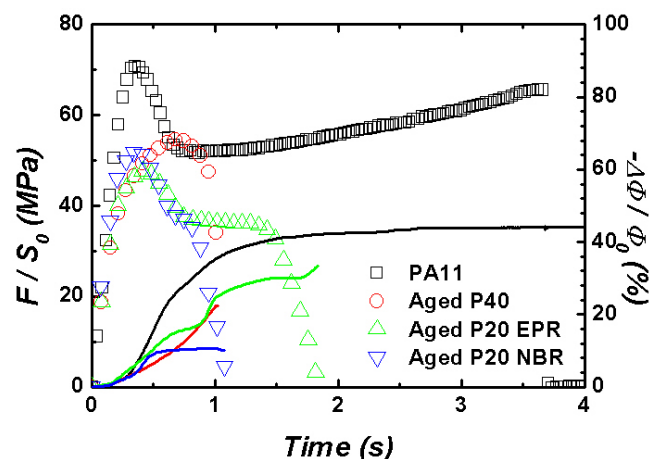


FIGURE 7.11 – Evolution de la contrainte nominale et de la réduction diamétrale pour les 4 grades de PA11 en fonction du temps (0°C , $3\text{ mm}\cdot\text{s}^{-1}$, NT_4).

La figure 7.12 est l'équivalent de la figure 6.8 présentée dans le chapitre précédent mais cette fois pour les éprouvettes entaillées. Elle récapitule les valeurs de la contrainte maximale obtenue lors du ré-entaillage et de la déformation à rupture. La déformation à rupture est déterminée en divisant le déplacement imposé par la longueur de la zone entaillée égale à 5.8 mm pour la géométrie NT_4 . D'un point de vue général, cette figure met en évidence l'augmentation de la contrainte à striction et la diminution de la déformation avec l'augmentation de la vitesse de déplacement imposée. La figure 6.8 (donc pour les éprouvettes lisses) montrait un faible écart en terme de contrainte maximale entre le PA11 et le "aged P40". Or ici, cette différence s'est accrue, accroissement vraisemblablement engendré par l'augmentation du taux de triaxialité des contraintes. L'ajout d'une seconde phase de type élastomère semble permettre de compenser le vieillissement du matériau, en préservant une certaine ductilité. Cependant, le choix de la seconde phase n'est pas anodin et, selon le type

de renfort, son efficacité est plus ou moins importante. La description de quelques propriétés des renforts, donnée au cours du chapitre 5 dans le tableau 5.1, ne met pas en évidence de grandes différences. De plus, chaque matériau contient 10% de particules de caoutchouc. Le seul paramètre qui diffère, est la taille des particules qui probablement entraîne une différence de la distance interparticulaire.

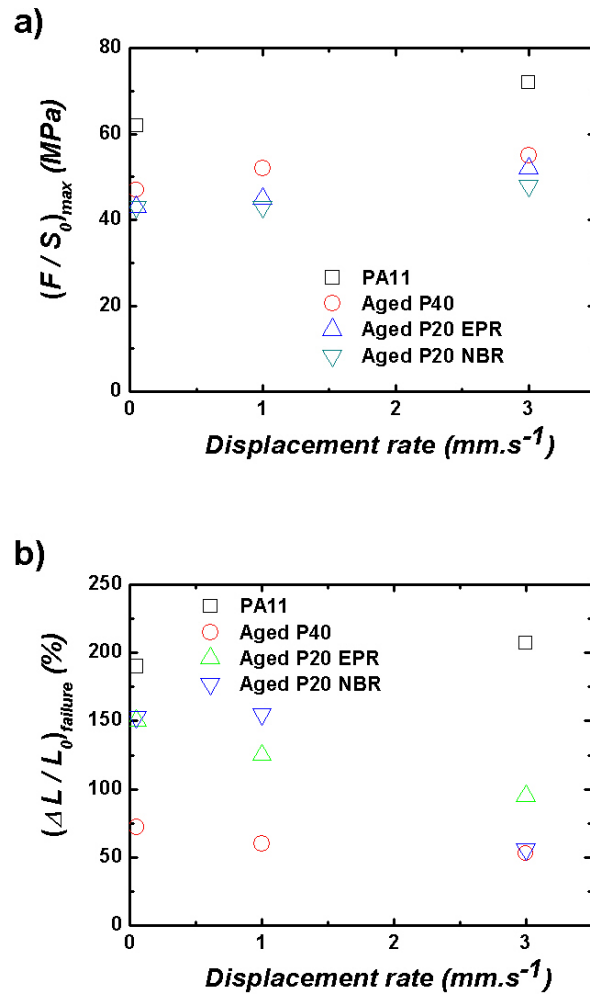


FIGURE 7.12 – Traction uniaxiale à 0°C sur éprouvettes entaillées NT_4 : a) Contrainte maximale ; b) Déformation à rupture.

SIMULATIONS NUMÉRIQUES DU COMPORTEMENT MÉCANIQUE

8

SOMMAIRE

8.1	MODÉLISATION DU COMPORTEMENT MÉCANIQUE	167
8.1.1	Modélisation de l'élasto-visco-plasticité	167
8.1.2	Modélisation du rhéodurcissement	168
8.1.3	Conclusions	168
8.2	MODÉLISATION DU COMPORTEMENT DE LA MATRICE	168
8.2.1	Maillage et conditions aux limites	168
8.2.2	Identification des paramètres élastiques	170
8.2.3	Identification des paramètres visco-plastiques	170
8.3	MODÉLISATION DU COMPORTEMENT DE LA MATRICE PLASTIFIÉE ET VIEILLIE	172
8.4	MODÉLISATION DU COMPORTEMENT DU "AGED P20 EPR"	174
8.5	CONCLUSIONS	177

Ce chapitre concerne la modélisation numérique du comportement mécanique de la matrice de polyamide 11. Pour ce faire, les essais présentés au cours des chapitres 6 et 7 sont simulés à l'aide d'un code de calculs aux éléments finis développé par l'Ecole des Mines de Paris : ZéBuLoN. Il est à noter que l'identification des paramètres du modèle consiste en une identification couplée comportement-endommagement. Cependant, dans un souci de présentation, nous choisissons de présenter ce travail en deux étapes distinctes.

8.1 MODÉLISATION DU COMPORTEMENT MÉCANIQUE

La modélisation du comportement du polyamide 11 doit refléter aussi fidèlement que possible les résultats d'essais mécaniques obtenus sur les différentes géométries présentées, soit les essais de traction sur éprouvettes lisses ainsi que les essais de traction sur éprouvettes entaillées pour les quatre rayons d'entaille. Plus précisément, le modèle doit prendre en compte, non seulement le comportement élasto-visco-plastique, mais également le phénomène de rhéodurcissement observé pour les éprouvettes entaillées.

8.1.1 Modélisation de l'élasto-visco-plasticité

Au cours du chapitre 6, il a été montré que le comportement de la matrice est un comportement élasto-visco-plastique, c'est-à-dire qu'une déformation élastique précède une déformation visco-plastique. Il est admis que la déformation totale $\underline{\underline{\epsilon}}$ peut se décomposer en un terme élastique $\underline{\underline{\epsilon}}^e$ et un terme visco-plastique $\underline{\underline{\epsilon}}^{vp}$ comme suit :

$$\underline{\underline{\epsilon}} = \underline{\underline{\epsilon}}^e + \underline{\underline{\epsilon}}^{vp} \quad (8.1)$$

avec $\underline{\underline{\epsilon}}^e$, le tenseur des déformations élastiques et $\underline{\underline{\epsilon}}^{vp}$, le tenseur des déformations visco-plastiques.

Remarque 8.1 *Il aurait été possible de considérer également une déformation visco-élastique et ainsi de décomposer la déformation totale en trois déformation en ajoutant un terme $\underline{\underline{\epsilon}}^{ve}$. Cependant, nous faisons le choix de négliger la part visco-élastique. Celle-ci est indirectement prise en compte, d'un point de vue phénoménologique, car nous fixons une limite élastique R_0 faible, de l'ordre de 10 MPa.*

Il n'est pas rare que la déformation visco-plastique soit elle-même décomposée en une double déformation inélastique; on parle alors du modèle DDI (Double Déformation Inélastique) dont l'utilisation a été concluante, notamment pour du polyamide 11 sollicité en fluage (Hamouda 2000, Lefebvre 2002). Il s'agit de considérer un terme de déformation aux temps courts et un terme de déformation aux temps longs (essais de fluage). Cependant, dans notre cas, n'est utilisée qu'une seule déformation visco-plastique, les essais étant exclusivement des essais de traction.

La vitesse de déformation plastique effective, notée \dot{p} , est décrite par une loi de Norton telle que :

$$\dot{p} = \left(\frac{\phi}{K} \right)^n \quad (8.2)$$

avec n un indicateur de la non-linéarité du comportement visco-plastique, K l'intensité de la vitesse de déformation et Φ la fonction d'écoulement. Les paramètres K et n sont des constantes du matériau à déterminer.

La surface d'écoulement ϕ s'exprime de la manière suivante :

$$\phi = \sigma_* - R(p) \quad (8.3)$$

avec σ_* , la contrainte effective fonction de l'endommagement (voir chapitre 9) et $R(p)$, la contrainte d'écoulement de la matrice. Afin de définir R , est utilisée une loi d'écrouissage isotrope telle que :

$$R(p) = R_0 + Q \left(1 - \exp(-bp) \right) \quad (8.4)$$

où R_0 est le seuil visco-plastique, c'est-à-dire la contrainte limite à partir de laquelle les mécanismes visqueux peuvent se manifester et Q et b , deux coefficients définissant l'écrouissage isotrope.

8.1.2 Modélisation du rhéodurcissement

Les équations 8.1 à 8.4 permettent de décrire le comportement élasto-visco-plastique de la matrice mais restent insuffisantes pour décrire le rhéodurcissement observé lors des essais de traction uniaxiale sur les éprouvettes entaillées. Pour ce faire, il est nécessaire d'ajouter une seconde fonction à la loi d'écrouissage précédemment définie (équation 8.4). Cette fonction doit décrire une augmentation de la contrainte avec l'augmentation de la déformation visco-plastique. Ainsi, l'équation 8.4 devient :

$$R = R_0 + Q \left(1 - \exp(-bp) \right) + A \left(\exp(Bp) - 1 \right) \quad (8.5)$$

avec A et B , deux nouveaux paramètres à identifier.

8.1.3 Conclusions

Ainsi, la modélisation du comportement mécanique du PA11 nécessite l'identification de plusieurs paramètres :

- E et ν , respectivement le module de Young et le coefficient de Poisson qui définissent le comportement linéaire du matériau ;
- K et n , paramètres de la loi de Norton, qui rendent compte du comportement visqueux ;
- R_0 , Q et b , paramètres définissant l'écrouissage isotrope soit le comportement non linéaire plastique du matériau ;
- A et B , coefficients qui caractérisent le rhéodurcissement c'est-à-dire la résistance supplémentaire induite par l'élongation des fibrilles.

Remarque 8.2 *Afin de caractériser le comportement mécanique de notre matériau, nous définissons un écrouissage isotrope. Cette définition est purement arbitraire. Etant donné que nous travaillons exclusivement avec des chargements monotones, la formulation de l'écrouissage n'importe peu et ce dernier aurait très bien pu être cinématique.*

8.2 MODÉLISATION DU COMPORTEMENT DE LA MATRICE

8.2.1 Maillage et conditions aux limites

Pour des raisons de symétrie, seul un quart de l'éprouvette lisse est discrétisé (figure 8.1a). Pour ce faire, des quadrilatères à 8 nœuds de type *c2d8* sont utilisés. Le maillage comporte 640 nœuds et 185 éléments. Les simulations numériques des essais de traction uniaxiale sont réalisées en grande

déformation sous l'hypothèse de contrainte plane. Dans le cas de l'éprouvette entaillée, l'utilisation d'éléments axisymétriques à 6 ou 8 nœuds de type *cax8r* ou *cax6r* permet de ne discrétiser que la moitié de l'éprouvette. Un second avantage réside en l'affranchissement de l'hypothèse de déformation plane ou contrainte plane. Le tableau 8.1 résume les caractéristiques des cinq maillages considérés. La taille des éléments au niveau de la section minimale est la suivante $t_1 = 50 \mu\text{m}$ et $t_2 = 22 \mu\text{m}$ (figure 8.1.b et c). Enfin, ces éléments sont dits réduits dans le sens où le nombre de points de Gauss se limite à 4 et non 9, cela permettant de minimiser le temps de calcul.

TABLEAU 8.1 – Caractéristiques des maillages des éprouvettes lisse et entaillées.

Caractéristiques	Géométrie				
	Lisse	$NT_{0.8}$	$NT_{1.2}$	$NT_{1.6}$	NT_4
Nombre de nœuds	640	1170	1140	1093	1144
Type	<i>c2d8</i>	<i>cax8r</i>	<i>cax8r</i>	<i>cax8r</i>	<i>cax8r</i>
d'éléments		<i>cax6r</i>	<i>cax6r</i>	<i>cax6r</i>	<i>cax6r</i>
Nombre d'éléments	185	371	357	342	359

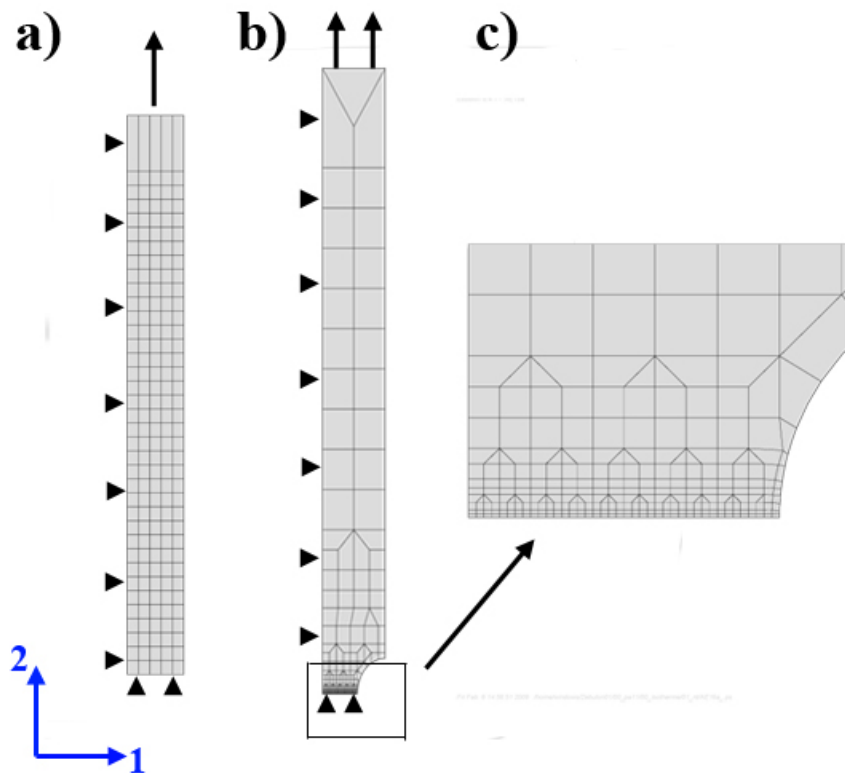


FIGURE 8.1 – Maillage et conditions aux limites pour : a) une éprouvette lisse ; b) et c) une éprouvette entaillée de type $NT_{1.6}$.

8.2.2 Identification des paramètres élastiques

Les valeurs utilisées concernant le module de Young et le coefficient de Poisson sont les valeurs obtenues lors des essais de spectrométrie mécanique présentés chapitre 4. Ainsi, à 0°C , il s'avère que $E = 1500 \text{ MPa}$ et $\nu = 0.42$. La détermination de la limite d'élasticité s'effectue par identification graphique et s'avère plus ou moins compliquée car dépendant de la précision des courbes obtenues. R_0 n'a pas un réel sens physique et sa valeur dépend de la méthode employée pour le définir. Par exemple, en se basant sur la méthode usitée dans le cas des matériaux métalliques, nous aurions pu considérer $R_{0,2}$ qui correspond à la valeur de la contrainte nominale pour une déformation plastique de 0.2%. R_0 , correspondant à la limite entre les domaines élastique et visco-plastique, fluctue sous l'effet non seulement de la vitesse mais également de la température. La figure 8.2 présente la méthode de caractérisation de la limite d'élasticité à 0°C et pour une vitesse de déformation axiale 1 s^{-1} . Il apparaît que R_0 serait de l'ordre de 10 MPa . Une limite élastique similaire est obtenue à plus faible vitesse de déformation ($\dot{\epsilon} = 1.10^{-3} \text{ s}^{-1}$).

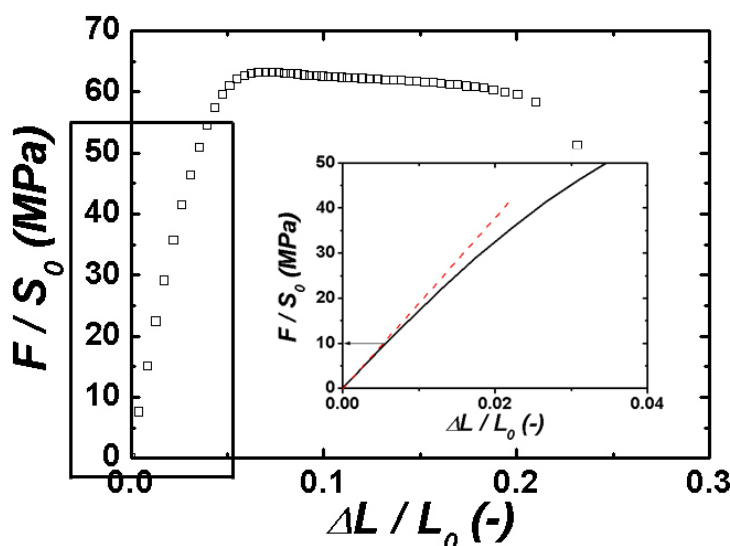


FIGURE 8.2 – Détermination graphique de R_0 à partir d'un essai de traction uniaxiale à 0°C et $\dot{\epsilon} = 1 \text{ s}^{-1}$.

Remarque 8.3 La valeur de la limite d'élasticité du PA11 obtenue par ARKEMA diffère de celle que nous utilisons ici, leur valeur avoisinant 50 MPa . Cette différence s'explique par la technique employée en vue de déterminer R_0 : il s'agit d'une caractérisation bilinéaire à partir des pentes élastique et du rhéodurcissement.

8.2.3 Identification des paramètres visco-plastiques

Les paramètres visco-plastiques se caractérisent par

- les coefficients K et n de la loi de Norton, Q et b identifiés par l'intermédiaire des essais sur éprouvettes lisses, puis éventuellement affinés à partir des essais sur les éprouvettes entaillées ;

- les coefficients A et B qui définissent le rhéodurcissement, uniquement identifiés à partir des essais sur les éprouvettes entaillées.

Concernant les éprouvettes lisses, n'est considérée que la partie de la courbe contrainte-déformation avant striction, soit jusqu'à l'obtention de la contrainte maximale. Lafarge (2004) a effectué, dans le cas du PVDF, une étude de la sensibilité des paramètres définissant le comportement. Dès lors, cette étude n'est pas présentée ici.

La loi de Norton (équation 8.2) permet de décrire la non-linéarité du comportement mécanique de la phase amorphe grâce au paramètre n et K influe sur l'intensité de la vitesse de déformation. Concernant Q et b , le premier consiste en la contrainte d'écoulement maximale et le second en la vitesse de saturation. L'optimisation de l'ensemble de ces paramètres s'effectue, dans un premier temps, à travers les essais uniaxiaux sur éprouvettes lisses. La figure 8.3 présente les courbes contrainte-déformation expérimentales et numériques. Il s'avère qu'une bonne correspondance est obtenue en particulier à vitesse de déformation plus élevée. Il n'existe pas une unique valeur du couple (K , n) permettant de bien prendre en compte le caractère visqueux du matériau. Il est donc possible de déterminer K et n de telle sorte que la viscosité soit bien simulée sur une plage de vitesses plus grande. Ce jeu "parfait" de paramètres fut obtenu par l'intermédiaire d'une optimisation de type "programmation quadratique séquentielle" (Sequential Quadratic Programming, *sqp*) (Stoer 1985). Cependant, bien que parfait dans le cas des éprouvettes lisses, ce jeu de coefficients n'était pas le plus adéquat sur les autres types de géométries considérées, le meilleur compromis étant celui présenté ici.

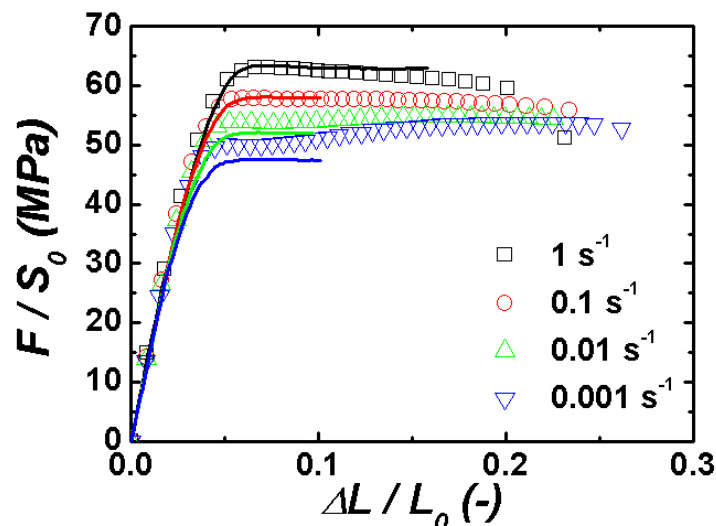


FIGURE 8.3 – Comparaison des courbes contrainte-déformation expérimentales (symboles) et numériques (trait plein) en traction uniaxiale sur éprouvettes lisses à 0°C pour le PA11.

La figure 8.4 présente l'évolution de la contrainte ($\sigma = F/S_0$) en fonction de la réduction du diamètre de la section minimale pour les quatre géométries considérées. Les simulations numériques sur éprouvettes *NT* permettent d'affiner les coefficients du modèle et également de déterminer

les paramètres A et B permettant la prise en compte du rhéodurcissement. Il apparaît que le jeu de coefficients s'avère mieux adapté et rend bien compte de l'évolution de la contrainte quel que soit le taux de triaxialité considéré.

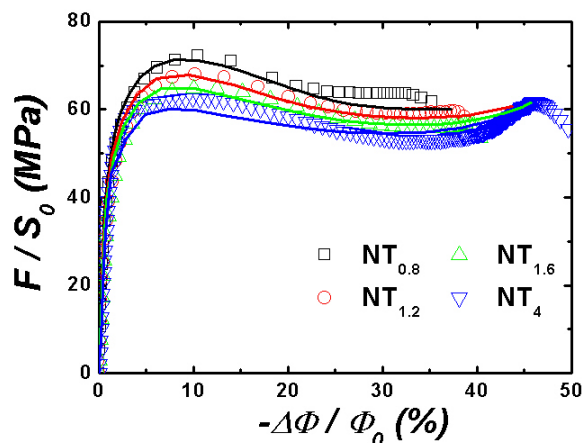


FIGURE 8.4 – Comparaison des courbes contrainte-déformation expérimentales (symboles) et numériques (trait plein) en traction uniaxiale sur éprouvettes entaillées à 0°C pour le PA11.

Les coefficients décrivant le comportement du PA11 sont répertoriés dans le tableau 8.2.

TABLEAU 8.2 – Coefficients décrivant le comportement mécanique du PA11 à 0°C.

Paramètre	Unité	Valeur
E	MPa	1500
ν	–	0.42
K	MPa.s ^{-1/n}	38.5
n	–	10
R_0	MPa	10
Q	MPa	20
b	–	30
A	MPa	7.90
B	–	3

8.3 MODÉLISATION DU COMPORTEMENT DE LA MATRICE PLASTIFIÉE ET VIEILLIE

La méthode utilisée coïncide trait pour trait avec la méthode utilisée pour le PA11. Dans un premier temps, les paramètres optimisés pour le PA11 ont été utilisés puis affinés en fonction des résultats. La figure 8.5 présente les courbes contrainte-déformation expérimentales et numériques pour trois vitesses de déformation : 0.1 s⁻¹, 0.01 s⁻¹ et 0.001 s⁻¹ soit seulement deux décades.

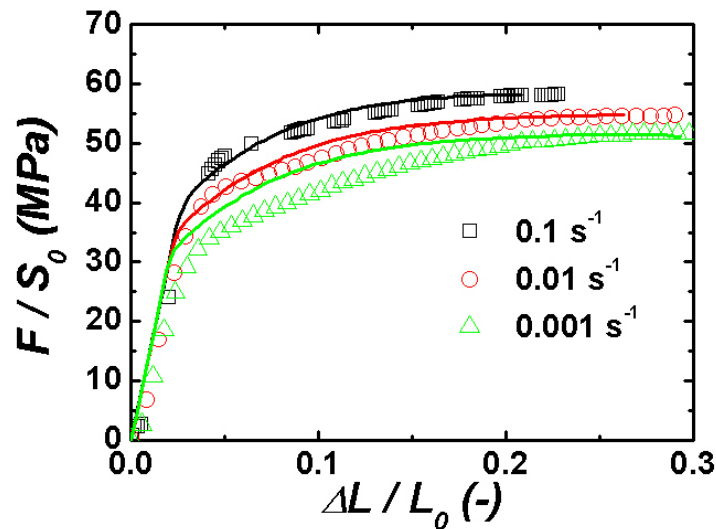


FIGURE 8.5 – Comparaison des courbes contrainte-déformation expérimentales (symboles) et numériques (trait plein) en traction uniaxiale sur éprouvettes lisses à 0°C pour le "aged P40".

A la différence du PA11, il est essentiel de modifier les paramètres définissant la loi de comportement afin de simuler numériquement les essais de traction uniaxiale sur les éprouvettes entaillées de type NT_4 . Les effets visqueux semblent corrects mais l'écrouissage est beaucoup trop important. Une explication à la modification des paramètres pourrait être la suivante : lors des essais de traction uniaxiale sur les éprouvettes entaillées, il n'a pas été possible de mesurer les déformations axiales par l'intermédiaire d'un capteur. Dès lors, nous sommes obligés de travailler en déplacement imposé divisé par une constante (la longueur utile initiale de l'éprouvette) pour obtenir une déformation. Ainsi, les informations obtenues reflètent plus le comportement d'une structure que le comportement du matériau, cela pouvant expliquer les quelques variations des paramètres entre les simulations des deux géométries. Les courbes résultantes des simulations numériques sont présentées sur la figure 8.6 et correspondent à l'évolution de la contrainte en fonction de la réduction du diamètre de la section minimale. Il se doit d'être ajouté que les simulations numériques des essais sur éprouvettes lisses en appliquant les paramètres obtenus sur éprouvettes NT sont cependant correctes, l'unique différence étant localisée au niveau de la rigidité de l'éprouvette qui est légèrement minimisée. Dès lors, comme nous portons un intérêt plus grand sur les essais mécaniques sur éprouvettes entaillées, le jeu de paramètres déduit de leurs simulations est préféré.

Le tableau 8.3 résume les valeurs des coefficients du modèle numérique afin de simuler le comportement mécanique du matériau "aged P40". Il s'avère que ces paramètres diffèrent de ceux utilisés pour le PA11, cela signifiant qu'il est nécessaire de considérer le "aged P40" comme un nouveau matériau. Les échantillons ne présentant pas de propagation de la striction, sous-entendant que les fibrilles ne s'étirent pas ou très peu et

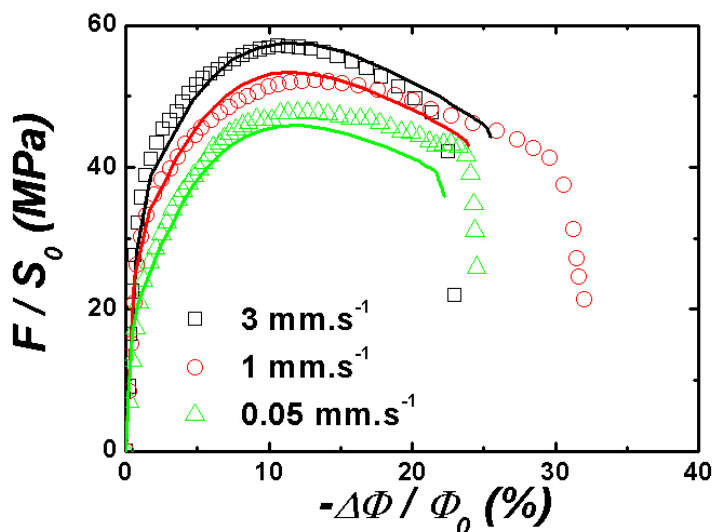


FIGURE 8.6 – Comparaison des courbes contrainte-déformation expérimentales (symboles) et numériques (trait plein) en traction uniaxiale sur éprouvettes entaillées à 0°C pour le "aged P40".

ainsi n'engendrent pas de résistance supplémentaire, le comportement mécanique du matériau doit pouvoir être décrit en considérant nuls les paramètres A et B définissant le rhéodurcissement. En effet, la limite viscoplastique R_0 et l'écroissage isotrope suffisent pour rendre compte du comportement mécanique du "aged P40".

TABLEAU 8.3 – Coefficients décrivant le comportement mécanique du "aged P40" à 0°C.

Paramètre	Unité	NT
E	MPa	1500
ν	–	0.42
K	MPa.s ^{-1/n}	25
n	–	5
R_0	MPa	5
Q	MPa	40
b	–	10
A	MPa	0
B	–	0

8.4 MODÉLISATION DU COMPORTEMENT DU "AGED P20 EPR"

Les résultats des simulations comparés à ceux obtenus expérimentalement sont présentés figure 8.7 pour les essais de traction uniaxiale sur éprouvettes lisses et sur la figure 8.8 pour les essais de traction uniaxiale sur éprouvettes entaillées de type NT₄. Concernant la première, il s'agit de l'évolution de la contrainte nominale en fonction de la déformation calculée comme le rapport du déplacement imposé par la longueur utile

de l'éprouvette, l'absence de capteur de déformation nous obligeant à travailler de la sorte. On s'attend ainsi à être confronté au même problème que pour le "aged P40" quant à la légère modification des paramètres lors du passage éprouvette lisse, éprouvette entaillée. Pour la seconde, l'évolution de la contrainte nominale (rapport de la force par la section minimale initiale de l'éprouvette) est tracée en fonction de la réduction du diamètre de cette même section.

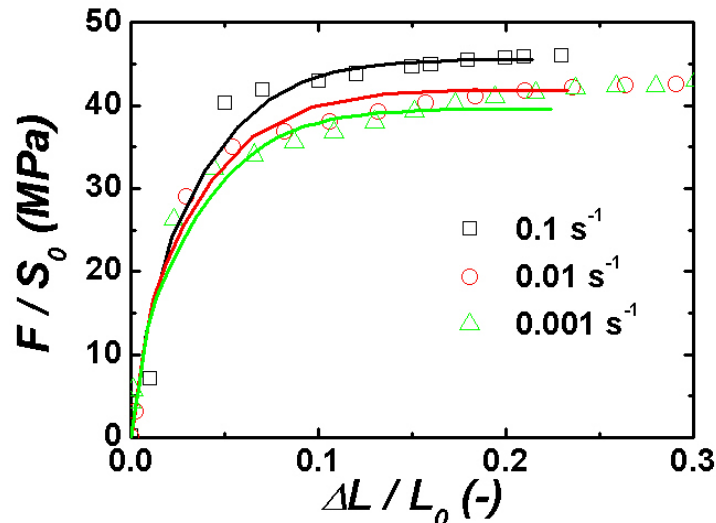


FIGURE 8.7 – Comparaison des courbes contrainte-déformation expérimentales (symboles) et numériques (trait plein) en traction uniaxiale sur éprouvettes lisses à 0°C pour le "aged P20 EPR".

La modélisation du comportement mécanique du "aged P20 EPR" nécessite un jeu de coefficients pour chaque vitesse considérée. En effet, un jeu unique ne permet pas de rendre compte des changements de mécanismes de déformation en fonction des vitesses. Afin de décrire au mieux chaque vitesse, les paramètres correspondant à la limite visco-plastique, l'écroutissage isotrope et le rhéodurcissement doivent être affinés. Une certaine logique apparaît quant à l'évolution de ces derniers, résumés dans le tableau 8.4. Il semble que la vitesse de déplacement imposé diminuant :

- la contrainte visco-plastique diminue
- concernant l'écroutissage : la contrainte d'écoulement maximale Q augmente et compense ainsi la chute de la contrainte visco-plastique ; la vitesse de saturation b diminue.
- concernant le second écroutissage définissant le rhéodurcissement : le paramètre A augmente, accroissant l'effet du rhéodurcissement mais la diminution du paramètre B le retarde.

Dès lors, cela revient à considérer un matériau différent pour chaque vitesse de traction en dépit des quelques similitudes des valeurs des coefficients intervenant dans la loi de comportement.

En observant le tableau 8.4, il est possible de constater que les paramètres décrivant les essais de traction sur éprouvettes lisses sont équivalents à ceux obtenus sur éprouvettes NT pour une seule vitesse égale à

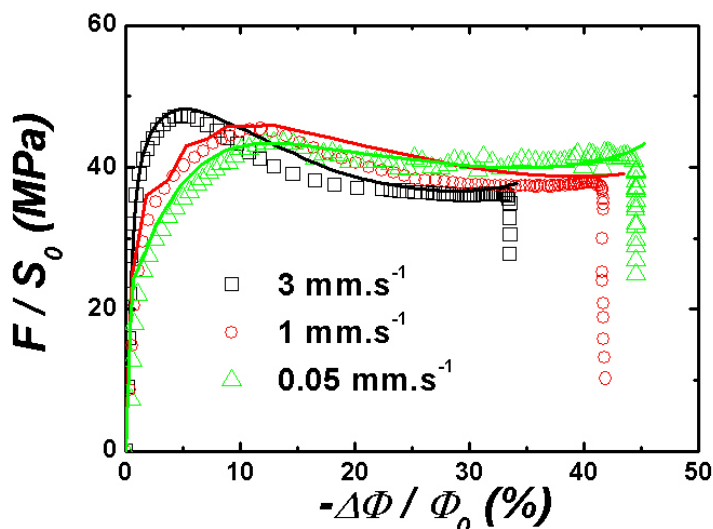


FIGURE 8.8 – Comparaison des courbes contrainte-déformation expérimentales (symboles) et numériques (trait plein) en traction uniaxiale sur éprouvettes entaillées à 0°C pour le "aged P20 EPR".

1 mm.s^{-1} . Le fait que nous soyons obligés d'utiliser un jeu de paramètres différents pour des essais de traction sur éprouvettes NT à des vitesses de 0.05 mm.s^{-1} et 3 mm.s^{-1} pourrait s'expliquer par la loi de Norton qui ne serait adaptée que sur une plage limitée de vitesses. Ainsi, afin de simuler le comportement d'un matériau, il apparaîtrait nécessaire de considérer une loi de Norton définie par deux fonctions : une pour les vitesses faibles et une seconde pour les vitesses plus élevées. Le fait de travailler sur un polymère biphasé peut être une seconde explication aux différences constatées. La présence des nodules de caoutchouc pourrait engendrer un comportement endommageable différent selon la vitesse considérée et cela stipulerait que le modèle de Gurson modifié par Tvergaard (1982), Tvergaard et Needleman (1984), sous sa forme actuelle, n'est pas le modèle convenable pour ce genre de matériau. Une dernière explication concerne le paramètre R_0 de la loi d'écrouissage qui est un terme purement déviatorique. Or, il est bien connu que le seuil d'écoulement des polymères dépend de la trace du tenseur des contraintes étant donné que les polymères sont sensibles à la pression hydrostatique. Dès lors, cette sensibilité pourrait être accrue dans le cas des polymères renforcés par une seconde phase.

Remarque 8.4 L'ensemble des résultats présentés au cours de ce chapitre consiste en des simulations couplées comportement-endommagement. Cependant, dans le cas du PA11 et du "aged P40", la détermination des paramètres du comportement à partir des essais de traction uniaxiale sur des éprouvettes lisses a été effectuée en négligeant l'endommagement par croissance de cavités (cependant l'endommagement est pris en compte pour simuler les essais sur les éprouvettes entaillées). En effet, au cours des chapitres suivants (chapitres 9 et 10), nous verrons que pour ces deux matériaux, la variation de volume par croissance de cavités s'avère très faible à faible

TABLEAU 8.4 – Coefficients décrivant le comportement mécanique du "aged P20 EPR" à 0°C.

Paramètre	Unité	Ep. Lisse	NT		
			3 mm.s ⁻¹	1 mm.s ⁻¹	0.05 mm.s ⁻¹
E	MPa	1500	1500	1500	1500
ν	–	0.42	0.42	0.42	0.42
K	MPa.s ^{-1/n}	20	20	20	20
n	–	5	5	5	5
R_0	MPa	15	20	15	15
Q	MPa	30	15	32	35
b	–	40	40	10	10
A	MPa	0	1.5	5.5	6.5
B	–	0	5.	3	3

triaxialité (quelques pourcents) et peut ainsi être négligée. Cette conclusion ne s'applique pas pour les matériaux renforcés par une seconde phase d'élastomères ("aged P20 EPR" et "aged P20 NBR") qui subissent des variations de volume importantes (20 – 30%) liées à la cavitation des nodules.

8.5 CONCLUSIONS

Ce sous-chapitre, dédié à la simulation du comportement mécanique à partir d'essais uniaxiaux sur éprouvettes lisses et entaillées, permet de dégager plusieurs conclusions.

D'une part, d'un point de vue expérimental, l'absence d'un capteur de déformation dans la direction de la contrainte principale maximale nous oblige à identifier un comportement mécanique d'une structure et non du matériau lors des essais de traction uniaxiale. Cela permet d'amorcer un début d'explication quant aux différences observées concernant la valeurs des coefficients de la loi de comportement, lors du passage éprouvette lisse-éprouvette entaillée.

D'autre part, il apparaîtrait que la considération d'une loi de Norton par une unique fonction pour rendre compte des effets visqueux n'est pas suffisante et qu'il faudrait en considérer deux : une première pour prendre en compte les effets visqueux à basse vitesse et une seconde à plus grande vitesse. Enfin, même si ce chapitre ne traite pas de l'endommagement des matériaux, il s'avère impossible de ne pas l'évoquer suite aux résultats obtenus pour le "aged P20 EPR".

Concernant le PA11 et le "aged P40", il semble que le modèle permet de décrire de manière assez concrète les comportements mécaniques des matériaux. Cependant, lorsqu'on s'intéresse à un matériau renforcé la simulation du comportement mécanique à différentes vitesses s'avère plus difficile et impose le choix de différents paramètres selon la vitesse et donc la considération de matériaux différents. Cette remarque sera développée plus en détail au cours du chapitre 11.

Outre les différents points abordés, une dernière conclusion est mise en évidence. Les trois matériaux considérés, qui sont des grades différents

de PA11, doivent être traités comme trois matériaux différents. Les valeurs de coefficients, répertoriés dans le tableau 8.5, ne présentent pas de similitudes particulières.

TABLEAU 8.5 – Récapitulatifs des paramètres à 0°C pour le PA11, le "aged P40" et le "aged P20 EPR".

Paramètre	Unité	PA11	Aged P40	Aged P20 EPR
E	MPa	1500	1500	1500
ν	–	0.42	0.42	0.42
K	$MPa.s^{-1/n}$	38.5	25	20
n	–	10	5	5
R_0	MPa	10	5	15
Q	MPa	20	40	32 – 35
b	–	30	20	10
A	MPa	7.90	0	5 – 6
B	–	3	0	3

Quatrième partie

Germination, croissance et coalescence ou quand l'endommagement s'en mêle

ÉTUDE DE L'ENDOMMAGEMENT PAR CROISSANCE DE CAVITÉS DU PA11

SOMMAIRE

9.1	ENDOMMAGEMENT À FAIBLES TAUX DE TRIAXIALITÉ DES CONTRAINTES	183
9.1.1	Introduction	183
9.1.2	Mode opératoire	183
9.1.3	Mesure de densité par pycnométrie	183
9.1.4	Résultats & analyses	184
9.1.5	Informations complémentaires par rétro-diffusion cohérente	186
9.2	INFLUENCE DE LA TRIAXIALITÉ SUR L'ENDOMMAGEMENT	187
9.2.1	Protocole opératoire	187
9.2.2	Observations microscopiques	188
9.2.3	Conclusions	192
9.3	MODÉLISATION DE L'ENDOMMAGEMENT : LE MODÈLE GTN	193
9.3.1	Le critère de plasticité macroscopique de Gurson	193
9.3.2	Le critère de plasticité macroscopique de Gurson (Leblond et Perrin 1996)	197
9.3.3	Extension du modèle de Gurson	198
9.4	RÉSULTATS DE LA MODÉLISATION	200
9.4.1	Expression de q_2	200
9.4.2	Evolution de la porosité en cours de déformation	201
9.4.3	Evolution de la triaxialité sur NT_4	203
9.4.4	Evolution de la contrainte dans les éprouvettes NT	204
9.4.5	Calculs cellulaires	206
9.5	CONCLUSIONS	208

Ce chapitre a pour vocation d'étudier les mécanismes d'endommagement ainsi que l'influence du taux de triaxialité des contraintes sur l'endommagement du polyamide 11. Par l'intermédiaire d'observations microscopiques, de coupes obtenues par microtomie, d'échantillons issus

d'essais interrompus avant la rupture, nous montrons que plus le taux de triaxialité est élevé, plus l'endommagement est important. Il s'agit d'un endommagement dû à la croissance des cavités initialement présentes dans le matériau (de l'ordre de 1%). Enfin, par l'intermédiaire du modèle de Gurson et des paramètres q_1 et q_2 , introduits par [Tvergaard \(1981; 1982\)](#), il s'avère possible de décrire l'endommagement, en cours de déformation, du polyamide 11.

9.1 ENDOMMAGEMENT À FAIBLES TAUX DE TRIAXIALITÉ DES CONTRAINTES

9.1.1 Introduction

La rétro-diffusion cohérente, présentée au cours du chapitre 2 section 2.2.2, permet d'obtenir des informations sur l'endommagement d'un matériau tels que la densité de vides et le rayon moyen des cavités dans le cas de matériaux non renforcés ou, dans le cas de matériaux renforcés, la densité et la fraction de vide des nodules cavités. Cette technique nécessite un protocole opératoire très précis, notamment concernant la taille de l'échantillon. En effet, une des conditions nécessaires pour obtenir des résultats exploitables est que l'échantillon ait une largeur de 10 *mm* permettant au faisceau laser de ne pas déborder de l'échantillon. Ainsi, cette technique est généralement utilisée sur des éprouvettes lisses ; cela nous permet de nous intéresser, pour la matrice de PA11, à l'endommagement à faible taux de triaxialité des contraintes ($\tau_\sigma \approx 0.33$).

9.1.2 Mode opératoire

Les essais consistent en des essais de traction uniaxiale sur des éprouvettes lisses usinées à partir de plaques extrudées fournies par ARKEMA. Les essais se déroulant à 0°C, l'échantillon est placé dans une enceinte thermique régulée à la température de consigne grâce à des injections d'azote. La technique de la rétro-diffusion cohérente nécessitant que le faisceau laser traverse l'échantillon, l'enceinte ne peut être fermée. Ainsi, pour palier ce problème, une plaque de plexiglas, munie de joints pour assurer l'étanchéité et dotée d'un trou afin de laisser passer le faisceau, est utilisée pour maintenir l'enceinte close. Il a été expliqué que pour déterminer la variation de volume liée à la cavitation, il est nécessaire de connaître les déformations traverses et transverses. Cependant, dans notre cas, il n'est pas possible d'utiliser des jauges de déformation, les capteurs ayant une déformation limite de l'ordre de 20%, bien trop faible dans le cas de nos matériaux ; de plus, l'encombrement dans l'enceinte est déjà important. Ainsi, pour tout de même avoir accès à la déformation axiale, une grille de points noirs de diamètre 1 *mm* et espacés de 2.5 *mm* a été peinte sur les échantillons. Cela nous permet d'obtenir la déformation axiale en fin d'essai. Au vu des conditions, dans le cas de l'étude, il n'est pas possible de suivre l'endommagement en cours d'essai mais uniquement en fin d'essai.

9.1.3 Mesure de densité par pycnométrie

9.1.3.1 Définition

La pycnométrie consiste en une technique permettant de mesurer des densités d'échantillons, des masses volumiques d'échantillons ou le titre dans le cas d'un alliage. Dans notre cas, les mesures de densité d'un même matériau dans deux états différents (non endommagé et endommagé) nous permettent d'accéder à la variation de volume par cavitation en négligeant la part élastique. Concernant le matériau endommagé, nous

mesurons la densité dans la zone strictionnée où l'endommagement est maximal. Pour ce faire, nous découpons cette zone en plusieurs parallélépipèdes d'épaisseur de la zone strictionnée, de 2 – 3 mm de largeur et de 10 mm de longueur. Il est apparu en cours de mesure que, plus le volume de matière était important, et plus les mesures étaient précises. Cette technique d'apparence simple, est en réalité assez compliquée à mettre en œuvre car elle nécessite énormément de minutie. Elle fait intervenir un récipient, appelé pycnomètre, dont le volume est parfaitement déterminé.

9.1.3.2 Théorie

La masse volumique $\rho(t)$ d'un corps homogène, quotient de sa masse m et de son volume $V(t)$, exprime l'arrangement de la matière de ce corps à la température T . La densité d'un corps $d_{T_0}^T$ est le rapport entre sa masse volumique et la masse volumique de l'eau, prise généralement à $T_0 = 4^\circ\text{C}$.

Un pycnomètre est un flacon dont le col et le bouchon s'ajustent exactement. Une fois rempli, le pycnomètre rejette par un fin capillaire l'excédent de liquide, de sorte que sa capacité est toujours la même si la température reste constante.

Dans la méthode du flacon, la masse volumique d'un échantillon ρ_{ech} est déterminée par les trois pesées suivantes :

- La masse du pycnomètre rempli de liquide : $m_1 = m_{pyc} + m_{liqu}$
- La masse de l'échantillon seul : $m_2 = m_{ech}$
- La masse du pycnomètre rempli de liquide avec l'échantillon immergé dedans : $m_3 = m_{pyc} + m_{ech} + m_{liqu} - \Delta m_{liqu}$ où la masse de liquide en moins est exprimée par : $\Delta m_{liqu} = \rho_{liqu} \cdot V_{ech} = \frac{\rho_{liqu}}{\rho_{ech}} \cdot m_{ech}$

De la combinaison de ces quatre équations, on obtient la masse volumique ρ_{ech} et la densité de l'échantillon :

$$\rho_{ech}(T) = \frac{m_2}{m_1 + m_2 + m_3} \cdot \rho_{liqu}(T) \quad (9.1)$$

$$d_{T_0}^T = \frac{m_2}{m_1 + m_2 + m_3} \cdot \frac{\rho_{liqu}(T)}{\rho_{eau}(T_0)} \quad (9.2)$$

Le liquide utilisé sera de l'eau distillée. Il est nécessaire de prendre soin d'éliminer toute bulle d'air en contact avec l'échantillon ou avec les parois du flacon. S'il s'avère difficile d'éviter les bulles d'air ou si l'échantillon réagit avec l'eau, il est conseillé d'employer un autre liquide tel que l'alcool, le pétrole, le tétrachlorure de carbone... Notre but étant de mesurer la variation de volume entre un matériau non endommagé et un matériau endommagé, deux mesures doivent donc être effectuées. Au vu des résultats, il semble que le temps d'expérience est suffisamment court pour considérer que le PA11 n'absorbe pas l'eau distillée. D'ailleurs, nous réussissons à obtenir la densité fournie par ARKEMA lors de mesures sur un échantillon non endommagé.

9.1.4 Résultats & analyses

Les résultats de mesures de densité et donc de variation de volume sont résumés dans le tableau 9.1. Chaque échantillon a été mesuré deux

ou trois fois pour s'assurer du bon déroulement de la méthode ; ainsi une densité moyenne \bar{x} ainsi que l'écart type sd ont pu être déterminés pour chaque échantillon tels que

$$\bar{x} = \frac{1}{n} \sum_{i=1}^n x_i \quad (9.3)$$

$$sd = \sqrt{\frac{1}{n} \sum_{i=1}^n (x_i - \bar{x})^2} \quad (9.4)$$

avec x_i la densité de l'échantillon et n le nombre total de mesure pour un échantillon. Enfin la variation de volume $\Delta V/V_0$ est définie comme :

$$\frac{\Delta V}{V_0} = \bar{x}_{\text{matériau sain}} - \bar{x}_{\text{matériau endommagé}} \quad (9.5)$$

La première ligne du tableau est consacrée au matériau non endommagé ; les lignes 2 à 4 aux matériaux endommagés.

TABLEAU 9.1 – Résultats des mesures de variation de volume par pycnométrie

$\dot{\epsilon}$ (s^{-1})	ϵ_{axial} (%)	densité (g/cm^3)			\bar{x} (g/cm^3)	sd (g/cm^3)	$\frac{\Delta V}{V_0}$ (%)
–	–	1.03632	1.032	–	1.03416	0.0034	–
0.1	79	1.031	1.024	1.027	1.02733	0.002867	0.7
0.01	145	1.015	1.019	1.020	1.018	0.00216	1.6
0.001	182	1.001	0.998	1.005	1.0014	0.00279	3.2

La variation de volume, à faible triaxialité, du polyamide 11 s'avère être de l'ordre de quelques pourcents dans la zone strictionnée ce qui dès lors peut être négligeable lors des simulations numériques et confirme l'hypothèse émise lors du chapitre 8. Lors d'essais antérieurs, dans des conditions similaires, des capteurs ont été utilisés afin de suivre les déformations axiale et transverse. Nous nous limitons à la variation de volume avant l'apparition de la striction et nous supposons l'isotropie transverse. Ainsi, la déformation volumique se définit comme :

$$\epsilon_{vol} = \epsilon_L + \epsilon_l + \epsilon_e = \epsilon_L + 2\epsilon_l \quad (9.6)$$

où ϵ_L est la déformation axiale, ϵ_l la déformation dans le sens de la largeur et ϵ_e dans le sens de l'épaisseur.

Les déformations vraies se calculent comme suit

$$\epsilon_L = \ln \left(1 + \frac{\Delta L}{L_0} \right) \text{ et } \epsilon_l = \ln \left(1 + \frac{\Delta l}{l_0} \right) \quad (9.7)$$

où L et l reflètent la longueur et largeur de l'éprouvette en cours de déformation. Concernant la contrainte vraie, elle est obtenue grâce à la relation

$$\sigma_{vraie} = \frac{F}{el} = \frac{F}{e_0 l_0} \left(1 + \frac{\Delta l}{l_0} \right) \quad (9.8)$$

Remarque 9.1 *Il est nécessaire de distinguer la variation volumique expérimentale relative (obtenue à partir de la trace du tenseur des déformations en supposant de petites déformations) à la variation obtenue par pycnométrie. En effet, la variation expérimentale considère le matériau sous contrainte lorsque celle obtenue par pycnométrie ne prend pas en compte la part élastique.*

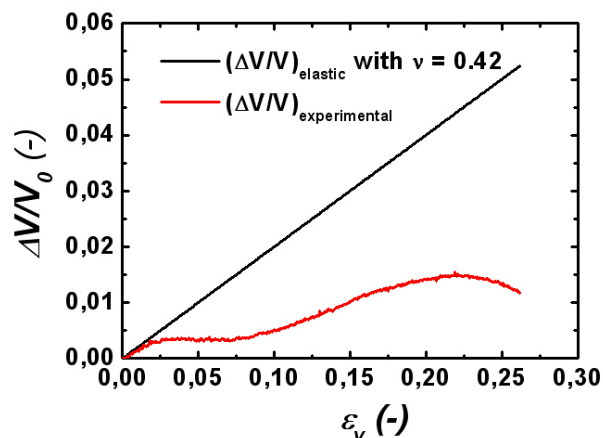


FIGURE 9.1 – Variation volumique du PA11 à 0°C et $\dot{\epsilon} = 0.001s^{-1}$ en traction uniaxiale sur une éprouvette lisse.

9.1.5 Informations complémentaires par rétro-diffusion cohérente

La technique de la rétro-diffusion cohérente couplée aux mesures de variation de volume nous permet d'accéder à deux informations supplémentaires que sont la densité de cavités et leur rayon moyen. L'obtention de ces informations s'opère à travers l'étude du cône de rétro-diffusion cohérente, présenté figure 9.2, qui nous permet de déterminer l'intensité de la lumière et ainsi d'en déduire les valeurs des deux paramètres (figure 9.3).

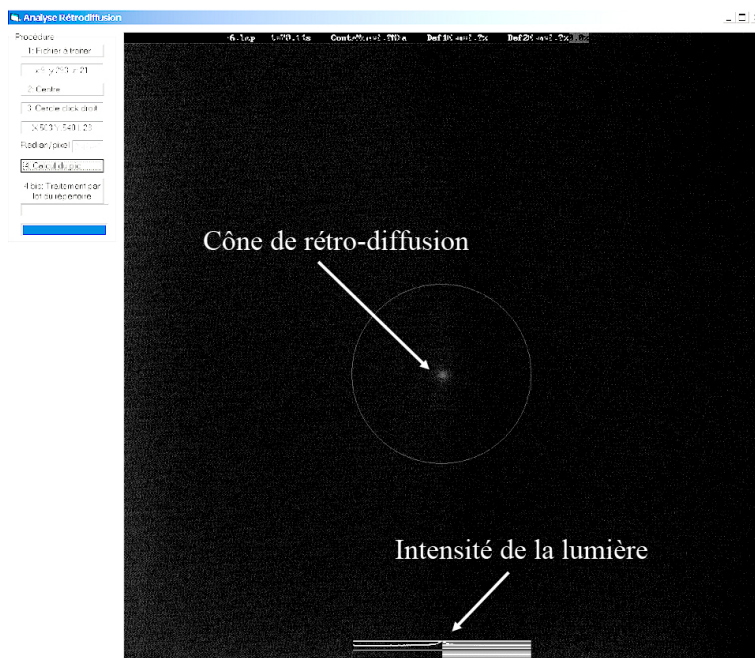


FIGURE 9.2 – Analyse du cône de rétro-diffusion et détermination de $I(q)$.

Afin d'obtenir la densité et le rayon moyen des cavités, il est nécessaire d'une part de donner la variation de volume et d'autre part de borner les valeurs du rayon. Les observations au microscope électronique à ba-

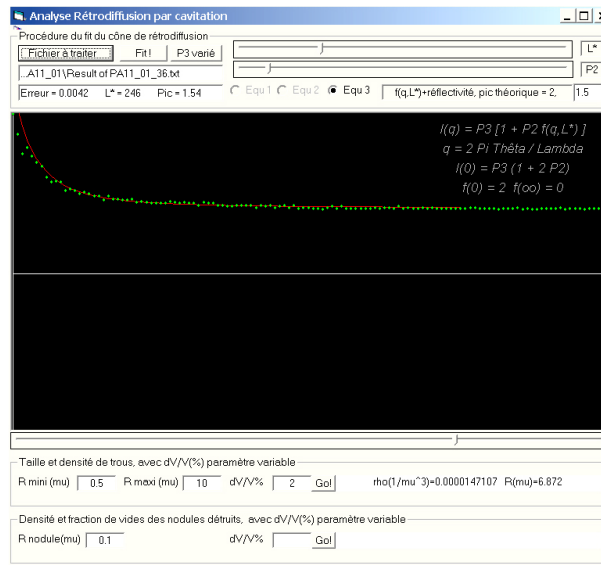


FIGURE 9.3 – Analyse de la courbe $I(q)$ et détermination de la taille et de la densité des cavités.

layage de faciès de PA11 obtenus par cryofractographie nous ayant permis de mettre en évidence des cavités dont le diamètre est de l'ordre du micron, nous choisissons de considérer les valeurs minimale et maximale suivante : $R_{min} = 0.5 \mu m$ et $R_{max} = 10 \mu m$. Les résultats obtenus sont répertoriés dans le tableau 9.2. Aucune information n'a pu être obtenue pour une vitesse de déformation de $0.1 s^{-1}$, l'éprouvette n'étant que très peu blanchie, signe d'un faible endommagement. Les données obtenues sont à considérer avec précaution étant donné que le blanchiment est assez faible, le cône et a fortiori le pic d'intensité lumineuse le sont également. Il semblerait que le rayon moyen des cavités \bar{R} atteigne une valeur de l'ordre de $6 \mu m$ contre $1 - 2 \mu m$ initialement. Concernant la densité de cavités, il apparaît qu'un cube de $1 mm$ de côté contiendrait entre 14000 et 23000 cavités selon la vitesse considérée. Il est d'ailleurs possible de constater qu'entre les deux vitesses de déformation imposées, seule la densité de cavités augmente, le rayon moyen restant fixe.

TABLEAU 9.2 – Densité et rayon moyen des cavités avec pour hypothèse $1 \mu m < \bar{R} < 10 \mu m$.

$\dot{\epsilon}$ (s^{-1})	ϵ_{axial} (%)	$\frac{\Delta V}{V_0}$ (%)	ρ (μm^{-3})	\bar{R} (μm)
0.1	79	0.7	—	—
0.01	145	1.6	0.00001471	6.87
0.001	182	3.2	0.000023537	6.87

9.2 INFLUENCE DE LA TRIAXIALITÉ SUR L'ENDOMMAGEMENT

9.2.1 Protocole opératoire

La microtomie consiste à découper des lames minces dans un échantillon massif. Il est alors possible d'observer à la fois les lames minces

découpées mais aussi la surface de l'échantillon massif qui a alors subi un surfaçage. On distingue l'ultracryomicrotome qui découpe des lames minces d'une dizaine de nanomètres et le microtome, utilisé ici, qui permet de faire des lames de l'ordre du micron.

Remarque 9.2 *Le préfixe "cryo" vient du fait que ces appareils peuvent être équipés d'un dispositif de refroidissement à l'azote qui permet de découper, à l'aide d'un couteau en diamant, des échantillons jusqu'à la température de l'azote liquide.*

Le principe est alors le suivant : après avoir interrompu l'essai, l'échantillon est découpé afin de réduire sa taille et de ne garder que la zone entaillée. Afin d'observer le cœur et de minimiser le temps d'utilisation du microtome, le bout d'échantillon est d'abord découpé grossièrement en deux puis plongé dans l'azote et enfin placé dans le microtome pour affiner la découpe. La découpe est effectuée à l'aide d'un couteau en verre.

Cette méthode permet donc un surfaçage de l'éprouvette qui entrevoit la possibilité d'observer l'endommagement en cœur d'éprouvette en cours d'essai. La surface de l'échantillon (dans notre cas) voire une lamelle de matière peut alors être observée au Microscope Electronique à Balayage (MEB) puis, éventuellement traitée par analyse d'images pour quantifier la porosité (taille, forme, nombre). Par cette méthode, il est donc également possible de suivre l'évolution de la porosité en réalisant une succession d'essais interrompus.

9.2.2 Observations microscopiques

9.2.2.1 Géométrie NT_4

La figure 9.5 est une cartographie de l'endommagement observé en cœur d'éprouvette NT_4 , après surfaçage par microtomie (figure 9.4). Il est ainsi possible de suivre l'évolution de l'endommagement au niveau de la section minimale.

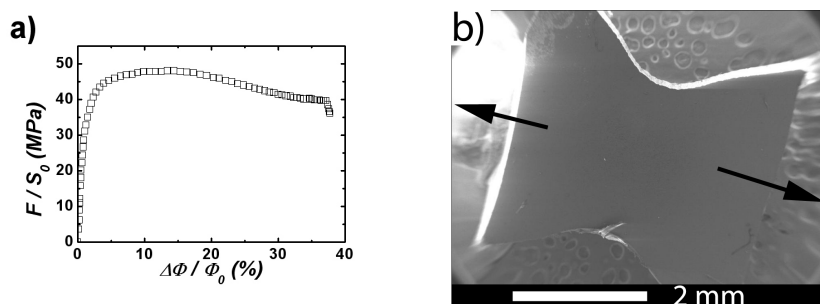


FIGURE 9.4 – Traction uniaxiale à 0°C et $0.05\text{ mm}\cdot\text{s}^{-1}$ interrompue pour un déplacement de 3 mm sur du PA11 : (a) courbe contrainte-déformation ; (b) échantillon NT_4 après surfaçage par microtomie (grossissement *20).

Les cavités (points blancs) sont localisées au centre de cette zone. Il est difficile, avec ce grossissement, de conclure sur la forme ou la taille moyenne. Une analyse de chaque cliché MEB obtenu par analyse d'images permet de déterminer la porosité le long de la section minimale.

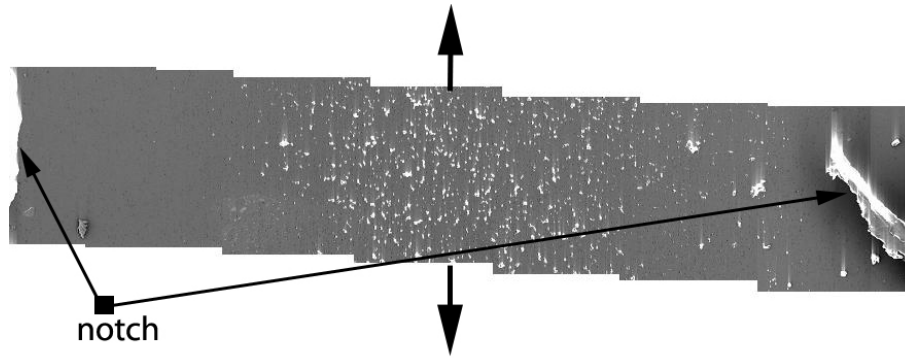


FIGURE 9.5 – Cartographie de la porosité en cœur d'une éprouvette NT_4 de PA11 (gros-sissement $\times 200$).

En cœur, cette valeur de la porosité maximale atteint 5 – 6% (figure 9.6).

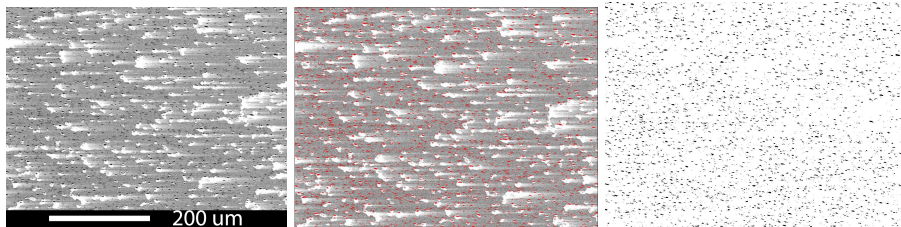


FIGURE 9.6 – Observation et analyse d'images du cœur d'une éprouvette NT_4 de PA11 (gros-sissement $\times 200$).

A plus fort grossissement ($\times 2000$), au centre du ligament, les observations (figure 9.7) mettent en évidence des cavités de forme sphérique ou très légèrement étirées dans le sens de traction, dont la taille oscille entre $2 - 3 \mu m$ et $10 \mu m$. Ces cavités sont également le point d'amorçage de microfissures qui les entourent. Il semble peu probable que ces microfissures aient été générées par le surfacage étant donné qu'aucune direction de propagation ne semble être privilégiée.

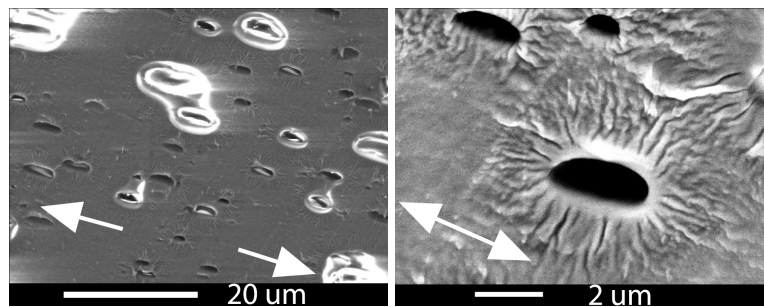


FIGURE 9.7 – Observation du cœur d'une éprouvette NT_4 de PA11 à plus fort grossissement : à gauche grossissement $\times 2000$; à droite $\times 10000$.

9.2.2.2 Géométrie $NT_{1.6}$

La même méthode est appliquée, dans les mêmes conditions, à un essai sur une éprouvette entaillée de rayon 1.6 mm . L'essai est interrompu à même déplacement imposé (figure 9.8).

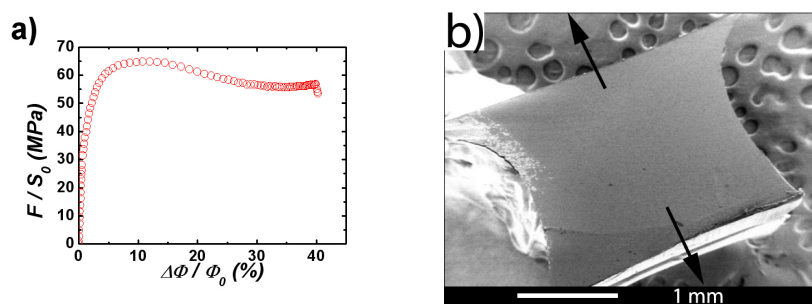


FIGURE 9.8 – Traction uniaxiale à 0°C et 0.05 mm.s^{-1} interrompue pour un déplacement de 3 mm sur du PA11 : (a) courbe contrainte-déformation ; (b) échantillon $NT_{1,6}$ après surfaçage par microtomie (grossissement $\times 30$).

Après surfaçage de l'échantillon et observation MEB, la cartographie présentée figure 9.9 est obtenue. Les cavités sont, en comparaison avec les observations sur NT_4 , mieux réparties sur le ligament mais le cœur du ligament reste cependant la zone privilégiée de la cavitation c'est-à-dire la zone où le taux de porosité est maximal. Enfin les cavités sont étirées et ont ainsi perdu leur forme sphérique. La taille des cavités, dans le sens de l'élongation, atteint $6 - 8\ \mu\text{m}$.

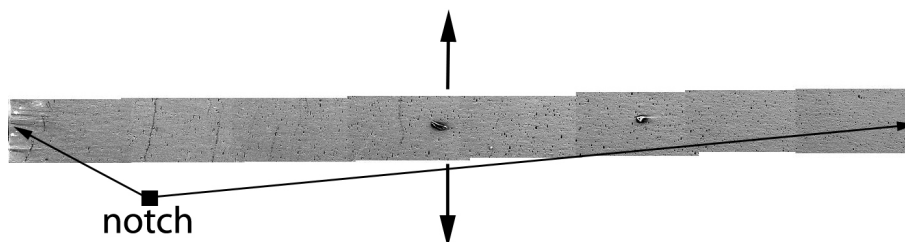


FIGURE 9.9 – Cartographie de la porosité en cœur d'une éprouvette $NT_{1,6}$ de PA11 (grossissement $\times 500$).

L'analyse d'image du cœur de l'éprouvette donne une porosité de l'ordre de 7%. Une analyse à grossissement plus important (cf figure 9.10) affine cette valeur à environ 10%. Pour cet échantillon, aucune microfissure autour des cavités n'a été mise en évidence.

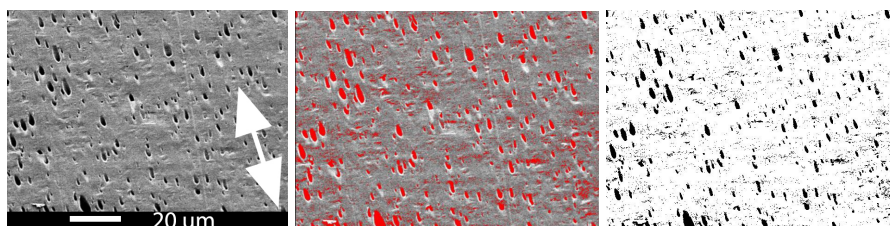


FIGURE 9.10 – Observation du cœur d'une éprouvette $NT_{1,6}$ de PA11 à plus fort grossissement (grossissement $\times 1000$).

9.2.2.3 Géométrie $NT_{0,8}$

La méthode est une nouvelle fois appliquée sur une géométrie de type $NT_{0,8}$ soit à un taux de triaxialité plus important. L'essai a été interrompu pour un déplacement LVDT inférieur (2.5 mm contre 3 mm pour les NT_4 et $NT_{1,6}$) car, pour ce type de géométrie et dans ces conditions de vitesse et

de température (pour rappel 0.05 mm.s^{-1} et 0°C), l'éprouvette se casse aux alentours de 3 mm de déplacement de traverse. Le surfaçage de l'échantillon est présenté figure 9.11.

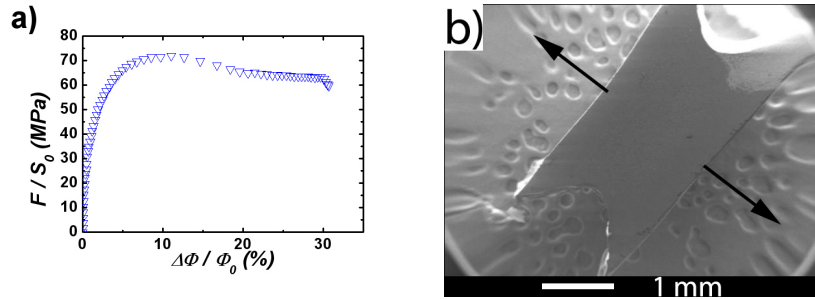


FIGURE 9.11 – Traction uniaxiale à 0°C et 0.05 mm.s^{-1} interrompue pour un déplacement de 2.5 mm sur du PA11 : (a) courbe contrainte-déformation ; (b) échantillon $\text{NT}_{0.8}$ après surfaçage par microtomie (grossissement $\times 20$).

La cartographie de la porosité obtenue au niveau de la section minimale (cf figure 9.12) montre un fort taux de porosité. Ces porosités se situent sur l'ensemble du ligament et une nouvelle fois en majorité au centre.

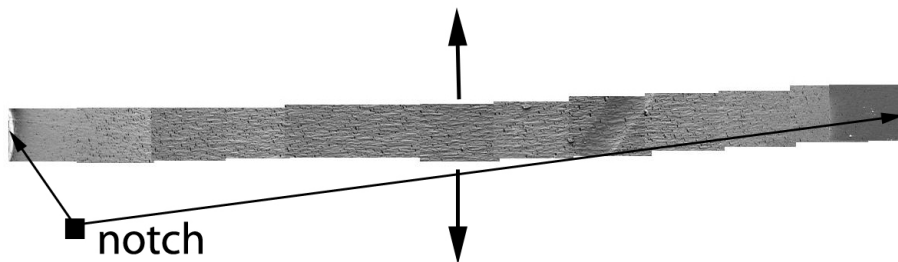


FIGURE 9.12 – Cartographie de la porosité en cœur d'une éprouvette $\text{NT}_{0.8}$ de PA11 (grossissement $\times 500$).

La figure 9.13 est la même cartographie mais pour le demi-ligament et permet de bien souligner l'augmentation de la cavitation en s'éloignant du bord de l'échantillon.

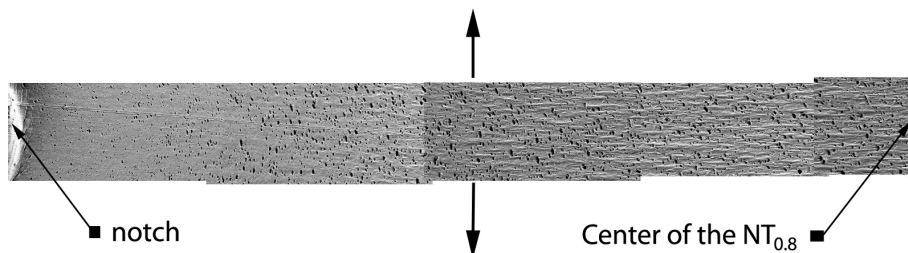


FIGURE 9.13 – Cartographie de la porosité en cœur d'une éprouvette $\text{NT}_{0.8}$ de PA11 pour le demi-ligament (grossissement $\times 500$).

Le taux de porosité en cœur de l'échantillon est évalué à 18% (cf figure 9.14). Les cavités sont étirées et leurs tailles oscillent entre quelques μm et $15 - 20 \mu\text{m}$.

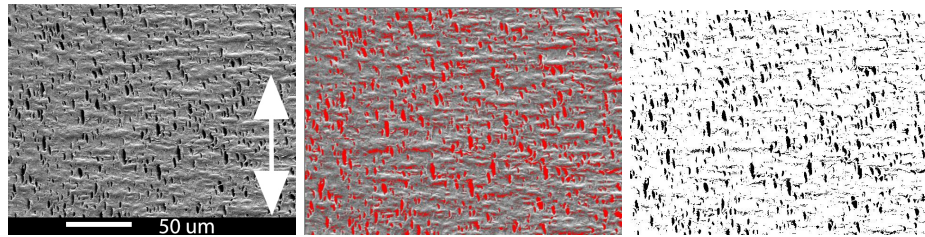


FIGURE 9.14 – Observation du cœur d'une éprouvette $NT_{0,8}$ de PA11 à plus fort grossissement (grossissement $\times 3000$).

Un traitement à grossissement plus élevé donne un résultat équivalent (figure 9.15).

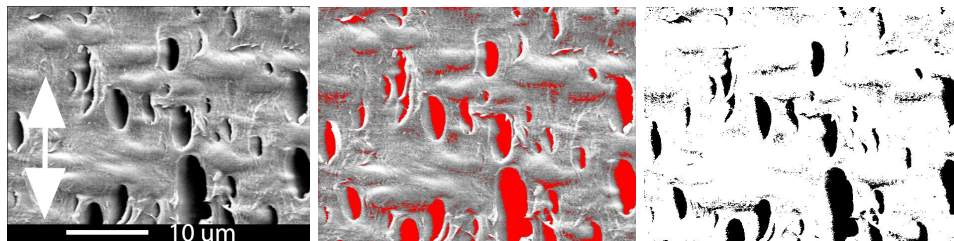


FIGURE 9.15 – Observation du cœur d'une éprouvette $NT_{0,8}$ de PA11 à plus fort grossissement (grossissement $\times 3000$).

9.2.3 Conclusions

La figure 9.16 est un récapitulatif de l'évolution de la porosité au niveau de la section diamétrale déterminée par analyse d'image pour trois rayons d'entaille (4, 1.6 et 0.8 mm). On constate que dans chaque cas, la porosité est maximale au centre. De plus, la diminution du rayon d'entaille équivalente à l'augmentation de la triaxialité est également équivalente à un endommagement par croissance de cavités plus important. En effet, comme on pouvait s'y attendre, la triaxialité a une influence directe sur l'évolution de l'endommagement et a tendance à le favoriser.

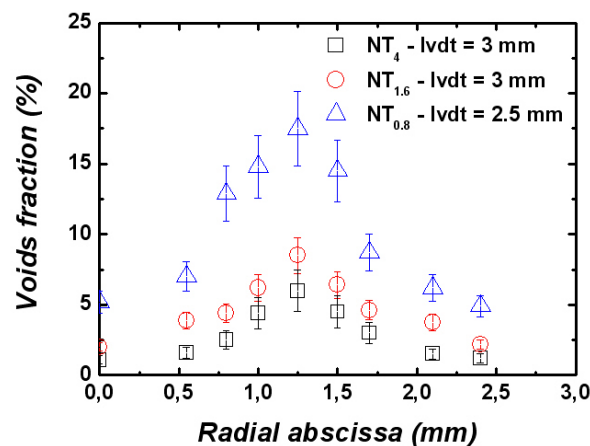


FIGURE 9.16 – Comparaison de la porosité sur le ligament en cœur d'éprouvette dans le cas du PA11.

La méthode de surfacage et d'observation au MEB permet notamment de donner une borne inférieure quant à la valeur de la porosité critique f_c . On appelle porosité critique la valeur de la porosité à partir de laquelle on assiste à la rupture du matériau. Lors de la modélisation éléments finis, cette porosité critique est directement incluse dans le calcul par l'intermédiaire du paramètre q_1 avec la relation $q_1 = 1/f_c$. Ainsi quand le point de Gauss d'un élément atteint la valeur f_c , celui-ci est considéré comme cassé et adopte un module d'Young, dans notre cas, de 1 MPa. La porosité maximale a été obtenue pour la géométrie $NT_{0.8}$ et a atteint une valeur de l'ordre de 20%. f_c est donc supérieur à 20% pour le polyamide 11 neuf.

9.3 MODÉLISATION DE L'ENDOMMAGEMENT : LE MODÈLE GTN

S'inspirant de la démarche de Rice et Tracey (1969) et des travaux de Hill (1947; 1950), Gurson (1977) a développé un modèle de comportement homogénéisé des métaux plastiques poreux. La base du modèle concerne une analyse limite d'une sphère creuse (censée représenter un volume élémentaire dans un milieu poreux) constituée d'un matériau rigide parfaitement plastique ; cette sphère est soumise à un chargement quelconque. Faisant suite à cette analyse est obtenu un critère de plasticité macroscopique approché permettant d'identifier une loi d'écoulement plastique macroscopique ainsi qu'une loi d'évolution de la porosité.

De nombreuses extensions du modèle de Gurson (1977) ont été développées pour inclure la prise en compte de l'écrouissage (Leblond *et al.* 1995, Besson et Guillemer-Neel 2003), de la germination des cavités (Chu et Needleman 1980, Saje *et al.* 1982, Pineau 1992), des interactions (Tvergaard 1981; 1982, Tvergaard et Needleman 1984) ou encore la coalescence des vides (Pardoen et Hutchinson 2000).

9.3.1 Le critère de plasticité macroscopique de Gurson

L'expression du critère macroscopique approchée de Gurson (1977) est donnée par l'expression suivante :

$$\frac{\Sigma_{eq}^2}{\sigma_0^2} + 2f \cosh\left(\frac{3}{2} \frac{\Sigma_m}{\sigma_0}\right) - 1 - f^2 = 0 \quad (9.9)$$

avec Σ_{eq} la contrainte macroscopique équivalente ou invariant de von Mises, $\Sigma_m = \Sigma_{kk}/3$ la contrainte macroscopique moyenne du tenseur des contraintes macroscopiques (matrice + porosité) $\underline{\underline{\Sigma}}$ et, σ_0 la limite d'élasticité de la matrice.

Remarque 9.3 *A la différence des matériaux métalliques dont la limite d'élasticité peut être définie de manière purement déviatorique (Hill 1950), les matériaux polymères sont sensibles à la pression hydrostatique. En effet, Rabinowitz *et al.* (1970), Ward (1971) montrent que le niveau de contrainte à vitesse de déformation constante augmente avec la pression et Rabinowitz et Breadmore (1974) mettent en évidence l'effet de la pression lors d'essais uniaxiaux de traction et compression en comparant les courbes contraintes-déformations. Ainsi, ont été développés les critères de von Mises et Tresca modifiés afin de prendre en compte la pression hydrostatique*

et qui considèrent une dépendance linéaire. Le critère de von Mises modifié prend la forme suivante :

$$\tau_{oct} = \tau_{oct0} + \mu_{vm}P \quad (9.10)$$

avec τ_{oct} la contrainte de cisaillement octaédrique et P la pression définis comme suit dans le repère des contraintes principales :

$$\tau_{oct} = \frac{1}{3} \left((\sigma_1 - \sigma_2)^2 + (\sigma_1 - \sigma_3)^2 + (\sigma_2 - \sigma_3)^2 \right)^{1/2} \quad (9.11)$$

$$P = -\frac{1}{3} (\sigma_1 + \sigma_2 + \sigma_3) \quad (9.12)$$

Un critère de Tresca modifié supposerait l'existence d'une valeur limite de la contrainte maximale de cisaillement dépendant linéairement de la pression.

$$\tau_t = \tau_{t0} + \mu_t P \quad (9.13)$$

où τ_t s'apparente à la contrainte maximale de cisaillement et s'exprime en terme de contrainte principale comme

$$\tau_t = \frac{1}{2} (\sigma_i - \sigma_j)_{max} \quad (9.14)$$

Les critères de von Mises ou Tresca consistent en une réduction des 5 termes du déviateur en un scalaire. Dès lors, une identification de la dépendance à la pression comme une fonction non linéaire s'avèrerait incongrue. Un tel postulat serait équivalent à une considération de la contrainte d'écoulement au premier ordre et une dépendance à la pression au second. Le caractère visqueux de notre matériau ne facilite pas l'analyse déjà ardue pour un matériau élasto-plastique. Par ailleurs, en compression par exemple, le champ n'est pas uniforme à cause des effets de bord. Une solution serait de considérer un échantillon semi-infini irréalisable expérimentalement ou de travailler en torsion. Cependant même en torsion d'autres problèmes se posent rendant également difficiles les analyses extrêmement précises. Dès lors, les incertitudes sont grandes et considérer une variation non-linéaire de la pression s'avèrerait en décalage avec la définition d'un déviateur sous forme scalaire.

Des critères prenant en compte la pression hydrostatique existent et permettent de représenter la déformation plastique de matériaux pulvérulents ou des sols. Ils traduisent une difficulté accrue de déformer plastiquement engendrée par une contrainte hydrostatique et introduisent une dissymétrie traction-compression. Le critère de Drucker-Prager (Drucker et Prager 1952) consiste en une extension du critère de von Mises et s'exprime de la manière suivante :

$$f(\underline{\underline{\sigma}}) = J - \frac{\sigma_y - \alpha I_1}{1 - \alpha} \quad (9.15)$$

avec $J = \left((3/2) s_{ij}s_{ji} \right)^{1/2}$ (avec $\underline{\underline{s}}$ le déviateur $\underline{\underline{\sigma}}$) et I_1 le premier invariant du tenseur des contraintes égal à $\text{Tr}(\underline{\underline{\sigma}})$. La limite d'élasticité en traction vaut σ_y et devient en compression $-\sigma_y / (1 - 2\alpha)$, où α est une caractéristique du matériau compris entre 0 et 1/2. Le critère de Mohr-Coulomb (Chen et Saleeb 1982), apparenté au critère de Tresca car faisant intervenir le cisaillement maximal, est un second critère permettant la prise en compte de la pression hydrostatique par l'intermédiaire de la contrainte moyenne.

$$f(\underline{\underline{\sigma}}) = \sigma_1 - \sigma_3 + (\sigma_1 + \sigma_3) \sin \varphi - 2C \cos \varphi \quad (\text{avec } \sigma_3 \leq \sigma_2 \leq \sigma_1) \quad (9.16)$$

avec C la constante de cohésion et l'angle φ le frottement interne du matériau. D'autres critères dits "fermés" existent également comme le cap model (DiMaggio et Sandler 1971) ou le modèle de Cam-clay (H. Roscoe et al. 1958, Roscoe et Burland 1968).

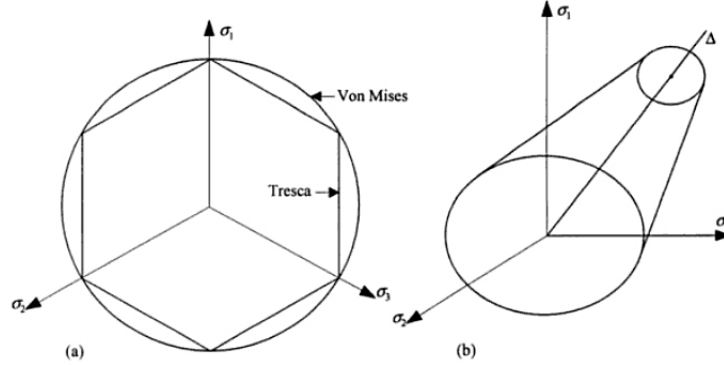


FIGURE 9.17 – a) Représentation des critères de Tresca et von Mises dans le plan perpendiculaire à la diagonale principale Δ du système d'axes principaux du tenseur des contraintes; b) la variation de la pression hydrostatique équivaut à se déplacer sur la droite Δ et engendre la variation du seuil de plasticité (Perez 2001).

Cette exposition de l'état de l'art concernant les modèles permettant la prise en compte de l'effet de la pression hydrostatique, si important pour les matériaux polymères, a fait naître l'idée de développer un modèle élasto-visco-plastique que l'on pourrait également coupler avec le modèle GTN (qui est initialement une extension du modèle de von Mises pour prendre en compte la porosité). Par manque de temps, cette idée reste en gestation mais quelques pistes sont développées ici. Etablir un modèle requiert la définition d'une fonction de charge par l'intermédiaire d'un critère (von Mises, Tresca...), d'une loi d'écoulement pour définir la vitesse de déformation plastique ou viscoplastique (intensité et direction de l'écoulement) et d'une loi d'écrouissage qui caractérise l'évolution des variables d'écrouissage au cours de la déformation inélastique. Dans le cas d'un matériau considéré comme standard généralisé, ce tryptique se définit à l'aide d'un seul potentiel. Or, l'intégration de la pression hydrostatique dans le critère empêche la définition des trois entités précédemment évoquées par un unique potentiel. En effet, la considération de la trace du tenseur des contraintes $\underline{\underline{\sigma}}$ engendre la prise en compte de la variation de volume, qui expérimentalement s'avère être faible. Dès lors, il n'est plus possible d'associer la direction de l'écoulement au domaine d'élasticité, $f(\underline{\underline{\sigma}}, A_I)$ avec A_I les variables d'écrouissage associées aux variables d'état α_I : l'écoulement est dit non associé. Ainsi, il est nécessaire d'introduire une fonction g , portant sur les mêmes variables que f , telle que $g : (\underline{\underline{\sigma}}, A_I) \rightarrow g(\underline{\underline{\sigma}}, A_I)$. L'évolution des déformations plastiques devient :

$$\underline{\underline{\dot{\epsilon}}}^p = \dot{\lambda} \frac{\partial g}{\partial \underline{\underline{\sigma}}} \quad (9.17)$$

avec $\dot{\lambda}$ le multiplicateur plastique déterminé à partir de la condition de cohérence $\dot{F} = 0$ se traduisant

$$\frac{\partial f}{\partial \underline{\underline{\sigma}}} \dot{\underline{\underline{\sigma}}} + \frac{\partial f}{\partial A_I} \dot{A}_I = 0 \quad (9.18)$$

Un exemple d'un tel critère est le critère de Drucker-Prager non associé.

Guo et al. (2008) ont récemment développé une extension du modèle de Gurson au critère de Drucker-Prager.

Cette remarque étant faite, revenons au critère macroscopique de Gurson exprimé équation 9.9. Il est possible de s'intéresser à deux cas particuliers simples (Leblond et Perrin 1996). Le premier serait de considérer un chargement purement hydrostatique, c'est-à-dire $\Sigma_{eq} = 0$. L'équation 9.9 devient alors

$$2f \cosh\left(\frac{3 \Sigma_m}{2 \sigma_0}\right) - 1 - f^2 = 0 \implies \cosh\left(\frac{3 \Sigma_m}{2 \sigma_0}\right) = \frac{1}{2} \left(f + \frac{1}{f}\right) \quad (9.19)$$

Deux solutions sont donc possibles :

$$\begin{aligned} \Sigma_m &= \frac{2}{3} \sigma_0 \ln f \quad (< 0 \text{ car } f < 1 : \text{ compression}) \\ \Sigma_m &= -\frac{2}{3} \sigma_0 \ln f \quad (< 0 : \text{ traction}) \end{aligned} \quad (9.20)$$

Ces valeurs sont les mêmes que celles des charges limites exactes d'une sphère creuse soumise à des chargements hydrostatiques de compression ou de traction (Hill 1947; 1950).

Si on envisage une contrainte macroscopique purement déviatorique telle que $\Sigma_m = 0$, le critère 9.9 devient

$$\frac{\Sigma_{eq}^2}{\sigma_0^2} = 1 + f^2 - 2f \implies \Sigma_{eq} = \sigma_0 (1 - f) \quad (9.21)$$

La solution donnée par le critère de Gurson constitue un majorant de la charge limite exacte en chargement purement déviatorique.

Pour un type de conditions aux limites donné, il est possible, numériquement, de déterminer les solutions exactes, dans le cas d'une sphère creuse, du critère de plasticité macroscopique. La comparaison du modèle de Gurson, avec ce critère exact, pour les deux types de conditions aux limites et dans le cas d'une sphère creuse, est présentée sur la figure 9.18.

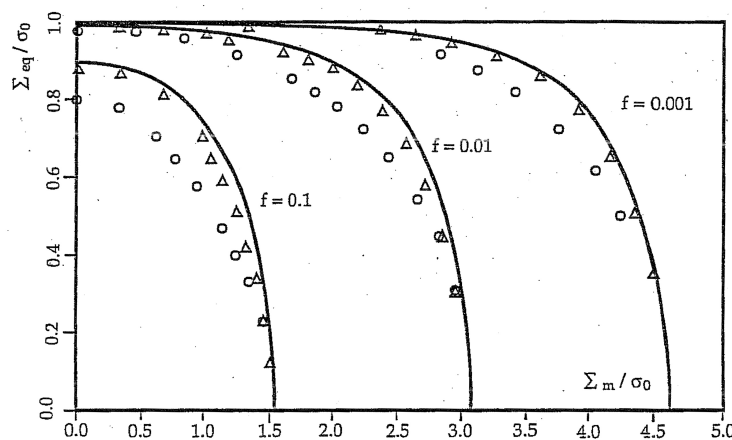


FIGURE 9.18 – Comparaison du critère de Gurson (trait plein) et des critères exacts, déterminés numériquement, d'une sphère creuse, pour des conditions de taux de déformation homogène au bord (triangles) et de contrainte homogène au bord (cercles).

9.3.2 Le critère de plasticité macroscopique de Gurson (Leblond et Perin 1996)

Afin de constituer un modèle de comportement complet, un nombre minimal d'éléments est nécessaire :

- un critère de plasticité,
- une loi d'écoulement plastique,
- une loi d'évolution de la porosité,
- une expression du taux de déformation élastique.

Le critère de plasticité est bien entendu le critère défini par Gurson (1977) et défini équation 9.9. Le taux déformation total $\underline{\underline{\dot{\epsilon}}}$ se décompose en une partie élastique $\underline{\underline{\dot{\epsilon}}^e}$ et une partie plastique $\underline{\underline{\dot{\epsilon}}^p}$ telle que

$$\underline{\underline{\dot{\epsilon}}} = \underline{\underline{\dot{\epsilon}}^e} + \underline{\underline{\dot{\epsilon}}^p} \quad (9.22)$$

Concernant le taux de déformation plastique, celui-ci est obtenu par la loi d'écoulement qui vérifie la règle de normalité :

$$\underline{\underline{\dot{\epsilon}}^p} = H \frac{\partial \Phi}{\partial \underline{\underline{\Sigma}}} \quad (9.23)$$

avec H , le multiplicateur plastique. Dès lors, il s'agit d'expliciter le terme $\partial \Phi / \partial \underline{\underline{\Sigma}}$ pour le critère de Gurson. Etant donné que $\frac{\Sigma_m}{\Sigma_{ij}} = \frac{\delta_{ij}}{3}$ et $\frac{\partial \Sigma_{eq}^2}{\partial \Sigma_{ij}} = \frac{\partial}{\partial \Sigma_{ij}} \left(\frac{3}{2} \Sigma_{d_{kl}} \Sigma_{d_{kl}} \right) = 3 \Sigma_{d_{kl}} \frac{\partial \Sigma_{d_{kl}}}{\partial \Sigma_{ij}} = 3 \Sigma_{d_{kl}} (\delta_{ik} \delta_{jl} - \frac{1}{3} \delta_{ij} \delta_{kl}) = 3 \Sigma_{d_{ij}}$, il vient

$$\frac{\partial \Phi}{\partial \Sigma_{ij}} = 3 \frac{\Sigma_{d_{ij}}}{\sigma_0^2} + \delta_{ij} \frac{f}{\sigma_0} \sinh \left(\frac{3}{2} \frac{\Sigma_m}{\sigma_0} \right) \quad (9.24)$$

On en déduit, ainsi, les parties moyenne et déviatorique :

$$\begin{cases} \dot{\epsilon}_m^p &= \frac{1}{3} tr \underline{\underline{\dot{\epsilon}}^p} = \frac{Hf}{\sigma_0} \sinh \left(\frac{3}{2} \frac{\Sigma_m}{\sigma_0} \right) \\ \underline{\underline{\dot{\epsilon}}_d^p} &= \underline{\underline{\dot{\epsilon}}^p} - \dot{\epsilon}_m^p \underline{\underline{I}} = \frac{3H}{\sigma_0^2} \underline{\underline{\Sigma}}_d \end{cases} \quad (9.25)$$

Il est possible de déterminer le multiplicateur plastique H en fonction du taux de déformation plastique équivalent tel que

$$\dot{\epsilon}_{eq}^p = \left(\frac{2}{3} \underline{\underline{\dot{\epsilon}}} : \underline{\underline{\dot{\epsilon}}} \right)^{1/2} = \left(\frac{2}{3} \cdot 9 \frac{H^2}{\sigma_0^4} \underline{\underline{\Sigma}}_d : \underline{\underline{\Sigma}}_d \right)^{1/2} = \frac{2H \Sigma_{eq}}{\sigma_0^2} \quad (9.26)$$

$$\implies H = \frac{\sigma_0^2}{2 \Sigma_{eq}} \dot{\epsilon}_{eq}^p \quad (9.27)$$

On peut alors injecter l'expression de H dans l'équation 9.25 et ainsi obtenir une forme équivalente de la loi d'écoulement :

$$\begin{cases} \dot{\epsilon}_m^p &= \frac{f}{2} \frac{\sigma_0}{\Sigma_{eq}} \sinh \left(\frac{3}{2} \frac{\Sigma_m}{\sigma_0} \right) \dot{\epsilon}_{eq}^p \\ \underline{\underline{\dot{\epsilon}}_d^p} &= \frac{3}{2} \frac{\dot{\epsilon}_{eq}^p}{\Sigma_{eq}} \underline{\underline{\Sigma}}_d \end{cases} \quad (9.28)$$

9.3.3 Extension du modèle de Gurson

9.3.3.1 Cas d'une matrice écrouissable

Afin de prendre en compte l'écrouissage de la matrice, il suffit de remplacer la limite d'élasticité du matériau parfaitement plastique σ_0 , par la contrainte d'écoulement de la matrice $\sigma_y = f(p)$. L'écrouissage est supposé isotrope. Le critère macroscopique défini par l'équation 9.9 devient

$$\frac{\Sigma_{eq}^2}{\sigma_y^2} + 2f \cosh\left(\frac{3}{2} \frac{\Sigma_m}{\sigma_y}\right) - 1 - f^2 = 0 \quad (9.29)$$

Il faut dès lors, définir la variable d'écrouissage p . Pour ce faire, Gurson (1977) identifie la dissipation plastique macroscopique du matériau réel $\underline{\Sigma} : \underline{\dot{\epsilon}}^p$ à la dissipation microscopique du matériau fictif $\sigma_y \dot{p}$. La loi d'évolution de p est donnée par

$$(1 - f) \sigma_y \dot{p} = \underline{\Sigma} : \underline{\dot{\epsilon}}^p \quad (9.30)$$

9.3.3.2 Croissance des cavités

La porosité intervenant dans le critère macroscopique, il est nécessaire de lui définir une loi d'évolution. En supposant une matrice incompressible, Ω son volume et w le volume de cavités, il vient $\dot{\Omega} = \dot{w}$ et d'ailleurs, $f = w/\Omega$. Par conséquent,

$$\dot{f}_g = \frac{d}{dt} \left(\frac{w}{\Omega} \right) = \frac{\dot{w}}{\Omega} - \frac{w}{\Omega^2} \dot{\Omega} = \left(1 - \frac{w}{\Omega} \right) \frac{\dot{\Omega}}{\Omega} \quad (9.31)$$

Or, $\dot{\Omega}/\Omega = tr \underline{\dot{\epsilon}}^p$, l'équation 9.31 devient

$$\dot{f}_g = (1 - f) tr \underline{\dot{\epsilon}}^p \quad (9.32)$$

9.3.3.3 Germination des cavités

En cours de déformation, il est possible que des cavités apparaissent. Ainsi, le taux de cavitation se décompose en un terme lié à la croissance et un second lié à la germination de nouvelles cavités. La loi d'évolution de la porosité s'écrit

$$\dot{f}_t = \dot{f}_g + \dot{f}_n \text{ avec } \dot{f}_g = (1 - f) tr \underline{\dot{\epsilon}}^p \quad (9.33)$$

\dot{f}_g étant connu (équation 9.32), il faut définir le taux de germination. Celui-ci peut être régi par la déformation plastique cumulée et/ou par la contrainte (Zhang et Hauge 1999) tel que

$$\dot{f}_n = A_n \dot{p} + B_n \dot{\sigma}_{eff} \quad (9.34)$$

où $\dot{\sigma}_{eff} = \alpha \dot{\sigma}_{eq} + \beta \dot{\sigma}_{kk}$

9.3.3.4 Interactions entre cavités et coalescence

Le modèle de Gurson (1977), basé sur l'étude d'une sphère creuse ne comportant qu'un seul vide, ne prend, a fortiori, pas en compte les interactions entre les cavités. Ainsi, Tvergaard (1981; 1982) a proposé l'ajout de trois paramètres q_1 , q_2 et q_3 au critère de Gurson (1977), $\Phi(\underline{\Sigma}, \sigma_y, f)$ défini équation 9.29. Dès lors, le critère prend une nouvelle forme :

$$\Phi(\underline{\Sigma}, \sigma_y, f) = \frac{\Sigma_{eq}^2}{\sigma_y^2} + 2q_1 f \cosh\left(q_2 \frac{3 \Sigma_m}{2 \sigma_y}\right) - 1 - q_3 f^2 = 0 \quad (9.35)$$

L'identification de ces paramètres s'effectue par l'intermédiaire de calculs sur des cellules élémentaires, c'est-à-dire des cellules contenant une inclusion unique, choisies telle que leur volume représente la fraction volumique de cavités dans la matrice. Tvergaard (1981; 1982) montre qu'une amélioration considérable des résultats est obtenue lorsque $q_1 = 1.5$, $q_2 = 1$ et $q_3 = q_1^2$. Par conséquent, dans la suite de l'étude, nous considérons que $q_3 = q_1^2$. Par la suite, Becker *et al.* (1988), Koplik et Needleman (1988), Perrin et Leblond (1990), entre autres, ont confirmé les valeurs de $q_1 = 1.5$ et $q_2 = 1$ pour les matériaux métalliques.

Dès lors, il apparaît que, dans le cas $\underline{\Sigma} = \underline{0}$, c'est-à-dire au moment de la rupture, l'équation 9.35 se résume à $q_1 f = 1$, soit $q_1 = 1/f$ avec f la porosité à rupture. Quant au paramètre q_2 , il intervient, dans le cosinus hyperbolique, sur le taux de triaxialité des contraintes et influe sur l'évolution de l'endommagement.

Au cours de la coalescence des vides, la résistance des matériaux décroît rapidement sans que, pour autant, cela ne corresponde nécessairement à une forte augmentation du taux de porosité. Tvergaard et Needleman (1984) proposent alors une manière simple de prendre en compte cette accélération de l'endommagement. En effet, ils proposent de remplacer la porosité véritable du matériau f , par une porosité fictive, notée f_* . f_* est supérieure à f et est définie comme

$$f_* = \begin{cases} f_t & \text{si } f_t < f_c \\ f_c + \delta(f_t - f_c) & \text{si } f_t \geq f_c \end{cases} \quad (9.36)$$

avec f_c la porosité critique de début de coalescence et $\delta > 1$, un coefficient phénoménologique à ajuster (figure 9.19).

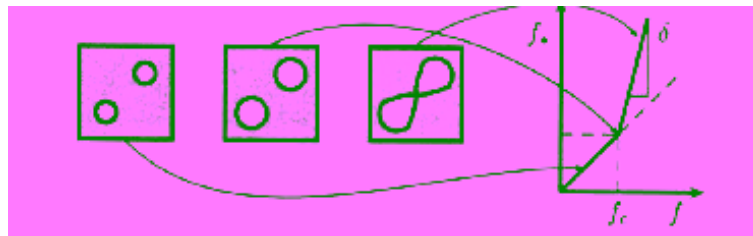


FIGURE 9.19 – Fonction f_* (Tanguy 2001)

Faisant suite à ces modifications, le critère de plasticité, défini par l'équation 9.35, prend alors la forme suivante :

$$\Phi(\underline{\Sigma}, \sigma_y, f_*) = \frac{\Sigma_{eq}^2}{\sigma_y^2} + 2q_1 f_* \cosh\left(q_2 \frac{3 \Sigma_m}{2 \sigma_y}\right) - 1 - q_1^2 f_*^2 = 0 \quad (9.37)$$

Remarque 9.4 *Les simulations numériques présentées ultérieurement ne supposent pas la coalescence des cavités.*

9.3.3.5 Notion de contrainte scalaire effective

A travers l'implantation dans le code éléments finis ZéBuLoN (code utilisé dans cette étude), du modèle de [Gurson \(1977\)](#), modifié par [Tvergaard \(1981; 1982\)](#) couramment appelé modèle de Gurson-Tvergaard-Needleman ou modèle GTN, [Besson et al. \(2001\)](#) proposent d'intégrer la contrainte scalaire effective σ_* qui est une fonction, à la fois de la contrainte macroscopique $\underline{\underline{\Sigma}}$, et de la porosité f_* . Le critère de Gurson (équation 9.37) devient :

$$\Phi(\underline{\underline{\Sigma}}, f_*, \sigma_*) = \frac{\underline{\underline{\Sigma}}_{eq}^2}{\sigma_*^2} + 2q_1 f_* \cosh\left(\frac{q_2}{2} \frac{\underline{\underline{\Sigma}}_{kk}}{\sigma_*}\right) - 1 - q_1^2 f_*^2 \stackrel{def. \sigma_*}{=} 0 \quad (9.38)$$

Dès lors, le potentiel d'écoulement plastique, ϕ , se définit comme

$$\phi = \sigma_* - \sigma_y \quad (9.39)$$

Afin d'obtenir le taux de déformation plastique, la règle de normalité est appliquée.

$$\underline{\underline{\dot{\epsilon}}}^p = (1 - f) \dot{p} \frac{\partial \phi}{\partial \underline{\underline{\sigma}}} = (1 - f) \dot{p} \frac{\partial \sigma_*}{\partial \underline{\underline{\sigma}}} \quad (9.40)$$

9.4 RÉSULTATS DE LA MODÉLISATION

9.4.1 Expression de q_2

[Lafarge \(2004\)](#) a proposé de considérer le paramètre q_2 comme une fonction de la déformation plastique principale maximale p_1 . Ainsi, q_2 se définit comme

$$q_2 = \begin{cases} 1.55 & \text{si } p_1 < 0.2 \\ (1 + e^{-3p_1}) & \text{si } p_1 \geq 0.2 \end{cases} \quad (9.41)$$

[Lafarge \(2004\)](#) explique que ce choix d'exprimer q_2 permet ainsi de ralentir l'endommagement volumique constaté expérimentalement, d'indirectement tenir compte de l'ovalisation des cavités dans la direction de la contrainte maximale, leur conférant une certaine anisotropie et de minimiser la chute de charge engendrée par la valeur importante initiale de q_2 .

Les résultats obtenus par [Lafarge \(2004\)](#) étant plus qu'encourageants, nous choisissons également de décrire q_2 comme une fonction de p_1 . L'idée générale reste la même mais nous imposons au paramètre une borne supérieure initiale, notée M et une borne inférieure finale m ; ainsi pour une valeur $p_1 = p_t$ à déterminer, la valeur de q_2 chutera d'une valeur M à une valeur m . L'expression de q_2 devient :

$$q_2 = (M - m) \frac{(\tanh(v(p_t - p_1)) + 1)}{2} + m \quad (9.42)$$

avec M et m les valeurs initiales et finales de q_2 , p_t la valeur de la déformation plastique principale maximale de transition et v la vitesse de transition. Une variation théorique de q_2 en fonction de p_1 est présentée sur la figure 9.20.

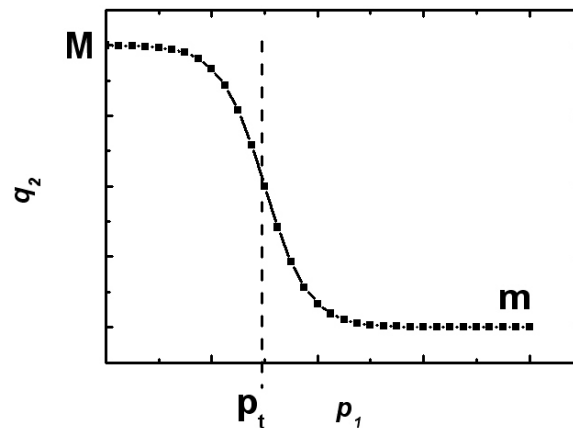


FIGURE 9.20 – Evolution de q_2 en fonction de p_1 .

9.4.2 Evolution de la porosité en cours de déformation

La fonction décrivant le paramètre q_2 implique l'identification de quatre nouveaux coefficients. La méthode utilisée afin de déterminer leurs valeurs consiste à simuler les essais interrompus qui ont permis l'observation et la quantification de la fraction volumique de vide. Pour ce faire, les paramètres déterminés au cours du chapitre 8 sont utilisés et couplés au modèle GTN précédemment exposé. Faisant suite au calcul numérique, il est possible de déterminer la porosité au niveau de la section minimale. Cette porosité peut alors être comparée à la fraction volumique de vides calculée par analyse d'images. Les résultats sont présentés sur la figure 9.21.

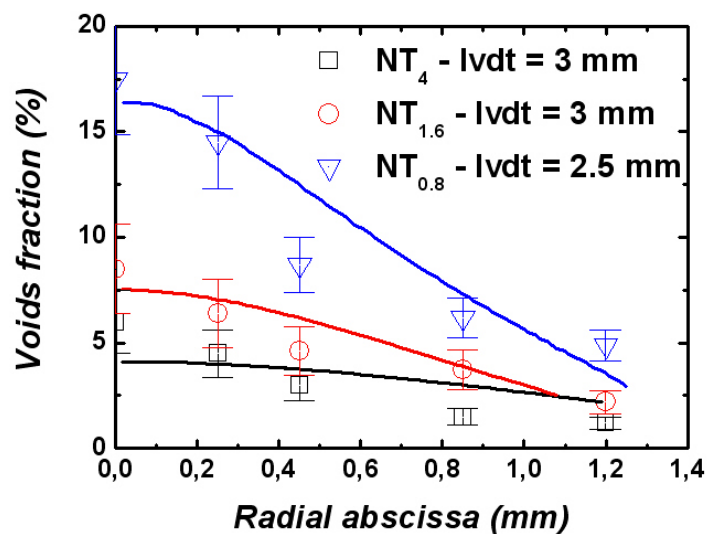


FIGURE 9.21 – Evolution de la porosité en fonction de la distance par rapport au centre de l'échantillon au niveau de la section minimale ; comparaison des résultats expérimentaux (symbole) et numériques (trait plein).

Les valeurs des paramètres liés à l'évolution de l'endommagement du matériau sont résumés dans le tableau 9.3. Il n'a pas été possible de déterminer de manière précise la valeur de la porosité critique. Dès lors, on considère une valeur de q_1 égale à 2 soit $f_c = 50\%$, qui est une valeur plausible et supérieure à la borne inférieure déterminée expérimentalement. Les observations au MEB d'une coupe d'échantillon obtenue par cryofractographie avait permis de mettre en évidence une porosité initiale de l'ordre de 1%, valeur utilisée comme porosité initiale f_0 dans le modèle GTN. La valeur de p_t , à laquelle s'opère le ralentissement de l'endommagement, correspond à la valeur de la déformation plastique principale maximale en début de rhéodurcissement.

TABLEAU 9.3 – Coefficients des paramètres d'endommagement pour le PA11 à 0°C.

q_1	q_2			
	M	m	p_t	v
2	0.9	0.35	0.6	6

Comme il est possible de le constater, une bonne concordance expérimentale-numérique est obtenue concernant la donnée locale qu'est la fraction volumique de vides. Il s'avère qu'également numériquement, le taux de porosité est d'autant plus grand que la triaxialité considérée est importante et que la porosité maximale est localisée en cœur d'échantillon. L'influence du taux de triaxialité des contraintes étant une nouvelle fois mise en lumière, on peut s'interroger sur l'évolution de la porosité en cœur d'échantillon en fonction de l'évolution de la triaxialité déterminée au même endroit. Il s'agit de considérer un point de Gauss de l'élément situé en cœur d'échantillon et de tracer en fonction du temps l'évolution de la porosité et de la triaxialité. Les deux courbes obtenues sont présentées sur la figure 9.22 pour les quatre géométries considérées.

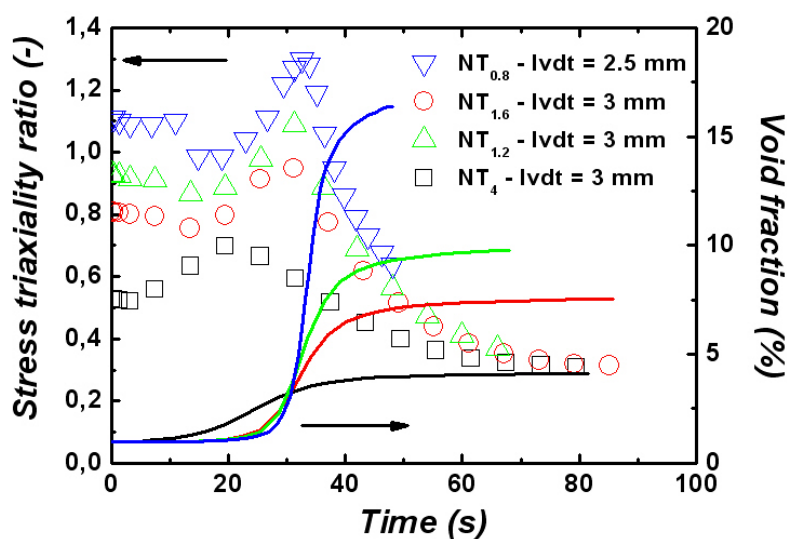


FIGURE 9.22 – Evolution du taux de triaxialité des contraintes et de la porosité en fonction du temps en cœur d'échantillon.

Pour les quatre géométries considérées, l'évolution du taux de triaxialité des contraintes en cœur est relativement la même. En effet, il apparaît que la triaxialité augmente, dans un premier temps, jusqu'à l'atteinte d'une valeur maximale ; cette valeur maximale est d'autant plus grande et "tardive" que le taux de triaxialité initial est important. Ensuite, la triaxialité chute en deçà de sa valeur initiale. La vitesse de décroissance de la triaxialité est d'autant plus grande que le taux de triaxialité initial est grand. L'évolution de la porosité en fonction du temps est également assez similaire pour les quatre géométries. Initialement égale à 1%, la fraction volumique de vides augmente brusquement jusqu'à l'atteinte de sa valeur finale ; la triaxialité considérée augmentant accroît la vitesse d'atteinte de la porosité finale. La juxtaposition des courbes d'évolution du taux de triaxialité des contraintes et de la porosité en fonction du temps permet de mettre en évidence le fait que la porosité commence à s'accroître aussitôt que la triaxialité augmente. De plus, il semble que la porosité se stabilise à sa valeur finale lorsque le taux de triaxialité des contraintes chute sous une valeur de l'ordre de $\tau_\sigma \approx 0.6$.

Remarque 9.5 *Lors du chapitre 7, nous avons utilisé la formule de Bridgman (1944) afin de déterminer le taux de triaxialité initial en cœur des éprouvettes NT. L'emploi de la formule de Bridgman avait été considéré comme une première approche étant donné que cette formulation contient plusieurs hypothèses notamment un comportement parfaitement plastique. La détermination numérique du taux de triaxialité des contraintes permet de vérifier que la formule de Bridgman peut effectivement être utilisée en première approche.*

9.4.3 Evolution de la triaxialité sur NT_4

Le taux de triaxialité des contraintes jouant un rôle prépondérant vis à vis de l'endommagement par croissance de cavités du PA11, nous nous intéressons à son évolution en cours de déformation. L'intérêt se porte sur la triaxialité au niveau de la section minimale, lieu où la porosité est maximale et nous nous plaçons dans le cas d'une éprouvette de type NT_4 soumise à une traction uniaxiale avec une vitesse de déplacement de 0.05 mm.s^{-1} , à 0°C . La figure 9.23a présente l'évolution de la contrainte en fonction de la réduction diamétrale de la section minimale pour un essai mené jusqu'à rupture. La courbe équivalente obtenue par simulation numérique avec le modèle de Gurson semble bien retranscrire les tendances de la courbe expérimentale. Des temps "critiques" segmentent la courbe :

- $t = 0 \text{ s}$ et $t = 250 \text{ s}$ représentent les temps initial et final (temps de rupture),
- $t = 25 \text{ s}$ est le temps auquel la contrainte est maximale au niveau du crochet de traction,
- $t = 50 \text{ s}$ correspond au temps auquel le rhéodurcissement débute,
- $t = 150 \text{ s}$ consiste en un temps intermédiaire à mi-rhéodurcissement.

A ces temps caractéristiques est déterminée la distribution du taux de triaxialité des contraintes sur la section minimale et représentée sur la figure 9.23b. Lors de la première phase de la courbe 9.23a qui correspond à l'augmentation de la contrainte jusqu'au ré-entaillage de l'échantillon, le taux de triaxialité augmente en cœur et atteint sa valeur maximale.

Pendant la chute de contrainte précédant le rhéodurcissement, la triaxialité décroît et atteint une valeur globale inférieure à la triaxialité initiale. Enfin, au cours du rhéodurcissement, on observe la propagation de la striction annihilant l'effet d'entaille; cela est confirmé par la valeur du taux de triaxialité qui tend vers 0.33 soit le taux de triaxialité d'une éprouvette lisse.

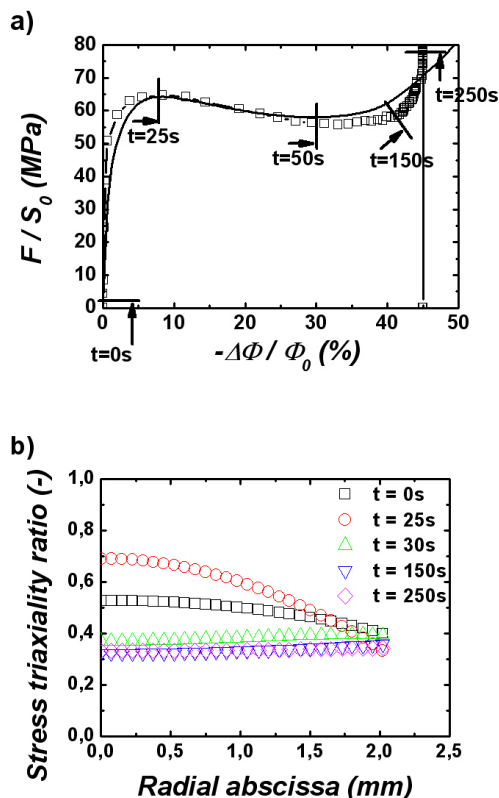


FIGURE 9.23 – a) Courbes contrainte-réduction diamétrale d'un essai de traction uniaxiale sur NT_4 mené à rupture; b) évolution du taux de triaxialité des contraintes au niveau de la demi-section minimale à différents instants critiques.

9.4.4 Evolution de la contrainte dans les éprouvettes NT

Plus particulièrement, il s'agit de s'intéresser à l'évolution de la contrainte d'ouverture σ_{22} soit la contrainte dans la direction de la traction. L'évolution de celle-ci, au niveau de la section minimale, est présentée sur la figure 9.24. Au cours de la déformation, la contrainte maximale se déplace entre le cœur de l'échantillon et la surface en passant par des phases où elle est uniforme. En effet, la contrainte est d'abord maximale en cœur jusqu'au ré-entaillage de l'éprouvette correspondant à l'atteinte d'un premier maximum de la contrainte nominale F/S_0 . Pendant la diminution de la contrainte nominale, la contrainte σ_{22} devient uniforme. Dès lors, au début du rhéodurcissement ($t = 34$ s), la contrainte est la même sur toute la section minimale. Enfin en cours de rhéodurcissement, la contrainte en surface augmente beaucoup plus que celle en cœur engendrant le basculement de $(\sigma_{22})_{max}$ du cœur vers la surface.

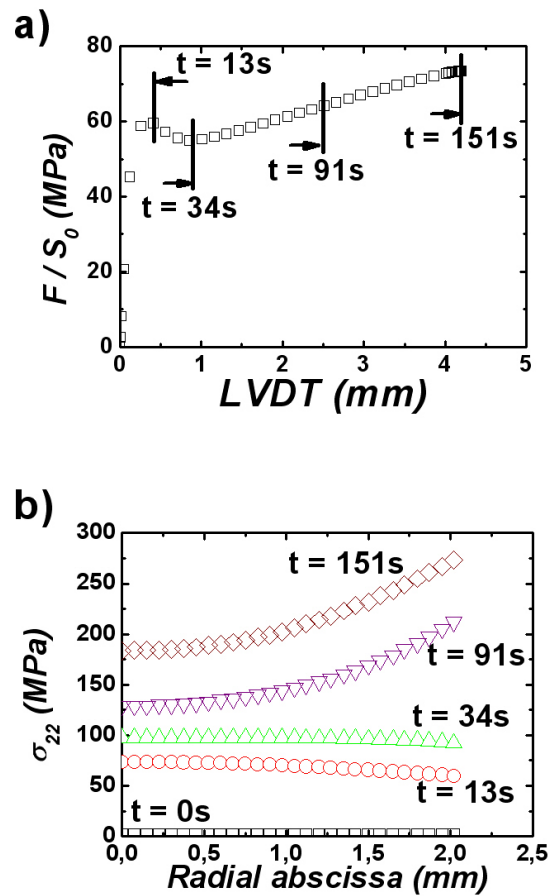


FIGURE 9.24 – a) Courbes contrainte-réduction diamétrale d'un essai de traction uniaxiale sur NT_4 mené à rupture; b) évolution de σ_{22} au niveau de la demi-section minimale à différents instants critiques.

La comparaison de l'évolution de la contrainte σ_{22} au niveau de la section minimale selon les géométries considérées s'avère intéressante. Il apparaît que jusqu'au début du rhéodurcissement, les niveaux de contraintes sont équivalents et atteignent des valeurs de l'ordre de 100 MPa. Au cours du rhéodurcissement engendré par l'étirement des fibrilles, il a été montré que la contrainte devenait maximale aux bords de l'éprouvette. Le taux de triaxialité des contraintes initial augmentant en cœur, on s'aperçoit que la contrainte aux bords tend à augmenter et celle en cœur à diminuer, accroissant ainsi la non-uniformité du champ de contraintes. L'augmentation de la contrainte aux bords de l'éprouvette en fonction de la géométrie se révèle faible étant donné que σ_{22} avoisine 300 MPa quelle que soit la géométrie. Cependant, la diminution de contrainte constatée en cœur est plus imminente. En effet, la contrainte en cœur de l'éprouvette NT_{08} apparaît presque deux fois moins importante (≈ 100 MPa) que celle obtenue en cœur pour l'éprouvette NT_4 (≈ 200 MPa).

Au cours du chapitre 7 dévoilant les essais mécaniques sur les éprouvettes entaillées, nous avons introduit la mécanique des éprouvettes entaillées selon Bridgman (1944) qui, sous certaines hypothèses, définit le champ de contraintes dans la section minimale comme présenté équation

7.4 et dont la composante qui nous intéresse (σ_{zz}) est rappelée ici :

$$\sigma_{zz} = \sigma_{eq} \left[1 + \log \left(1 + \frac{(\Phi_0/2)^2 - r^2}{\Phi_0 r} \right) \right]$$

avec r la distance par rapport au centre de l'éprouvette et Φ le diamètre de la section minimale initiale.

Dès lors, nous pouvons comparer la contrainte σ_{22} obtenue par simulation numérique à la contrainte déterminée par [Bridgman \(1944\)](#) dans les cas des éprouvettes NT_4 et NT_{08} et dans un cas intermédiaire, la géométrie $NT_{1.6}$. Il en résulte qu'en dépit des hypothèses fortes prises par [Bridgman \(1944\)](#), la contrainte σ_{zz} apparaît être une bonne approximation de la contrainte obtenue par la simulation numérique comme il est possible de le constater sur la figure 9.25 qui présente les évolutions des contraintes σ_{22} et σ_{zz} à des temps caractéristiques : au ré-entaillage (\circ), au début du rhéodurcissement (\triangle) et avant rupture (∇).

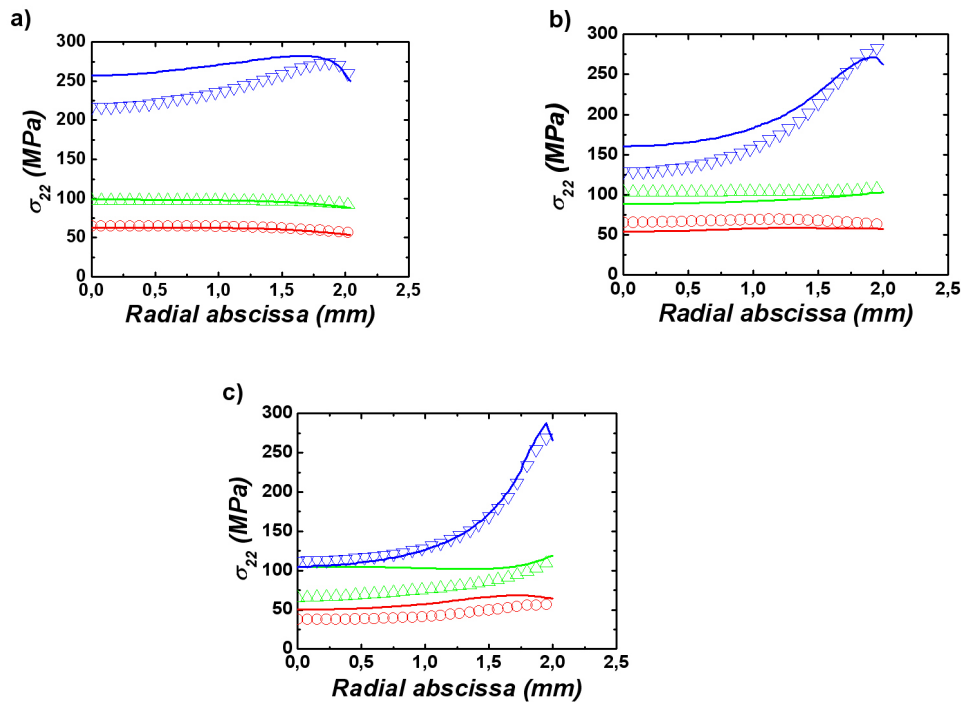


FIGURE 9.25 – Comparaison de l'évolution de σ_{22} (symboles) et de la contrainte σ_{zz} (trait plein) déterminée selon [Bridgman \(1944\)](#) : a) NT_4 ; b) $NT_{1.6}$; c) $NT_{0.8}$.

9.4.5 Calculs cellulaires

Dans le but de calibrer les paramètres q_1 et q_2 introduits par [Tvergaard \(1982\)](#), [Tvergaard et Needleman \(1984\)](#), des auteurs tels que [Faleskog et al. \(1998\)](#), [Gao et al. \(1998\)](#), [Kim et al. \(2004\)](#) ont entrepris des calculs cellulaires afin de comparer les résultats obtenus avec le modèle GTN. Un calcul cellulaire consiste en une cellule contenant une cavité, dont la taille est déterminée afin de respecter le taux initial de porosités, sur laquelle est appliquée le modèle de comportement de la matrice en terme d'élasticité et d'écrouissage. Ce calcul cellulaire est ensuite comparé à un calcul

sur un élément unique auquel on applique le modèle GTN en introduisant la porosité initiale. Pour dire vrai, ici, il ne s'agit pas d'effectuer un calcul cellulaire mais d'inclure une cellule au maillage des éprouvettes entaillées comme présenté figure 9.26. Ainsi, on applique le modèle GTN sur l'ensemble de l'éprouvette avec une porosité initiale de 1% et pour les éléments représentant la cellule uniquement les caractéristiques d'élasticité et d'écoulement.

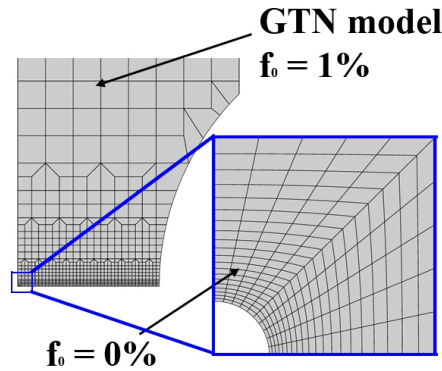


FIGURE 9.26 – Modification du maillage afin d'inclure une cellule en cœur.

La modification du maillage, afin de prendre en compte une cellule, ne modifie pas le résultat global et concorde parfaitement avec le modèle GTN seul. Dès lors, on s'intéresse à l'évolution de la porosité de la cellule, par l'intermédiaire de la détermination de la variation de volume que l'on compare à la porosité obtenue par le modèle GTN au niveau du point de Gauss d'un élément voisin. Le calcul est effectué pour trois géométries (NT_4 , $NT_{1.2}$ et $NT_{0.8}$). L'évolution de la porosité en fonction du temps est tracée sur la figure 9.27. Il apparaît que le modèle GTN, grâce aux paramètres q_1 et q_2 , semble rendre compte de manière correcte de l'évolution de la porosité, cela quelle que soit la triaxialité considérée ici.

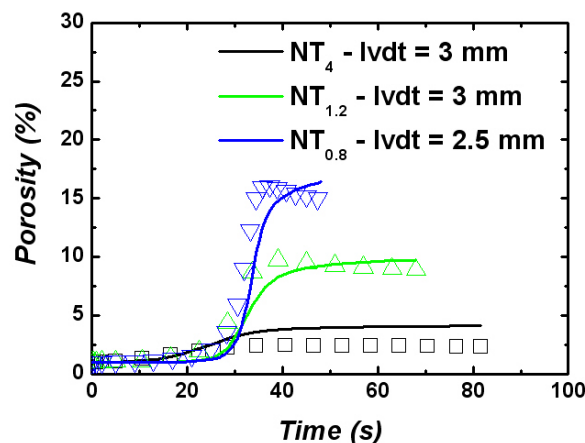


FIGURE 9.27 – Comparaison de l'évolution de la porosité en fonction du temps entre la cellule (symbole) et le modèle de Gurson (trait plein) pour trois géométries.

La figure 9.28 met l'accent sur l'évolution de la forme de la cavité en fonction du temps. Afin d'avoir des points de repère, est juxtaposée éga-

lement la courbe d'évolution de la contrainte nominale. Les observations MEB des surfaces obtenues par microtomie, faisant suite à des essais interrompus, avait révélé, pour de faibles taux de triaxialité des contraintes, que la forme des cavités restaient plutôt sphériques. Ce résultat se retrouve numériquement puisqu'on constate une très légère ovalisation dans la direction de la plus grande contrainte principale, ovalisation si faible que l'on peut considérer la cavité comme étant toujours sphérique pour une géométrie de type NT_4 .

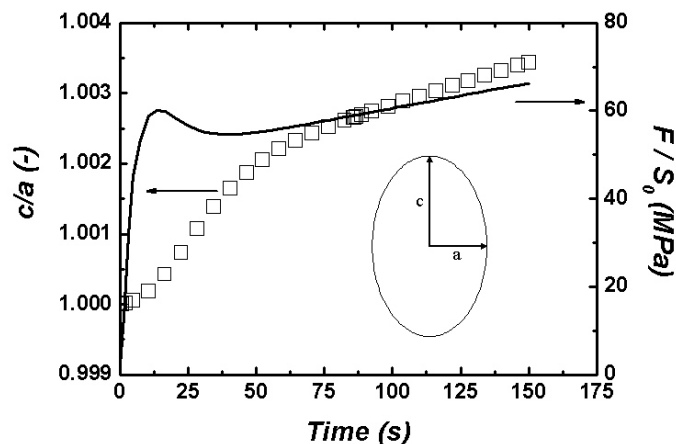


FIGURE 9.28 – Evolution de la forme de la cavité placée en cœur du maillage de l'éprouvette de NT_4 .

Des comparaisons analogues à celles de [Faleskog et al. \(1998\)](#), [Gao et al. \(1998\)](#) ont été effectuées par [Lafarge \(2004\)](#) dans le cas du PVDF qui montraient que le modèle de Gurson reflétait assez mal l'évolution de l'endommagement aux basses triaxialités (de l'ordre de 0.33 soit celles rencontrées pour les éprouvettes lisses) et aux hautes triaxialités (de l'ordre de 2). Aux faibles triaxialités, la différence obtenue entre les deux modèles est expliquée par l'hypothèse d'une croissance de cavité sphérique inhérente au modèle de Gurson, lorsque le calcul cellulaire démontre l'ovalisation de la cavité. Aux hautes triaxialités, bien qu'étant dans un domaine de validité du modèle de Gurson où la cavité croît sphériquement, l'erreur obtenue s'explique par le fait que les paramètres q_1 et q_2 dépendent de la triaxialité comme démontré par [Kim et al. \(2004\)](#) et présenté figure 9.29.

9.5 CONCLUSIONS

L'approche expérimentale développée au cours de ce chapitre a été l'occasion de mettre en évidence d'une part l'endommagement par croissance de cavités initiales du polyamide 11, mais également l'effet du taux de triaxialité des contraintes sur l'endommagement. Les conclusions portées sur le PA11, concernant l'influence de la triaxialité, s'avèrent en adéquation avec celles portées par [Lafarge \(2004\)](#), [Challier et al. \(2006\)](#) dans le cas du PVDF mais également, de manière plus générale [Castagnet et al. \(2000\)](#) pour les semi-cristallins ou [Bonora et al. \(2005\)](#) dans le cas des aciers.

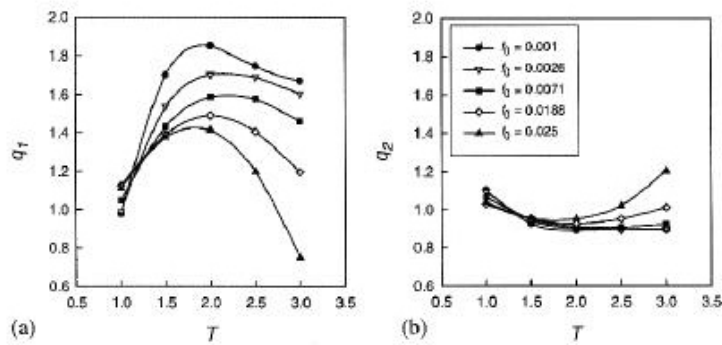


FIGURE 9.29 – Influence du taux de triaxialité des contraintes sur les valeurs des paramètres q_1 et q_2 (Kim et al. 2004).

D'un point de vue numérique, l'utilisation du modèle de Gurson modifié par Tvergaard et Needleman (Tvergaard 1982, Tvergaard et Needleman 1984) reflète de manière très correcte l'évolution de l'endommagement du matériau. En effet, les quantifications du taux de porosité en cours de déformation pour les différentes géométries étudiées corroborent les prédictions résultant de la simulation numérique. Dès lors, il semblerait que le modèle GTN, initialement développé pour les matériaux métalliques, peut être également utilisé pour un polymère semi-cristallin comme le PA11. Le modèle de Gurson supposant la croissance sphérique d'une cavité permet cependant, par l'intermédiaire de l'intégration du paramètre q_2 , de prendre en compte l'ovalisation des cavités (par diminution de la croissance), ovalisation observée expérimentalement.

ÉTUDE DE L'ENDOMMAGEMENT DES MATÉRIAUX VIEILLIS

10

SOMMAIRE

10.1 INTRODUCTION	213
10.2 OBSERVATIONS MICROSCOPIQUES	213
10.2.1 Faciès de rupture	213
10.2.2 Essais interrompus à 0°C et 3 mm.s ¹	214
10.2.3 Cavitation des nodules	219
10.3 ÉTUDE DE L'ENDOMMAGEMENT DU "AGED P20 EPR" PAR RÉTRO-DIFFUSION COHÉRENTE	221
10.3.1 Mode opératoire	221
10.3.2 Mesure de densité par pycnométrie	221
10.3.3 Résultats	222
10.4 DEUX MÉCANISMES D'ENDOMMAGEMENT À 0°C	224
10.5 QUELQUES RÉSULTATS NUMÉRIQUES.	225
10.5.1 Aged P40	225
10.5.2 Aged P20 EPR	227
10.5.3 Conclusions	229
10.6 CONCLUSIONS	229

CE chapitre concerne la mise en évidence des mécanismes de déformation et d'endommagement de trois grades plastifiés et vieillis de polyamide 11 dont deux contiennent une seconde phase d'élastomère par l'intermédiaire d'essais mécaniques et d'observations microscopiques. Concernant les deux matériaux renforcés, une dépendance temps-température semble agir sur les mécanismes impliqués qui sont, soit une germination de microcavités autour des particules de caoutchouc entraînant l'apparition d'un plateau sur la courbe contrainte-déformation, soit une coalescence des particules cavitées de caoutchouc engendrant l'amorçage et la propagation d'une fissure macroscopique.

10.1 INTRODUCTION

A partir des essais présentés au cours du chapitre 7, auxquels s'ajoutent des essais similaires mais interrompus en cours de déformation, ce chapitre a pour vocation d'analyser l'endommagement des matériaux vieilliss. Pour ce faire, des observations microscopiques au microscope électronique à balayage ont été effectuées afin d'observer et de comprendre les mécanismes d'endommagement. La technique de la rétro-diffusion cohérente (présentée dans le chapitre 2) a également été mise à contribution afin de compléter les informations déjà fournies par le MEB.

10.2 OBSERVATIONS MICROSCOPIQUES

10.2.1 Faciès de rupture

10.2.1.1 A 0°C

Les observations des faciès de rupture, faisant suite à des essais sur éprouvettes entaillées de rayon 4 mm, sont présentées pour les trois matériaux figure 10.1. Il apparaît qu'il n'y a pas de site d'amorçage précis dans le cas du "aged P40" à la différence des deux autres matériaux. En effet, concernant les "aged P20 EPR" et "aged P20 NBR", les lieux d'amorçage sont principalement localisés au centre de la section minimale, endroit où le taux de triaxialité des contraintes est le plus élevé initialement. Une fissure macroscopique s'amorce au niveau d'un défaut intrinsèque tel une cavité, une particule ce qui explique que le site d'amorçage peut ne pas se localiser au centre de l'échantillon (figure 10.1b). Les figures 10.1b et c soulignent une propagation radiale des stries : du site d'amorçage aux bords du spécimen.

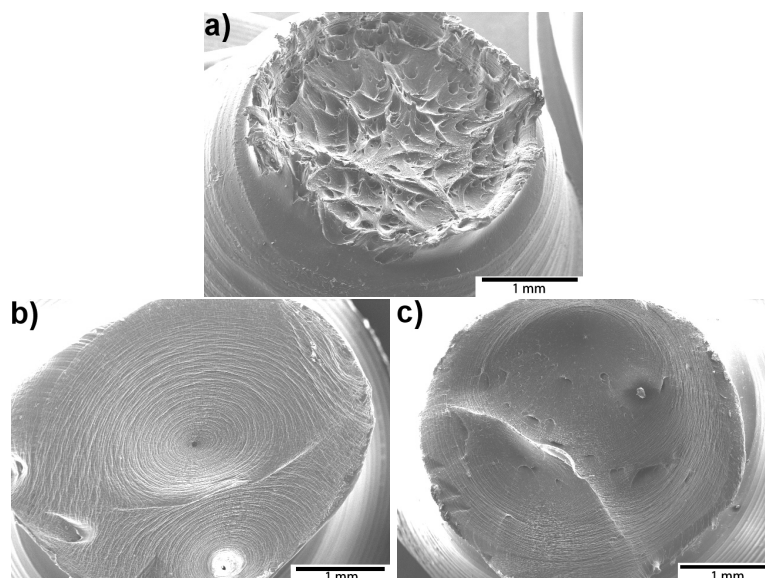


FIGURE 10.1 – Faciès de rupture à 0°C et 3 mm.s^{-1} ($\times 30$) : a) "aged P40" ; b) "aged P20 EPR" ; c) "aged P20 NBR".

10.2.1.2 A -60°C

Les faciès de rupture obtenus à -60°C ont également été observés au microscope électronique à balayage : à 3 mm.s^{-1} pour le "aged P40" et le "aged P20 EPR" et à 200 mm.s^{-1} pour le "aged P20 NBR". Le faciès du "aged P40" (figure 10.2a) semble indiquer qu'une rupture fragile, brutale s'est produite. En effet, on ne distingue pas d'étirement des fibrilles et plusieurs plans de rupture apparaissent. A même vitesse, le faciès du "aged P20 EPR" diffère dans le sens où, en cœur, se dresse une fibrille étirée, laissant supposer un amorçage de fissure ductile suivi d'une propagation fragile. En effet, sur les bords de l'échantillon, on retrouve un état de surface identique à celui observé pour le "aged P40". Enfin, le faciès de rupture du "aged P20 NBR" à 200 mm.s^{-1} est également équivalent à celui du "aged P40". La localisation de l'amorçage de la fissure est très nette et se situe aux environs du cœur de l'échantillon.

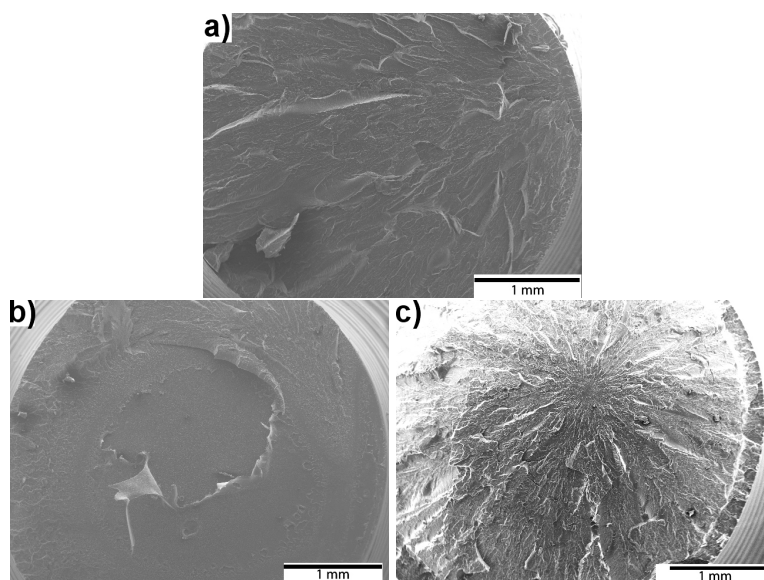


FIGURE 10.2 – Faciès de rupture à -60°C : a) "aged P40" à 3 mm.s^{-1} ; b) "aged P20 EPR" à 3 mm.s^{-1} ; c) "aged P20 NBR" à 200 mm.s^{-1} .

10.2.2 Essais interrompus à 0°C et 3 mm.s^{-1}

Des essais interrompus en traction uniaxiale, sur des éprouvettes entaillées de rayon d'entaille $R = 4\text{ mm}$, ont été effectués dans le but de s'intéresser, non seulement à l'évolution de l'endommagement en cours de déformation, mais également aux mécanismes d'endommagement. Afin d'atteindre cet objectif, les échantillons ont été découpés à l'aide d'un microtome jusqu'en cœur où l'endommagement devrait être le plus important. Les surfaces obtenues sont alors observées au microscope électronique à balayage.

10.2.2.1 "Aged P40"

Les courbes contraintes- $\Delta\Phi/\Phi_0$ du "aged P40" sont présentées sur la figure 10.3a. Même lorsque l'essai est mené jusqu'à rupture, aucune stabilisation de la contrainte nominale n'est observée, sous entendant qu'il

n'y a pas de propagation de la zone strictionnée. En effet, l'observation à l'œil nu d'un échantillon ne décèle qu'une faible zone strictionnée (figure 10.3b). L'observation microscopique d'un échantillon interrompu juste avant la rupture (figure 10.3c) met en évidence la présence d'une fissure macroscopique. La longueur de cette fissure atteint 2 mm quand le diamètre de la section, au même instant, est de l'ordre de 3 mm. La surface de l'échantillon a été observée par profilométrie afin de mettre en évidence la forme et la profondeur de la fissure (figure 10.3d).

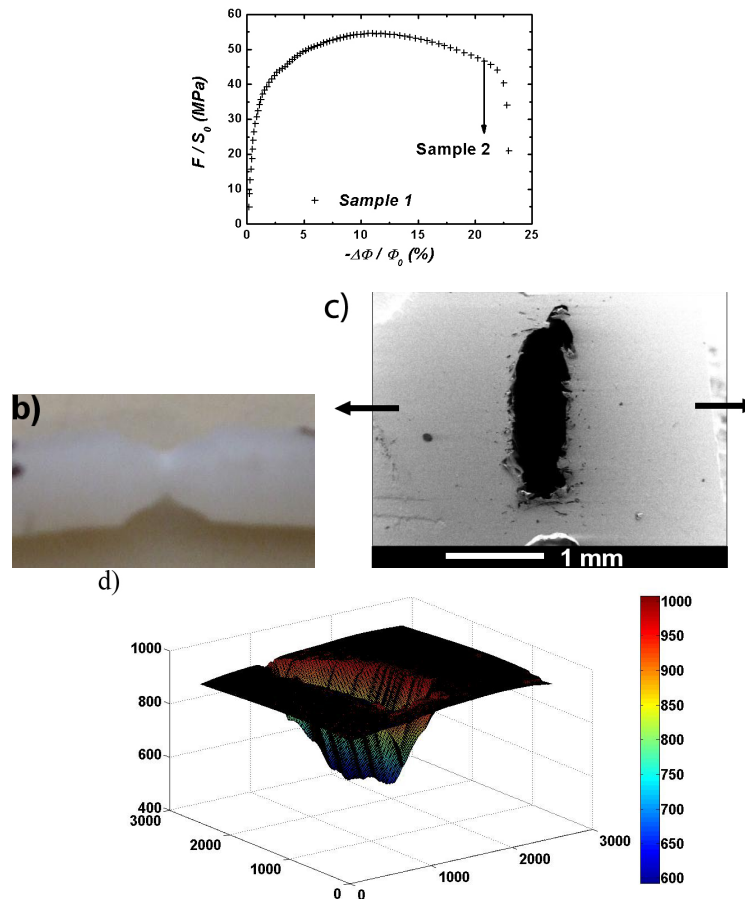


FIGURE 10.3 – "Aged P40" en traction uniaxiale à 0°C et $3\text{ mm}\cdot\text{s}^{-1}$: a) courbes contrainte-réduction diamétrale; b) striction et blanchiment de la section minimale; c) observation MEB d'une surface obtenue par microtomie d'un échantillon obtenu après un essai interrompu ($\times 30$); d) profilométrie de l'échantillon (surface de $2490 \times 2490\ \mu\text{m}^2$ avec un pas de $10\ \mu\text{m}$).

De nombreuses cavités orientées et étirées se trouvent au voisinage de la fissure et en particulier à ses deux extrémités. A chaque extrémité, l'orientation des cavités forment un angle de 90° avec la direction de traction. Leur taille moyenne (élongation) est de l'ordre de $25\ \mu\text{m}$ mais certaines atteignent $70\ \mu\text{m}$. Loin de la fissure, les cavités n'ont pas été déformées et correspondent en taille et en forme aux cavités initiales mises en valeur par l'intermédiaire de la technique de la cryofractographie (chapitre 5).

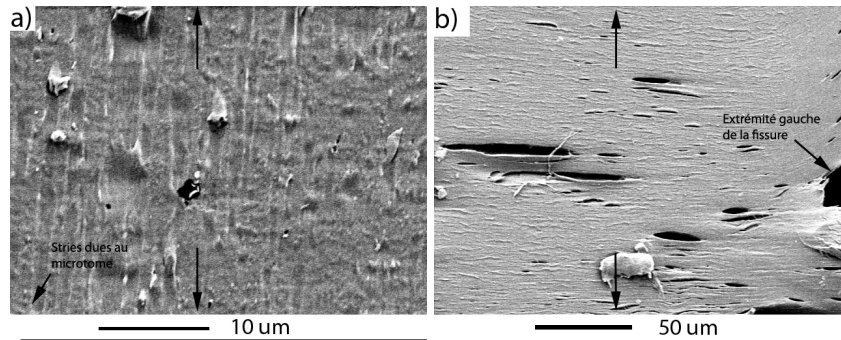


FIGURE 10.4 – "aged P40" en traction uniaxiale à 0°C et $3\text{ mm}\cdot\text{s}^{-1}$ (découpe microtome dans le sens de traction) : a) cavités sphériques loin de la fissure ($\times 3000$) ; b) élongation et orientation des cavités aux extrémités de la fissure ($\times 500$).

10.2.2.2 "Aged P20 EPR"

Deux essais interrompus ont été effectués pour ce matériau (figures 10.5 et 10.6a). Le premier fut arrêté au début de la phase où l'échantillon se déforme à contrainte constante ; la striction de la section minimale s'est opérée mais ne s'est pas encore propagée (figure 10.5a). Le second a été interrompu pendant le plateau, plateau pendant lequel la striction se propage (figure 10.5b). La comparaison des clichés, présentés figures 10.6b et c, ne semble pas mettre en lumière un accroissement du nombre de cavités mais dénote une modification de la forme. En effet, les cavités, au début du plateau, paraissent de forme sphérique quand, avant rupture, après le plateau, celles-ci présentent une forme étirée, orientée dans le sens de la traction. Ces cavités observées sont probablement les empreintes des nodules. De plus, les cavités sphériques observées sur la figure 10.6b ont une taille supérieure aux empreintes mises en valeur après cryofractographie sur le matériau non endommagé. Cela signifierait alors, que les cavités-empreintes des nodules augmentent sphériquement, dans un premier temps, jusqu'au début du plateau de contrainte. Pendant le plateau, les cavités verraient leur forme évoluer et ainsi devenir étirées et orientées dans le sens de la direction de traction. L'élongation des empreintes dans la direction de la plus grande contrainte principale permet, entre deux cavités voisines, la naissance d'une fibrille. L'étirement et l'orientation des fibrilles entraîneraient une résistance supplémentaire qui expliquerait le plateau c'est-à-dire une déformation à contrainte constante : ce mécanisme s'appelle le rhéodurcissement.

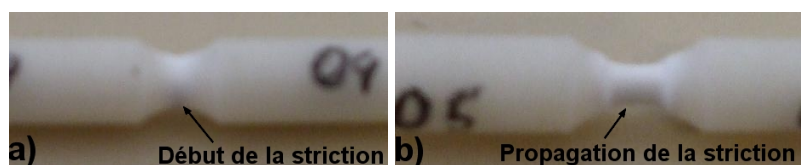


FIGURE 10.5 – "aged P20 EPR" en traction uniaxiale à 0°C et $3\text{ mm}\cdot\text{s}^{-1}$: a) essai interrompu avant le plateau de contrainte ; b) essai interrompu pendant le plateau de contrainte.

Sur la figure 10.6d, il est possible d'observer, au niveau de l'extrémité supérieure de l'ellipse que forme la cavité-l'empreinte après rhéodurcissement et dont l'axe principale est parallèle à l'axe de traction, la germina-

tion de microcavités de l'ordre de quelques dizaines à quelques centaines de nanomètres. Les microcavités de quelques centaines de nanomètres peuvent soit être expliquées par la croissance des microcavités soit par la coalescence des microcavités.

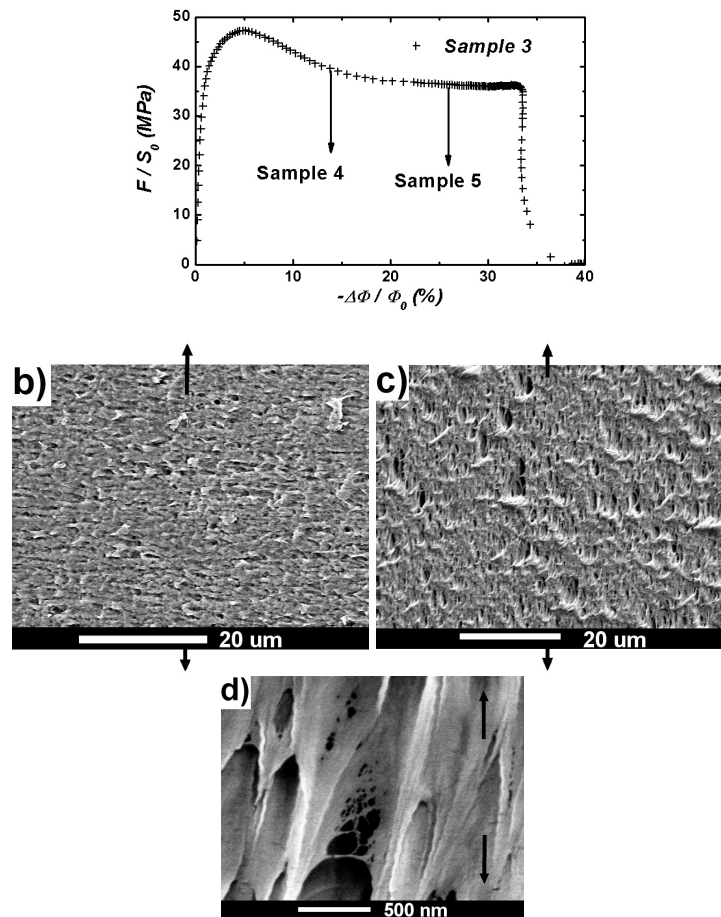


FIGURE 10.6 – "Aged P20 EPR" en traction uniaxiale à 0°C et $3\text{ mm}\cdot\text{s}^{-1}$ (découpe microtome perpendiculaire au sens de traction) : a) courbes Contrainte-réduction diamétrale; b) observation MEB du cœur d'une surface obtenue par microtomie d'un échantillon obtenu après un essai interrompu avant rhéodurcissement ($\times 2000$); c) après rhéodurcissement ($\times 2000$); d) cœur de l'échantillon 5 (après rhéodurcissement), germination de microcavités ($\times 50000$).

10.2.2.3 "Aged P20 NBR"

Concernant le "aged P20 NBR", trois essais interrompus ont été effectués et observés. Il semble que, dans les conditions expérimentales étudiées, le "aged P20 NBR" n'est que très peu concerné par le rhéodurcissement. En théorie, un très court plateau doit apparaître sur la courbe contrainte-déformation suite auquel la contrainte doit lentement chuter jusqu'à la rupture finale. Le "aged P20 NBR" subit également une striction de sa section minimale, striction qui se propage légèrement étant donné que le plateau observé sur les courbes contrainte-déformation est faible (figure 10.7).

Les observations microscopiques des surfaces obtenues par microto-

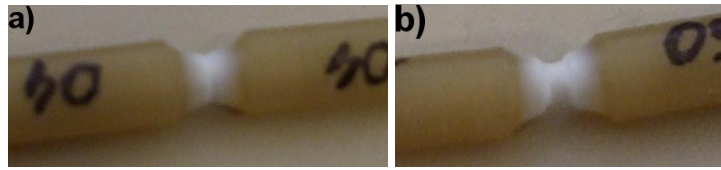


FIGURE 10.7 – "Aged P20 NBR" en traction uniaxiale à 0°C et $3\text{ mm}\cdot\text{s}^{-1}$: a) striction de la section minimale ; b) légère propagation de la striction.

mie confirment la lecture des courbes contrainte-déformation. L'échantillon 4, interrompu au cours du plateau, présente un endommagement (points blancs) localisé au niveau de la section minimale comme il est possible de la constater figure 10.8b et 10.9b. Les empreintes des nodules possèdent une forme étirée 10.9b, quand celles de l'échantillon 3, interrompu avant le court plateau, présentent toujours une forme sphérique (figure 10.9) avec un diamètre légèrement supérieur à celui des charges (500 nm) de l'ordre de quelques microns. Ce degré d'endommagement ne correspond en rien avec l'observation de l'échantillon 5 interrompu au cours de la chute de charge (figure 10.8c), où une fissure macroscopique d'environ 2 mm est présente, expliquant pourquoi le plateau de la courbe contrainte-déformation est si court.

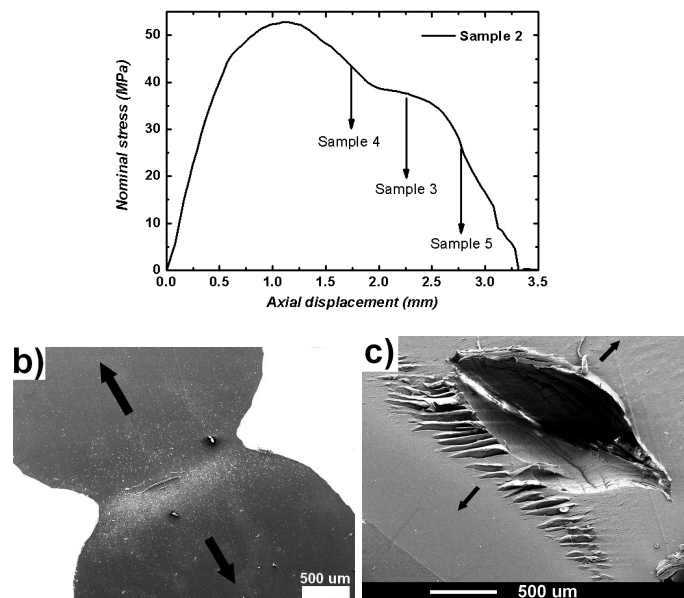


FIGURE 10.8 – "Aged P20 NBR" en traction uniaxiale à 0°C et $3\text{ mm}\cdot\text{s}^{-1}$: a) courbes Contrainte-déplacement ; b) observation MEB du cœur d'une surface obtenue par microtomie de l'échantillon 3 ($\times 30$) ; c) fissure macroscopique observée pour l'échantillon 5 ($\times 50$).

La figure 10.10a consiste en un zoom de l'extrémité de la fissure macroscopique observée figure 10.8c. La morphologie des nodules cavités de NBR en pointe de fissure semble correspondre à la morphologie des cavités schématisées par Muratoğlu *et al.* (1995b), figure 10.10b. En effet, les cavités, en bordure de fissure, sont allongées et épousent la forme dessinée par la fissure ; cette morphologie est similaire à celle observée dans le cas du "aged P40" (figure 10.4). Les particules de caoutchouc cavités plus

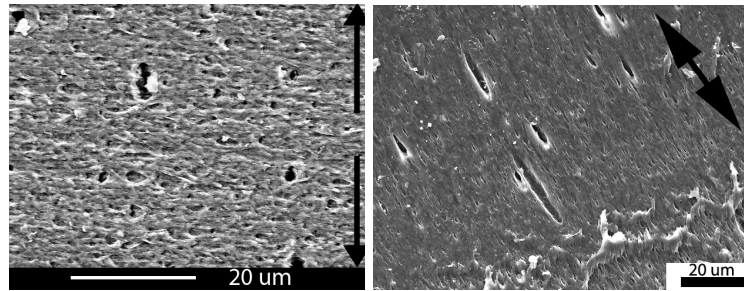


FIGURE 10.9 – Cavités sphériques présentes en cœur de l'échantillon 4 ; cavités étirées et orientées (direction de la plus grande contrainte principale) présentes en cœur de l'échantillon 3.

en amont sont moins étirées et possèdent une orientation parallèle à l'axe de traction.

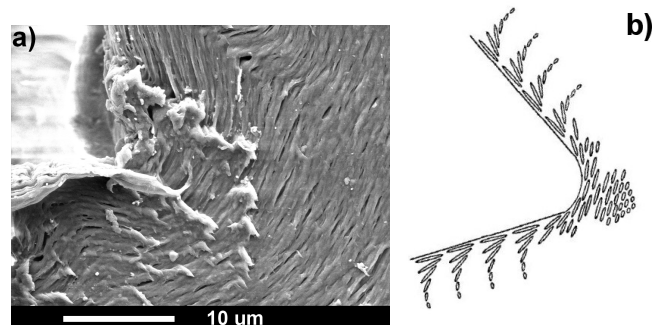


FIGURE 10.10 – a) Extrémité de la fissure observée dans l'échantillon 5 (*3000) ; b) schéma présentant la distribution et l'orientation des cavités en pointe d'une fissure (Muratoğlu et al. 1995b).

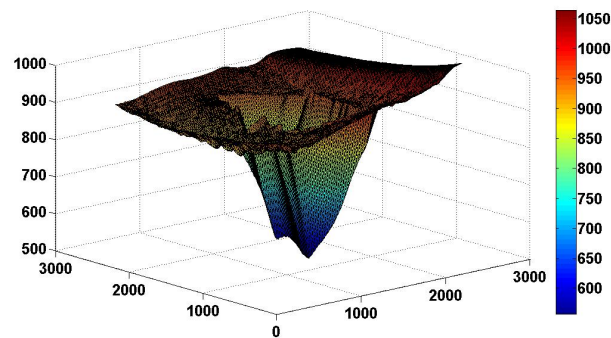


FIGURE 10.11 – Profilométrie de l'échantillon (surface de $2190 \times 2190 \mu\text{m}^2$ avec un pas de $10 \mu\text{m}$).

10.2.3 Cavitation des nodules

Des observations au microscope électronique à transmission d'échantillons, découpés en lames minces par ultra-cryo-microtomie, ont été effectuées par ARKEMA. Elles permettent de mettre en évidence le mode d'endommagement des nodules d'élastomères. En effet, deux modes d'endommagement des nodules peuvent exister : la cavitation en cœur et la cavitation à l'interface nodule-matrice. Or, il s'avère pour les cas étudiés

dans ces travaux que, des cavités se forment en cœur des nodules et non à l'interface. Pour le "aged P20 EPR", les images MET mettent très bien en évidence les cavités au sein des nodules (figure 10.12); pour le "aged P20 NBR", l'observation de l'endommagement des nodules doit être réalisée pour un stage d'endommagement plus avancé car les nodules sont entièrement cavités (figure 10.13). Il n'est pas possible de comparer les matériaux et ainsi d'extraire de nouvelles conclusions étant donné que les géométries et conditions de chargement concernées sont différentes.

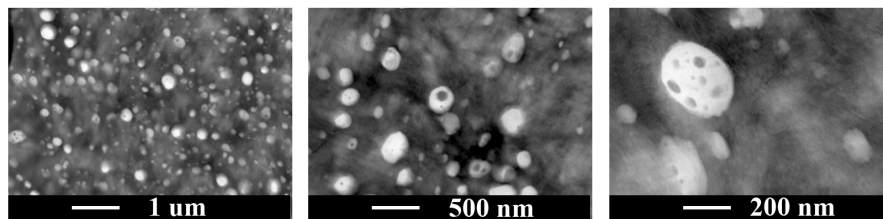


FIGURE 10.12 – Observations MET de la cavitation des nodules d'élastomère en cœur d'une éprouvette lisse de "aged P20 EPR"; traction uniaxiale à 0°C et 0.1 s⁻¹.

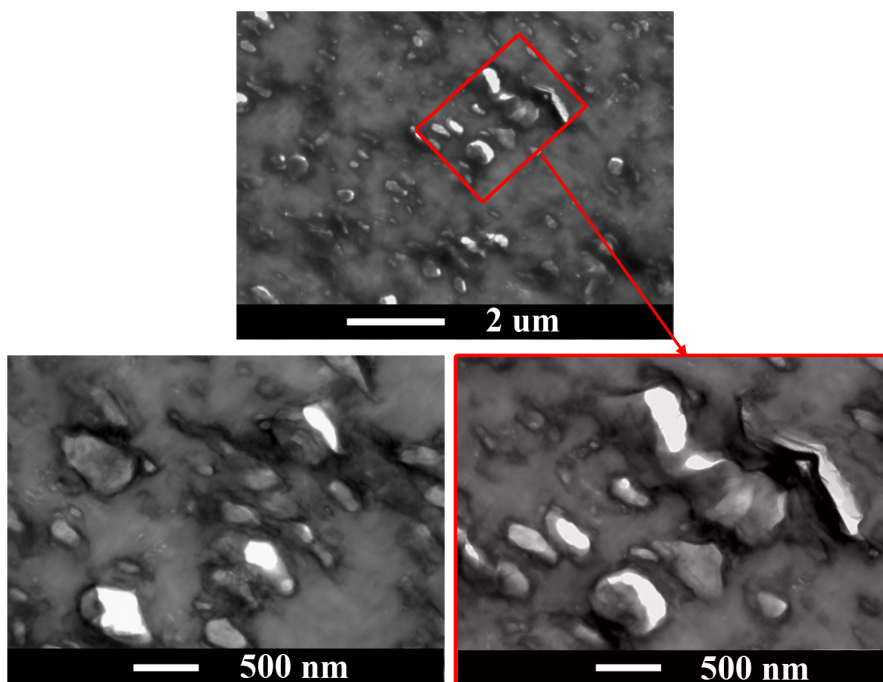


FIGURE 10.13 – Observations MET de la cavitation des nodules d'élastomère d'une surface perpendiculaire à la surface de rupture d'une éprouvette NT₄ de "aged P20 NBR"; traction uniaxiale à 0°C et 3 mm.s⁻¹.

10.3 ÉTUDE DE L'ENDOMMAGEMENT DU "AGED P20 EPR" PAR RÉTRO-DIFFUSION COHÉRENTE

10.3.1 Mode opératoire

Le mode opératoire ne diffère pas de celui employé pour le polyamide 11 (chapitre 9). La température d'essai (0°C), les vitesses de déformation imposées (0.001 mm.s⁻¹, 0.01 mm.s⁻¹ et 0.1 mm.s⁻¹) ou encore la méthode pour obtenir la déformation axiale sont inchangées. Seule diffère l'épaisseur de l'échantillon qui est de 2 mm, longueur et largeur étant respectivement égales à 90 mm et 12 mm.

10.3.2 Mesure de densité par pycnométrie

Le procédé suivi pour mesurer la variation de volume du "aged P20 EPR" est, en tout point, le même que celui suivi dans le cas du polyamide 11 présenté au cours du chapitre précédent (chapitre 9). La mesure de variation de volume est appliquée sur trois échantillons issus de la même plaque extrudée et qui ont subi un essai de traction uniaxiale pour trois vitesses de déformation imposées différentes.

Les résultats de mesures de densité et donc de variation de volume sont résumés dans le tableau 10.1. Chaque échantillon a été mesuré deux ou trois fois pour s'assurer du bon déroulement de la méthode ; ainsi une densité moyenne \bar{x} ainsi que l'écart type sd ont pu être déterminés pour chaque échantillon tels que

$$\bar{x} = \frac{1}{n} \sum_{i=1}^n x_i \quad (10.1)$$

$$sd = \sqrt{\frac{1}{n} \sum_{i=1}^n (x_i - \bar{x})^2} \quad (10.2)$$

avec x_i la densité de l'échantillon et n le nombre total de mesure pour un échantillon. Enfin la variation de volume $\Delta V/V_0$ est défini comme :

$$\frac{\Delta V}{V_0} = \bar{x}_{\text{matériau sain}} - \bar{x}_{\text{matériau endommagé}} \quad (10.3)$$

La première ligne du tableau est consacrée au matériau non endommagé ; les lignes 2 à 4 aux matériaux endommagés.

TABLEAU 10.1 – Résultats des mesures de variation de volume par pycnométrie.

$\dot{\epsilon}$ (s ⁻¹)	ϵ_{axial} (%)	densité (g/cm ³)			\bar{x} (g/cm ³)	sd (g/cm ³)	$\frac{\Delta V}{V_0}$ (%)
–	–	1.0327	1.029	-	1.03085	0.00185	–
0.1	110	0.952	0.955	-	0.9535	0.0015	7.7
0.01	310	0.73	0.84	0.81	0.793	0.0464	23.7
0.001	190	0.937	0.935	–	0.936	0.001	10

10.3.3 Résultats

Grâce à l'analyse du cône de rétro-diffusion couplée à l'obtention de la variation de volume par l'intermédiaire de la pycnométrie, il est alors possible d'avoir une idée de la densité ρ en μm^{-3} et de la fraction volumique de vides dans la particule V_f . En effet, l'analyse du cône de rétro-diffusion (figure 10.14) permet de déterminer la courbe de l'intensité de la lumière $I(q)$. L'optimisation des paramètres $P2$, $P3$ et L^* (figure 10.15) et la connaissance de la variation de volume permettent ensuite d'accéder, grâce aux équations présentées au cours du chapitre 5, à la densité de nodules endommagés et à la fraction volumique moyenne de cavités dans chaque nodule.

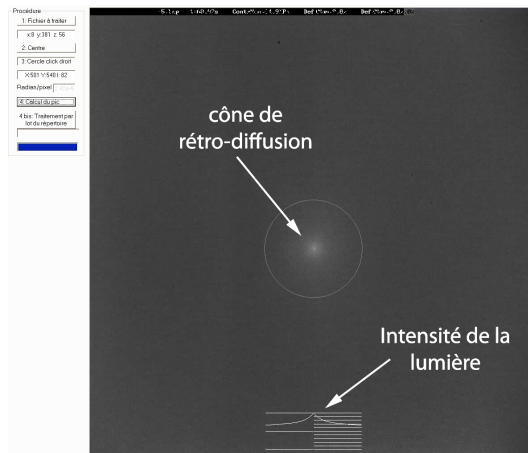


FIGURE 10.14 – Analyse du cône de rétro-diffusion et détermination de $I(q)$.

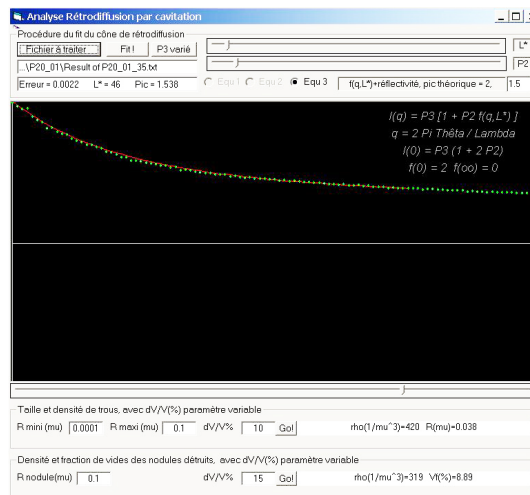


FIGURE 10.15 – Analyse de la courbe $I(q)$ et détermination de la taille et de la densité des nodules détruits.

Les résultats obtenus pour le "aged P20 EPR" sont présentés dans le tableau 10.2 pour les trois taux de déformation considérés, en traction uniaxiale à 0°C .

Le premier constat concerne la variation volumique. En effet, il a été montré que, lors de sollicitations uniaxiales sur des éprouvettes lisses (donc à faible taux de triaxialité, $\tau_\sigma = 0.33$), la variation volumique du

TABLEAU 10.2 – Densité de nodules endommagées et fraction de vide dans un nodule.

$\dot{\epsilon}$ (s^{-1})	ϵ_{axial} (%)	$\frac{\Delta V}{V_0}$ (%)	ρ (μm^{-3})	V_f (%)
0.1	110	7.7	39	4.17
0.01	310	23.7	70	12.21
0.001	190	10	34	15.73

polyamide 11 est très faible (de l'ordre de 2 – 3%). Il en est d'ailleurs de même pour le "aged P40". Or, dans le cas du polyamide 11 renforcé par des nodules d'EPR, est observée une variation volumique non négligeable de l'ordre de 10 – 20%. Plusieurs théories sont envisageables :

1. cavitation interne des nodules de caoutchouc,
2. cavitation des nodules à l'interface,
3. cavitation de la matrice,
4. point 1 ou 2 couplé au 3.

Les observations MET d'une coupe d'éprouvette lisse dévoilent une cavitation en cœur des nodules mais aucune cavitation de la matrice environnante. Des observations MEB d'éprouvettes *NT* (donc générant des taux de triaxialité plus grands) à des taux de déformation plus importants ont permis d'observer des nodules totalement cavités, étirés et orientés. De plus, ces observations à des stades de déformation plus avancés ont mis en évidence la germination, croissance et coalescence de microcavités aux pôles des nodules cavités. Ces microcavités correspondraient à un endommagement de la matrice.

Les résultats obtenus grâce à la rétro-diffusion cohérente sont assez difficiles à expliquer dans notre cas. D'une part, seule la variation de volume après essai est connue, rendant impossible la détermination de courbes densité ou fraction de vide de nodules endommagés - déformation. Les travaux de [Géhant et Schirrer \(1999\)](#) portaient essentiellement sur du PMMA renforcé, qui est un matériau se déformant peu (20 – 25% à 10°C et 20°C) et de manière homogène (pas de striction). Or, le polyamide 11 renforcé ou non réagit de manière complètement différente si on le compare au PMMA choc. D'une part, les déformations supportées sont nettement plus importantes ; d'autre part, le PA11 subit une diminution localisée de la section (striction de l'échantillon). Selon les résultats expérimentaux, la densité de nodules endommagés serait comprise entre $34 \mu m^{-3}$ et $70 \mu m^{-3}$, en fonction de la vitesse considérée ou plutôt de la valeur de la déformation axiale considérée. Si l'on se place à $\dot{\epsilon} = 0.01s^{-1}$, vitesse de déformation intermédiaire, la densité de particules endommagées est égale à $70 \mu m^{-3}$; il est équivalent de dire que tous les nodules compris dans un cube de $1 \mu m$ de côté sont détruits. En effet, le rayon a du nodule sphérique étant de $0.15 \mu m$, son volume est alors égale à $0.0424 \mu m^3$. Des lors, un cube de $1 \mu m^3$ peut contenir environ 70 nodules. La fraction volumique de vide au sein des nodules semble peu évoluer et avoisine, quelle que soit la vitesse de déformation, 15%. Seule évolue la densité de nodules endommagés. Il y aurait donc plus ou moins de nodules endommagés contenant une fractions volumique de vides équivalente.

10.4 DEUX MÉCANISMES D'ENDOMMAGEMENT À 0°C

Le comportement mécanique de trois grades de polyamide 11 plastifié et vieilli a ainsi pu être étudié :

- "aged P40" qui est un polyamide plastifié à 5% après vieillissement,
- "aged P20 EPR", un polyamide plastifié (3% après vieillissement), vieilli et renforcé par 10% d'EPR,
- "aged P20 NBR", un polyamide plastifié (3% après vieillissement), vieilli et contenant 10% de NBR.

Comme pour le polyamide 11, un comportement élasto-visco-plastique est mis en évidence ; de plus, l'endommagement des deux matériaux renforcés se caractérise par la germination et la croissance de vides. Concernant le matériau "aged P40", un blanchiment très localisé, au niveau de la zone de striction, apparaît en cours de déformation. De plus, aucun plateau de contrainte ne se dessine sur la courbe contrainte-déformation. La rupture s'opère peu après l'atteinte du chargement maximal et, des observations MEB d'un échantillon résultant d'un essai interrompu juste avant la rupture ont mis en évidence la présence d'une fissure macroscopique. Il semble que cette fissure se propage très rapidement ce qui expliquerait le fait que les fibrilles n'ont pas le temps de s'étirer. Deux différences majeures existent entre le PA11 et le P40 : la première porte sur le taux de cristallinité qui est deux fois plus grand pour le P40 ; la seconde concerne la masse molaire qui s'avère plus faible toujours dans le cas du P40. Dès lors, si on postule que le taux de plastifiant est devenu, après vieillissement, trop faible pour générer des modifications sur le comportement mécanique endommageable du PA11, les différences observées expérimentalement pourraient s'expliquer soit par le taux de cristallinité plus grand du P40, soit par sa masse molaire réduite, soit par une combinaison de ces deux paramètres.

Une transition des mécanismes d'endommagement a été rencontrée pour le "aged P20 NBR". En effet, les courbes contrainte-déformation, obtenues suite à des essais de traction uniaxiale sur des éprouvettes entaillées de rayon 4 mm, pour une vitesse de déplacement imposée de 3 mm.s⁻¹ à 0°C, ne semblent présenter qu'un léger plateau de contrainte ; celle-ci chute ensuite lentement à diamètre de section minimale constant jusqu'à la rupture finale. L'observation d'un échantillon, issu d'un essai interrompu lors de la chute de contrainte, dénote la présence d'une fissure macroscopique. Cependant, pour une vitesse de déplacement inférieure (de 0.05 mm.s⁻¹), la courbe contrainte-déformation présente, cette fois, une déformation à contrainte constante entraînant la propagation de la striction.

Dans le cas du "aged P20 EPR", aucune transition de mécanismes d'endommagement n'a été mise en lumière. En effet, quelle que soit la vitesse de déplacement considérée (0.05 mm.s⁻¹ ou 3 mm.s⁻¹), une striction s'opère et se propage et ainsi engendre l'apparition d'une déformation à contrainte constante sur les courbes contrainte-déformation. L'observation au MEB de coupes obtenues par microtome faisant suite à des essais interrompus a permis de mettre en évidence le mécanisme du rhéodurcissement. En effet, avant le plateau de contrainte, les cavités issues de

la cavitation des nodules semblent croître sphériquement. La déformation augmentant, la striction de la section minimale étant stabilisée, la croissance des cavités s'opère alors dans la direction de traction, leur conférant non seulement une élongation mais également une orientation. L'élongation et l'orientation des cavités engendrent l'orientation des molécules par l'intermédiaire des fibrilles qui constituent le ligament entre deux cavités voisines. Cette orientation préférentielle entraîne alors une résistance supplémentaire. Enfin, il semble également que des microcavités, de quelques dizaines de nanomètres, naissent aux extrémités des empreintes des nodules (dans le sens de traction), microcavités qui subiraient également une coalescence pour former alors des cavités de quelques centaines de nanomètres.

10.5 QUELQUES RÉSULTATS NUMÉRIQUES...

Comme lors du chapitre précédent, nous nous intéressons à quelques grandeurs caractéristiques que sont : la contrainte dans la direction de traction (σ_{22}), la déformation plastique principale maximale (p) et la fraction volumique de cavités (f). Nous mettons également l'accent sur les valeurs du taux de triaxialité des contraintes (τ_σ) au niveau de la section minimale des éprouvettes NT_4 .

10.5.1 Aged P40

Les essais de traction uniaxiale sur des échantillons de type NT_4 à 0°C ont été effectués pour trois vitesses de déplacement. Pour rappel, les vitesses ont été prises égales à 0.05, 1 et 3 mm.s^{-1} . La figure 10.16 présentent les évolutions du taux de triaxialité des contraintes (symbole) et de la fraction volumique de cavités (trait plein) en plein cœur des échantillons. L'étude des courbes expérimentales contrainte-déformation n'avait pas permis de déceler des modifications du comportement endommageable du matériau. Numériquement, le résultat est équivalent et d'ailleurs les variations de τ_σ et de f sont similaires et simplement décalées dans le temps selon la vitesse considérée.

Considérons, non plus exclusivement le cœur de l'échantillon, mais l'intégralité de la section minimale à des temps caractéristiques identifiables (figure 10.17), qui correspondent aux temps initial et final (c'est-à-dire précédant la rupture de l'échantillon) et au temps d'atteinte de la contrainte maximale. Nous nous plaçons dans le cas d'un essai de traction pour une vitesse de déplacement de 3 mm.s^{-1} .

Jusqu'à l'atteinte de la contrainte maximale, le taux de triaxialité des contraintes n'évolue pas et semble uniforme le long de la section minimale autour d'une valeur de 0.5 (si nous appliquons une échelle différente, τ_σ est en réalité légèrement plus important en cœur). Cette valeur atteinte, la fraction volumique de cavités, au niveau des points de Gauss des éléments localisés en cœur, s'approche de la fraction volumique critique. Sur la figure 10.18, nous nous intéressons à deux temps finaux : un avant la rupture des éléments et un second après rupture des éléments, c'est-à-dire après apparition d'une fissure de longueur $300\ \mu\text{m}$.

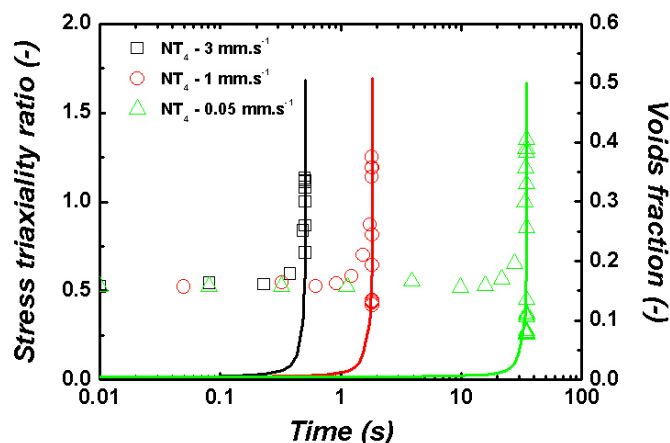


FIGURE 10.16 – Evolution du taux de triaxialité des contraintes (symbole) et de la porosité (trait plein) en cœur d'une éprouvette NT_4 de "aged P40" pour trois vitesses de traction (0.05, 1 et 3 mm.s^{-1}) à 0°C ; la valeur initiale de la porosité est prise égale à 0.5%.

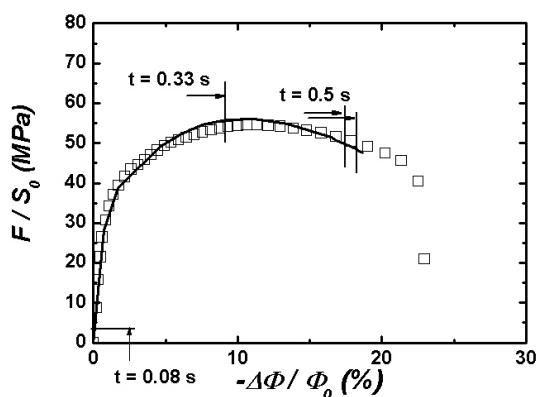


FIGURE 10.17 – Courbes contrainte - réduction diamétrale de la section minimale d'une éprouvette NT_4 de "aged P40" (3 mm.s^{-1} et 0°C) : données expérimentales (symbole) et numériques (trait plein).

Toujours dans le cas d'une simulation numérique d'un essai de traction uniaxiale à une vitesse de déplacement de 3 mm.s^{-1} , la figure 10.19 permet de porter l'attention aux valeurs de σ_{22} , p_1 et f aux mêmes temps caractéristiques. Tout comme pour le taux de triaxialité des contraintes, la contrainte dans la direction de traction σ_{22} est uniforme le long de la section minimale jusqu'à l'atteinte de la contrainte maximale sur la courbe contrainte-déformation (figure 10.17). Ensuite, σ_{22} chute en cœur. Cela s'explique par la rupture des éléments pour lesquels $f > f_c$. Sur le reste de la section minimale, la contrainte n'est plus uniforme et atteint une valeur maximale de l'ordre de 75 MPa à mi-distance cœur-surface. Ce sont deux différences majeures avec le PA11 non vieilli et non plastifié. En effet, celui-ci présentait une contrainte σ_{22} maximale en surface qui atteignait des valeurs supérieures à 200 MPa . Le matériau est beaucoup plus sollicité plastiquement en cœur comme en attestent les valeurs de p_1 .

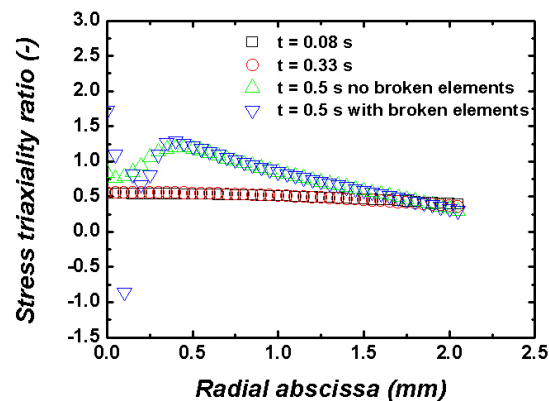


FIGURE 10.18 – Répartition du taux de triaxialité des contraintes à des temps caractéristiques au niveau de la section minimale d'une éprouvette NT₄ de "aged P40" (3 mm.s^{-1} et 0°C).

De plus, de grandes disparités apparaissent si l'on compare les valeurs en cœur et en surface de p_1 ou f .

10.5.2 Aged P20 EPR

La même étude est, cette fois, appliquée sur les simulations numériques concernant le "aged P20 EPR". Les conditions expérimentales et numériques sont identiques, le modèle de comportement utilisé est celui présenté au cours du chapitre 8 et nous utilisons une fraction volumique initiale de cavités de 10% c'est-à-dire que nous considérons que l'ensemble des nodules de caoutchouc ont cavité.

Dans un premier temps, nous nous intéressons à l'évolution du taux de triaxialité des contraintes et de la porosité en cœur en fonction du temps pour les trois vitesses de déplacement testées à 0°C . La figure 10.20 présentent les résultats obtenus. Comme pour le "aged P40", les allures des courbes ne diffèrent que très peu selon la vitesse. Cependant, il semble que la valeur maximale du taux de triaxialité, atteinte en cours de déformation, diminue lorsque la vitesse de déplacement diminue. Il est nécessaire de rappeler qu'il n'a pas été possible d'identifier une valeur unique des paramètres intervenant dans la loi de comportement quelle que soit la vitesse considérée. Une des possibilités avancée, pour expliquer cette difficulté, serait l'insuffisance d'un seul potentiel visqueux. Dés lors, nous utilisons pour chaque vitesse un jeu différent de comportement et ainsi la différence constatée concernant τ_σ peut en être une conséquence directe.

La figure 10.21 met en valeur les temps caractéristiques auxquels nous étudions les valeurs de τ_σ , σ_{22} , p_1 et f le long de la section minimale pour une simulation numérique d'un essai de traction à 0°C et 3 mm.s^{-1} . Les temps suivants sont considérées :

- $t = 0 \text{ s}$ et $t = 1.15 \text{ s}$ soit les temps initial et final,
- $t = 0.07 \text{ s}$ dans la partie élastique,
- $t = 0.15 \text{ s}$ au début de la réduction du diamètre de la section minimale (ré-entaillage),
- $t = 0.45 \text{ s}$ à l'atteinte de la contrainte nominale maximale,

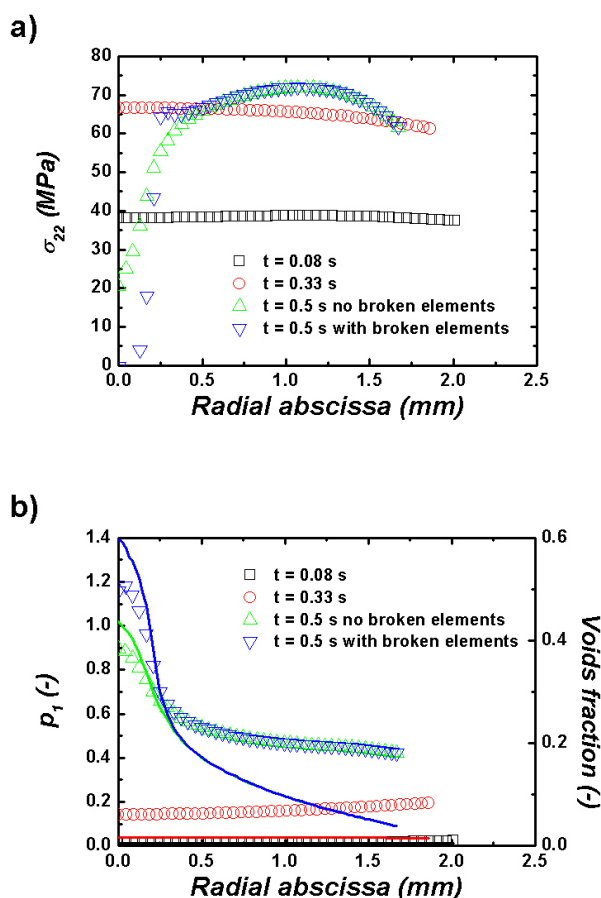


FIGURE 10.19 – Répartition de différentes valeurs à des temps caractéristiques au niveau de la section minimale d'une éprouvette NT₄ de "aged P40" (3 mm.s⁻¹ et 0°C) : a) contrainte dans la direction de traction (σ_{22}); b) déformation plastique principale maximale p_1 (symbole) et de la fraction volumique de cavités (trait plein).

- $t = 0.58$ s en cours d'adoucissement.

L'évolution du taux de triaxialité des contraintes diffère de celle observée dans le cas du "aged P40" mais ressemble à celle constatée pour le polyamide 11 non vieilli. En effet, il apparaît, sur la figure 10.22, que τ_σ est maximale en cœur jusqu'à $t = 0.45$ s c'est-à-dire jusqu'au ré-entaillage de la striction. Au cours de l'adoucissement, τ_σ diminue en cœur mais sa valeur en surface n'évolue que très peu. Avant la rupture de l'échantillon, sa valeur en cœur atteint une valeur proche de 0.33 soit le taux de triaxialité d'une éprouvette lisse.

La contrainte dans la direction de traction est uniforme au niveau de la section minimale jusqu'au ré-entaillage (figure 10.23a). Suite au ré-entaillage et en cours d'adoucissement, σ_{22} devient plus importante en surface. Quel que soit l'élément considéré appartenant à la section minimale, σ_{22} augmente. Avant la rupture, la contrainte est maximale en surface et atteint 150 MPa, soit une valeur de l'ordre des contraintes observées dans le PA11, contre 75 MPa en cœur. Une évolution similaire s'opère lorsqu'on s'intéresse à la déformation plastique principale maximale qui, avant rup-

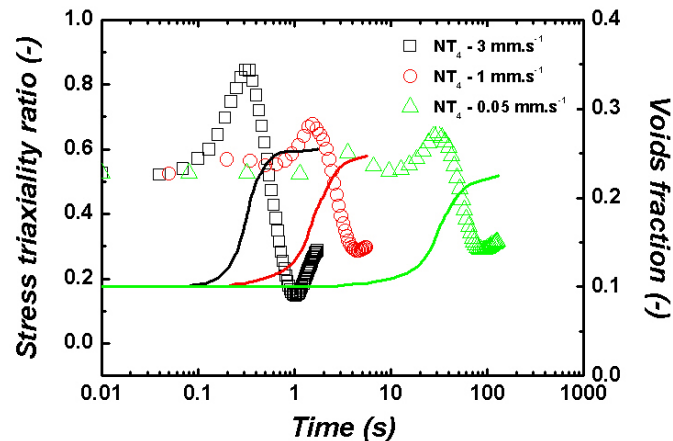


FIGURE 10.20 – Evolution du taux de triaxialité des contraintes (symbole) et de la porosité (trait plein) en cœur d'une éprouvette NT_4 de "aged P20 EPR" pour trois vitesses de traction ($0.05, 1$ et 3 mm.s^{-1}) à 0°C .

ture, est maximale en surface. A contrario, la porosité est bien maximale en cœur.

10.5.3 Conclusions

Les traitements des résultats expérimentaux, ainsi que les observations microscopiques, avaient permis de déceler le fait que les matériaux "aged P40" et "aged P20 EPR" ont deux comportements mécaniques différents. Ainsi, les paragraphes précédents permettent de mettre en évidence, à travers une approche numérique, les différences qu'il peut exister entre les deux types de comportement. En effet, le "aged P40" adopte une absence de propagation de la striction ainsi qu'une naissance et propagation d'une fissure macroscopique en cœur. Or, il semble que le "aged P20 EPR" ait un comportement qui se rapproche de celui du PA11 en dépit de l'ajout de plastifiant et du vieillissement, probablement compensés par la présence d'une seconde phase caoutchoutique. La présence d'une fissure macroscopique implique de considérer l'éprouvette comme une éprouvette fissurée. Ainsi, la contrainte $(\sigma_{22})_{max}$ ne se localise plus en surface, comme dans le PA11 ou le "aged P20 EPR", mais à mi-distance entre le cœur et la surface. Le champ de taux de triaxialité des contraintes est également modifié en raison de la présence de la fissure. Si l'évolution de τ_σ en cœur est tracée en fonction du temps, il apparaît que, dans le cas du "aged P40", τ_σ atteint sa valeur maximale en fin d'essai (figure 10.16) alors que, pour le "aged P20 EPR", $(\tau_\sigma)_{max}$ s'obtient aux alentours du ré-entaillage (figure 10.20). Les niveaux de triaxialité sont de surcroît bien différents : 1.7 pour le "aged P40" contre 0.8 pour le "aged P20 EPR".

10.6 CONCLUSIONS

La cavitation des particules de renfort s'opère en dépit du vieillissement subi par le matériau. Ainsi, ce phénomène de cavitation permet

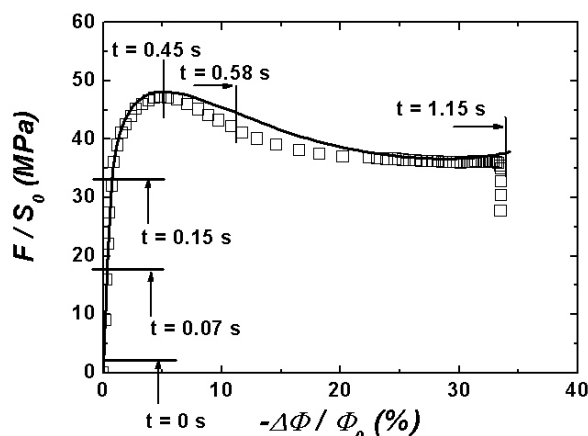


FIGURE 10.21 – Courbes contrainte - réduction diamétrale de la section minimale d'une éprouvette NT_4 de "aged P20 EPR" (3 mm.s^{-1} et 0°C) : données expérimentales (symbole) et numériques (trait plein).

de préserver la ductilité du matériau et donc de compenser les effets du vieillissement hydrolitique. De plus, l'étude souligne une dépendance temps-température des matériaux renforcés : en effet, le P20 NBR affiche deux mécanismes d'endommagement qui semblent pouvoir être extrapolés également dans le cas du P20 EPR. A de grandes vitesses de déformation, une coalescence des cavités s'opère engendrant un amorçage puis une propagation d'une fissure macroscopique. A de plus faibles vitesses de déformation, la cavitation des particules de caoutchouc permet une rupture à de plus grandes déformations : on constate la propagation de la striction et, sur les courbes contraintes-déformations, l'apparition d'un plateau signifiant une déformation à contrainte constante. La fibrillation de la matrice, mise en évidence par des observations microscopiques autour des particules d'élastomère et résultant de la présence de ces nodules, engendre une résistance additionnelle à la rupture.

Le tableau 10.3 et la figure 10.24 permettent de résumer de manière synthétique les observations et conclusions apportées par ce chapitre.

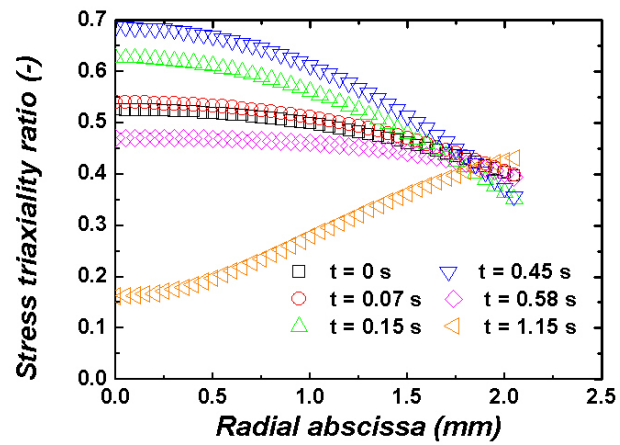


FIGURE 10.22 – Répartition du taux de triaxialité des contraintes à des temps caractéristiques au niveau de la section minimale d'une éprouvette NT_4 de "aged P20 EPR" (3 mm.s^{-1} et 0°C).

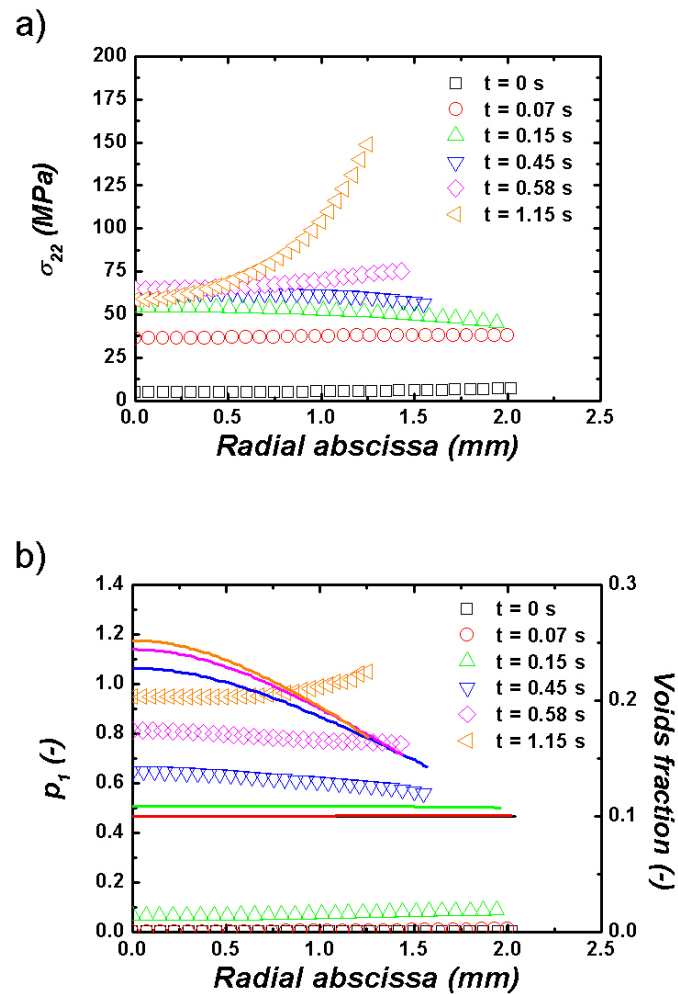


FIGURE 10.23 – Répartition de différentes valeurs à des temps caractéristiques au niveau de la section minimale d'une éprouvette NT₄ de "aged P20 EPR" (3 mm.s⁻¹ et 0°C) : a) contrainte dans la direction de traction (σ_{22}) ; b) déformation plastique principale maximale p_1 (symbole) et de la fraction volumique de cavités (trait plein).

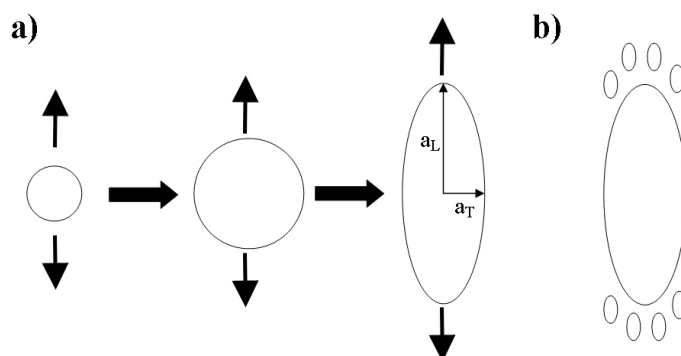


FIGURE 10.24 – a) Schéma de l'évolution de l'endommagement par croissance de cavités ; b) Schéma de la micro-cavitation aux extrémités d'une cavité.

TABLEAU 10.3 – Tableau récapitulatif des informations collectées à partir d'essais de traction uniaxiale sur NT₄ à 0°C

Caractéristiques	Aged P40		Aged P20 EPR		Aged P20 NBR	
	0.05 mm.s ⁻¹	3 mm.s ⁻¹	0.05 mm.s ⁻¹	3 mm.s ⁻¹	0.05 mm.s ⁻¹	3 mm.s ⁻¹
Déformation à rupture (%)	71	52	112	91	112	140
Réduction diamétrale à rupture (%)	22	23	31	44	10	44
Contrainte maximale (MPa)	47	54	43	47	42	52
Striction	++	++	+++	++	+++	++
Propagation de la striction	- - -	- - -	+++	+++	+++	+
Blanchiment	+	+	+++	+++	+++	+++
Présence d'une macro-fissure	?	oui	non	non	non	oui

Caractéristiques	Aged P40		Aged P20 EPR		Aged P20 NBR	
	Matériaux	Matériaux	Matériaux	Matériaux	Matériaux	Matériaux
Cavités initiales : taille	$a_L = a_T = 1 - 2 \mu m$	non observées	non observées	non observées	non observées	non observées
Cavités initiales : fraction volumique	$f_0 \leq 1\%$	$f_0 \approx 0\%$	$f_0 \approx 0\%$	$f_0 \approx 0\%$	$f_0 \approx 0\%$	$f_0 \approx 0\%$
Nodules : taille	non	$a_L = a_T = 100 - 150 \text{ nm}$	$a_L = a_T = 100 - 150 \text{ nm}$	$a_L = a_T = 250 - 300 \text{ nm}$	$a_L = a_T = 250 - 300 \text{ nm}$	$a_L = a_T = 250 - 300 \text{ nm}$
Nodules : fraction volumique	$f_r = 0\%$	$f_r = 10\%$	$f_r = 10\%$	$f_r = 10\%$	$f_r = 10\%$	$f_r = 10\%$
Adoucissement : taille et forme des cavités	cavités étirées autour de la macro-fissure	cavités sphériques	cavités sphériques	cavités sphériques	cavités sphériques	cavités sphériques
Début du plateau : taille et forme des cavités	$a_L = 3 - 5 \mu m$ et $a_T = 15 - 25 \mu m$	cavités étirées	cavités étirées	$a_L = a_T = 1 \mu m$	$a_L = a_T = 1 \mu m$	$a_L = a_T = 1 \mu m$
Fin du plateau : taille et forme des cavités		cavités étirées	cavités étirées	$a_L = a_T = 12.5 \mu m$ et $a_T = 2.5 \mu m$	$a_L = 12.5 \mu m$ et $a_T = 2.5 \mu m$	$a_L = 12.5 \mu m$ et $a_T = 2.5 \mu m$
		$a_L = 2.5 \mu m$ et $a_T = 0.5 \mu m$	$a_L = 2.5 \mu m$ et $a_T = 0.5 \mu m$	micro-cavitation aux extrémités des cavités	micro-cavitation aux extrémités des cavités	micro-cavitation aux extrémités des cavités

ÉTUDE DE LA RUPTURE DU POLYAMIDE

11

SOMMAIRE

11.1 RUPTURE DUCTILE DES ÉPROUVETTES ENTAILLÉES À 0°C	237
11.1.1 Le PA11	237
11.1.2 Le PA11 plastifié et vieilli : le "aged P40"	239
11.1.3 Le PA11 plastifié, renforcé et vieilli : le "aged P20 EPR" et le "aged P20 NBR"	240
11.2 FLEXION 3 POINTS SUR ÉPROUVETTES FISSURÉES DE PA11	241
11.2.1 Protocole expérimental	241
11.2.2 Résultats	242
11.2.3 Observations faciès de rupture	244
11.3 MODÉLISATION DE LA RUPTURE	246
11.3.1 Introduction	246
11.3.2 Calculs en 3 Dimensions	246
11.3.3 Calculs en 2 Dimensions avec le modèle GTN	248
11.3.4 Approche globale : détermination de la ténacité J_{IC}	251
11.3.5 Modélisation de la fissuration fragile	252
11.4 CONCLUSIONS	254

LE modèle de Gurson-Tvergaard-Needleman a permis de modéliser les essais de traction sur éprouvettes lisses et entaillées à 0°C. Au cours de ce chapitre, on s'intéresse à la modélisation des essais de flexion 3 points sur des éprouvettes fissurées à partir du modèle comportement-endommagement précédemment explicité. Au préalable, à partir des essais sur éprouvettes entaillées, il s'agit de mettre en évidence le ou les paramètres critiques responsables de la rupture ductile.

11.1 RUPTURE DUCTILE DES ÉPROUVETTES ENTAILLÉES À 0°C

L'étude de la rupture des polymères a fait l'objet de nombreuses études au cours desquelles il a été démontré que de nombreux paramètres influent comme la température, la vitesse, la masse molaire (Vincent 1972), la vitesse de cristallisation (Brown et Ward 1983) ou encore la présence de défauts intrinsèque ou extrinsèque (Argon et Cohen 2003). Le mode de rupture par crazing a été beaucoup étudié en particulier dans le cas des polymères vitreux mais également, dans le cas des matériaux semi-cristallins comme le PVDF (Lafarge 2004). Le crazing est généralement observé en pointe de fissure, soit à l'endroit où le champ de contraintes est accru. Nimmer et Woods (1992) relient la contrainte hydrostatique au crazing. Dès lors, les critères de rupture par crazing sont habituellement explicités en terme de contrainte critique, une contrainte hydrostatique pour Ishikawa *et al.* (1977), ou une combinaison de la contrainte hydrostatique et de la contrainte principale maximale pour Nimmer et Woods (1992). Au cours du chapitre 2, nous avons évoqué la modélisation de la rupture par crazing par l'intermédiaire d'une zone cohésive (Estevez *et al.* 2000). Par le biais de cette étude purement numérique, les auteurs utilisent comme critère, non plus une contrainte critique, mais le couple largeur-longueur critiques de la craquelure.

La craquelure se compose de fibrilles, ligaments de matière très étirés, et de vides. Dès lors, la transformation d'une craquelure en fissure peut être le résultat soit de la rupture des fibrilles soit de la coalescence de cavités. Friedrich (1983), Schirrer (1995) montrent que le taux de triaxialité des contraintes privilégie le processus de rupture. Ainsi, pour une triaxialité faible, la craquelure se transforme en fissure par rupture des fibrilles et, à des triaxialités élevées, par coalescence des cavités.

Remarque 11.1 *Concernant les simulations impliquant la propagation d'une fissure ou lorsque la rupture est obtenue par l'intermédiaire d'un critère en porosité critique par coalescence des cavités et donc engendrant la naissance d'une fissure, le matériau à chaque point de Gauss est considéré cassé lorsque la porosité atteint une valeur critique ($f_t = f_c$). Pour éviter un re-maillage de l'éprouvette, le comportement de l'élément, dont les points de Gauss sont considérés comme cassés, adopte un comportement élastique caractérisé par un module de Young très faible ($E = 0.1$ MPa) et un coefficient de Poisson nul. Une technique similaire a été utilisée par Liu *et al.* (1994), Grange *et al.* (2000), Lafarge (2004).*

11.1.1 Le PA11

Dans le chapitre 9 où l'endommagement du PA11 a été étudié à travers l'observation d'essais interrompus, aucune macro-fissure n'a été révélée. Quelle que soit la triaxialité des éprouvettes considérées, un endommagement plus ou moins important par croissance de cavités est observé. Dès lors, il semblerait que la rupture du PA11, pour nos géométries, ne soit pas dû à la coalescence des cavités mais à la rupture des fibrilles qui atteignent une déformation critique. Cependant, la géométrie NT_{08} semble être une géométrie capricieuse pour laquelle une compétition doit s'opérer entre les deux critères. En effet, lors des essais, certains échantillons semblent

rompre par la coalescence de cavités. Si pour la géométrie de type NT_4 , la rupture est sans nul doute obtenue par l'atteinte d'une déformation critique (figure 11.1), il semblerait qu'avec l'augmentation en cœur de la triaxialité à travers des essais sur $NT_{1.6}$, $NT_{1.2}$ et $NT_{0.8}$, le critère de rupture tend à devenir un critère de rupture en coalescence de cavités c'est-à-dire en porosité critique.

Les figures 11.1 et 11.2 présentent l'évolution de la charge en fonction du déplacement imposé obtenue numériquement sur lesquelles sont reportées les valeurs de la porosité f_g et de la déformation plastique principale maximale p_1 . Nous proposons d'identifier deux critères de rupture par l'intermédiaire de ces deux paramètres comme ce qui avait été effectué précédemment par Lafarge (2004) pour du PVDF. Sur la plage de dispersion expérimentale, la fraction volumique de vides varie très peu à la différence de la déformation plastique principale maximale qui ne cesse pas d'augmenter. Les simulations numériques des essais sur $NT_{0.8}$ permettent d'attester de la tendance d'évolution du critère de rupture avec l'augmentation du taux de triaxialité des contraintes. Lors du chapitre 9, il a été mis en évidence que l'augmentation de la triaxialité augmentait la fraction volumique de vide et donc il n'est pas surprenant que la porosité en fin d'essai puisse atteindre une valeur de l'ordre de 35%. Ce constat offre une explication au fait que certains échantillons $NT_{0.8}$ aient pu casser par atteinte d'une porosité critique et ainsi confirme qu'il existe une compétition pour cette géométrie entre les deux critères de rupture.

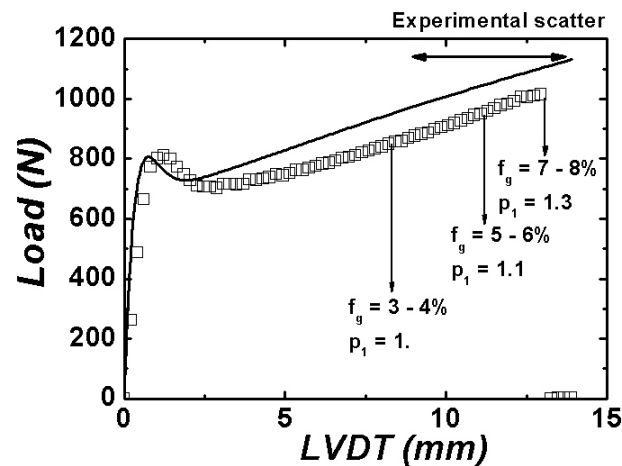


FIGURE 11.1 – Valeurs de p_1 et f pour une éprouvette NT_4 de PA11 à 0°C et $0.05 \text{ mm}\cdot\text{s}^{-1}$: données expérimentales (□) et données numériques (—).

L'existence d'un second critère de rupture entraîne la modification de la valeur du paramètre q_1 qui jusqu'ici, ne considérait une rupture des éléments aux points de Gauss que par l'atteinte d'une porosité critique. Dès lors, afin de rendre compte de l'existence d'une valeur à rupture de la déformation plastique principale maximale, la modification suivante du

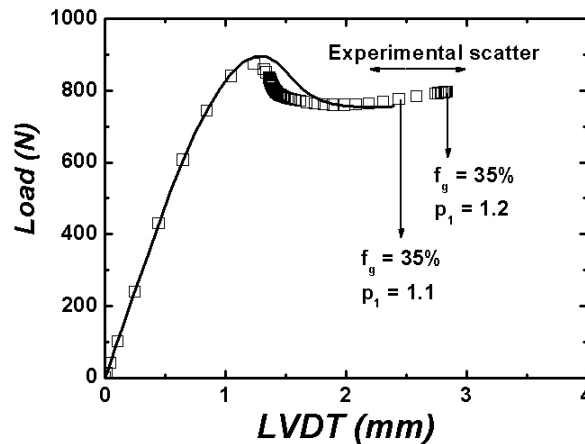


FIGURE 11.2 – Valeurs de p_1 et f pour une éprouvette $NT_{0,8}$ de PA11 à 0°C et 0.05 mm.s^{-1} : données expérimentales (\square) et données numériques (—).

paramètre q_1 est proposée :

$$q_1 = \begin{cases} 2 & \text{si } p_1 < 1.1 \\ 2 \cdot \exp(10(p_1 - 1.1)) & \text{si } p_1 \geq 1.1 \end{cases} \quad (11.1)$$

Cette manière de procéder permet d'obtenir la rupture des éléments aux points de Gauss quand ceux-ci n'ont pas atteint la porosité critique mais une déformation plastique critique. En effet, lorsque p_1 devient supérieur à 1.1, la valeur de q_1 augmente de manière exponentielle engendrant la chute de la valeur de la porosité critique et permet ainsi de casser l'élément considéré.

11.1.2 Le PA11 plastifié et vieilli : le "aged P40"

L'ajout de plastifiant suivi du vieillissement hydraulique du polyamide 11 lui confère des propriétés totalement différentes lorsqu'on le compare au matériau "sain". Les expériences montrent que le matériau plastifié et vieilli a perdu une partie de sa ductilité, ductilité en terme de capacité à se déformer. En effet, en traction sur éprouvette lisse ou entaillée, le "aged P40" voit sa déformation à rupture fortement diminuer et atteint des niveaux de contraintes bien inférieurs à ceux admis par le PA11. Concernant les essais de traction sur éprouvettes de type NT_4 , l'observation d'un faciès obtenu par microtomie, d'un essai interrompu peu avant la rupture, a révélé la présence d'une microfissure, preuve d'une rupture par coalescence de cavités. Ce mode de rupture s'avère être une différence majeure avec le matériau "sain" qui à géométrie et conditions équivalentes présente une rupture par élongation des fibrilles avec croissance de cavités. Ce faisant, l'optimisation des paramètres d'endommagement du "aged P40" doit rendre compte de la présence de cette fissure. Dès lors, deux options sont possibles : soit modifier la valeur de q_1 de telle sorte que la porosité critique f_c soit inférieure à celle du PA11, soit modifier les paramètres définissant q_2 afin de rendre l'endommagement

plus important. Nous avons opté pour la deuxième option qui semble être la plus appropriée.

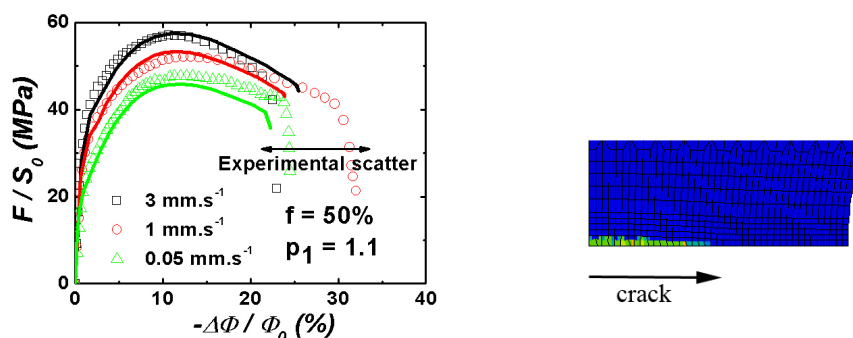


FIGURE 11.3 – Valeurs de p_1 et f pour trois éprouvettes NT_4 à 0°C à différentes vitesses de traction et présentation de la fissure obtenue en fin de simulation numérique.

Les valeurs des paramètres d'endommagement permettant d'obtenir de tels résultats sont répertoriés dans le tableau 11.1. Afin d'obtenir une rupture par coalescence des cavités, il a été nécessaire d'augmenter les valeurs des paramètres en comparaison à celles appliquées dans le cas du PA11.

TABLEAU 11.1 – Coefficients des paramètres d'endommagement pour le "aged P40" à 0°C et $f_0 = 0.5\%$.

q_1	q_2			
M	m	p_t	v	
2	1.5	1	0.9	10

11.1.3 Le PA11 plastifié, renforcé et vieilli : le "aged P20 EPR" et le "aged P20 NBR"

Une des premières questions qu'il faut se poser lorsqu'on cherche à modéliser le comportement endommageable d'un matériau renforcé est la suivante : doit-on considérer un matériau avec une porosité initiale égale au taux de fraction volumique de nodules de caoutchouc et ainsi faire l'hypothèse que les nodules cassent très tôt ou considérer un matériau sans porosité initiale avec coalescence de vides. Les études sur les matériaux renforcés présentes dans la littérature, comme par exemple celles de Tzika *et al.* (2000), van Dommelen *et al.* (2003) présentées lors du chapitre 3, considèrent des nodules cavités. Dès lors, ceci consiste en un élément de réponse à la question posée : nous pouvons considérer un matériau contenant une porosité initiale de 10% et si besoin, selon les constatations apportées par des observations microscopiques, ajouter une coalescence de cavités.

Une des conclusions du chapitre 8, qui traitait de la simulation du comportement mécanique des matériaux, portait sur la modélisation de l'endommagement des matériaux possédant une seconde phase qui pourrait être hors du champ d'application du modèle de Gurson sous sa forme

actuelle. Certes, il a également été suggéré qu'une loi de Norton unique ne serait probablement pas suffisante, ce qui semble être d'autant plus le cas pour les matériaux renforcés. Cependant, au cours du chapitre 11, nous avons pu mettre en évidence la transition de mécanisme de rupture dans le cas du "aged P20 NBR" selon la vitesse de déplacement considérée. Pour rappel, à grande vitesse, la rupture s'opère par la coalescence de cavités, quand à vitesse inférieure la rupture s'effectue par la rupture des fibrilles. Or le modèle ne permet pas de rendre compte de ce changement de mécanisme selon la vitesse.

Une autre hypothèse pour expliquer les changements de mécanismes pourrait être l'auto-échauffement subi par le matériau en cours de déformation étant donné que les essais sont effectués à 0°C et que la zone de température de transition vitreuse des matériaux "aged P20 EPR" et "aged P20 NBR" se situe aux alentours de 20°C. On montrera plus tard (chapitre 12) que lors d'essais de traction sur des éprouvettes entaillées, la température du matériau commence à augmenter au cours de la striction de l'éprouvette. On pourrait penser qu'à faible vitesse, la température a plus l'occasion de se diffuser au sein du matériau et ainsi donner un élément de réponse à la modification des mécanismes selon la vitesse de traction. A grande vitesse, la température serait plus localisée et perturberait moins le comportement endommageable du matériau.

Les résultats présentés dans le chapitre 7 concernant la traction uniaxiale sur NT_4 pour le "aged P20 EPR" ont été obtenus avec des jeux de coefficients qui varient selon la vitesse de déplacement imposée. Cependant les paramètres influant sur l'endommagement n'ont, quant à eux, pas été modifiés. En effet, il n'a pas été possible d'effectuer des essais interrompus afin d'observer les surfaces obtenues par microtomie et donc d'effectuer une analyse de l'évolution de l'endommagement comme pour le PA11. Cependant, des techniques comme la rétro-diffusion cohérente et la pycnométrie nous ont tout de même apportés quelques informations. Il apparaît que le "aged P20 EPR", pour les gammes de vitesses et de géométries à 0°C considérées, subit une rupture par élongation critique des fibrilles comme le PA11 (ce résultat pourrait, semble-t-il, être extrapolé pour une température de -10°C). Le jeu de coefficients utilisé est répertorié dans le tableau 11.2 et permet d'obtenir une valeur de la porosité finale proche de celle mise en évidence expérimentalement de l'ordre de 25%.

TABLEAU 11.2 – Coefficients des paramètres d'endommagement pour le "aged P20 EPR" à 0°C.

q_1	q_2			
	M	m	p_t	v
1.7	0.8	0.5	0.5	10

11.2 FLEXION 3 POINTS SUR ÉPROUVETTES FISSURÉES DE PA11

11.2.1 Protocole expérimental

Les échantillons sont prélevés dans un tube extrudé d'épaisseur 10 mm fourni ARKEMA et ont comme dimension $L = 10 \text{ mm}$, $W = 10 \text{ mm}$ et

$B = 10 \text{ mm}$ (figure 11.4). La pré-fissure est de l'ordre de $2.5 \text{ mm} : 2 \text{ mm}$ sont obtenus par usinage, les 0.5 mm restant par lame de microtome (voir annexe E). Afin de suivre l'ouverture de la fissure, un capteur extensométrique est utilisé dont les couteaux sont fixés sur deux lamelles en acier, au préalable vissées dans l'échantillon (figure 11.5).

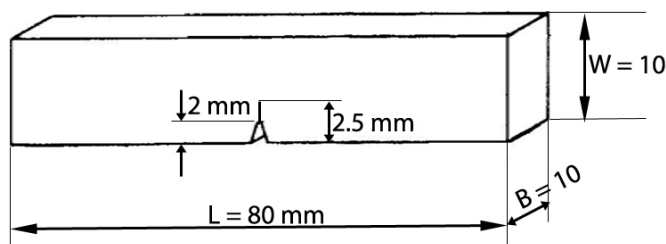


FIGURE 11.4 – Schéma des échantillons fissurés.

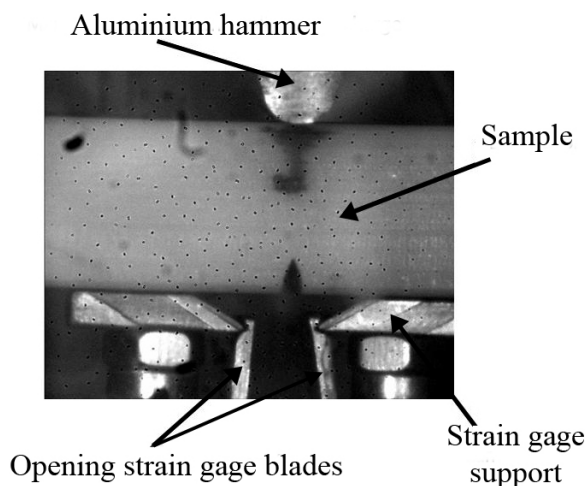


FIGURE 11.5 – Montage de flexion 3 points.

Les essais de flexion sont réalisés à une température de 0°C pour plusieurs vitesses de déflexion (vitesse de déplacement du marteau) allant de 50 mm.min^{-1} à 200 mm.min^{-1} .

11.2.2 Résultats

La figure 11.6 présente l'évolution de la force en fonction de l'ouverture de la fissure (Crack Tip Opening Displacement, CTOD) pour les trois vitesses de déflexion considérées : 50 mm.min^{-1} , 100 mm.min^{-1} et 200 mm.min^{-1} . Lorsqu'à 50 mm.min^{-1} s'opère une propagation de fissure stable précédant la rupture de l'échantillon, à 100 mm.min^{-1} et 200 mm.min^{-1} , la rupture devient brutale, sans propagation stable de la fissure suivant l'atteinte de la force maximale. Il apparaît donc un changement du mode de rupture, plutôt ductile à basse vitesse et fragile à des vitesses supérieures. La courbure des échantillons rend la pré-fissuration des éprouvettes compliquée ; de plus, il n'est possible de mesurer cette

pré-fissure qu'après essai à l'aide d'un microscope optique. La longueur de la pré-fissure ainsi que quelques valeurs caractéristiques des essais présentés sont résumées dans le tableau 11.3.

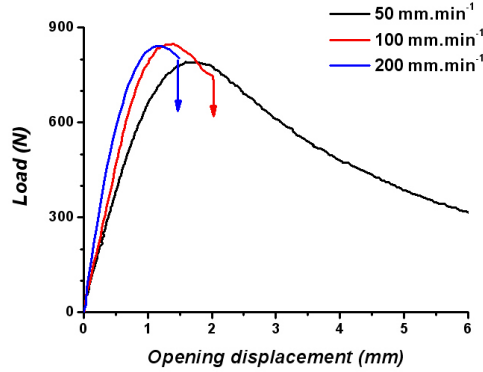


FIGURE 11.6 – Courbes charge-ouverture à 0°C pour 3 vitesses de déflexion.

TABLEAU 11.3 – Récapitulatif des essais de flexion présentés à 0°C.

Vitesse $mm.min^{-1}$	pré-fissure mm	a/W -	F_{max} N	$CTOD_{F_{max}}$ mm	$CTOD_{rupture}$ mm
50	2.8	0.3	793	1.59	5.96
100	2.592	0.26	847	1.27	2
200	2.24	0.24	842	1.13	1.48

Un essai de flexion 3 points à faible vitesse a été observé par caméra afin de s'intéresser à la propagation de la fissure lorsque celle-ci s'avère stable. Les instants de prise des photos sont répertoriés sur la courbe globale charge-ouverture présentée sur la figure 11.7.

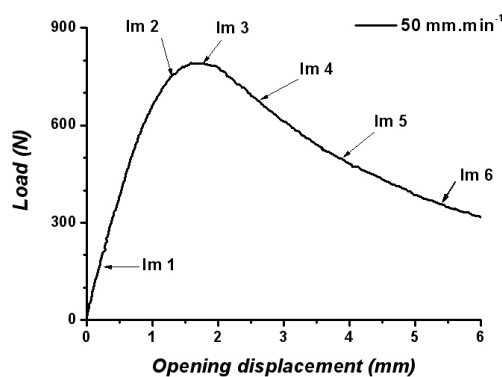


FIGURE 11.7 – Courbes charge-ouverture à 0°C et $50 mm.min^{-1}$.

On s'aperçoit que le blanchiment apparaît en pointe de fissure juste avant l'atteinte de la force maximale (Im 2 de la figure 11.8). L'atteinte de la force maximale coïncide avec l'apparition d'un émoussement important précédant le début de la propagation de la fissure. De plus, il est possible de constater, à travers les différents clichés, que le blanchiment est très localisé en pointe de fissure.

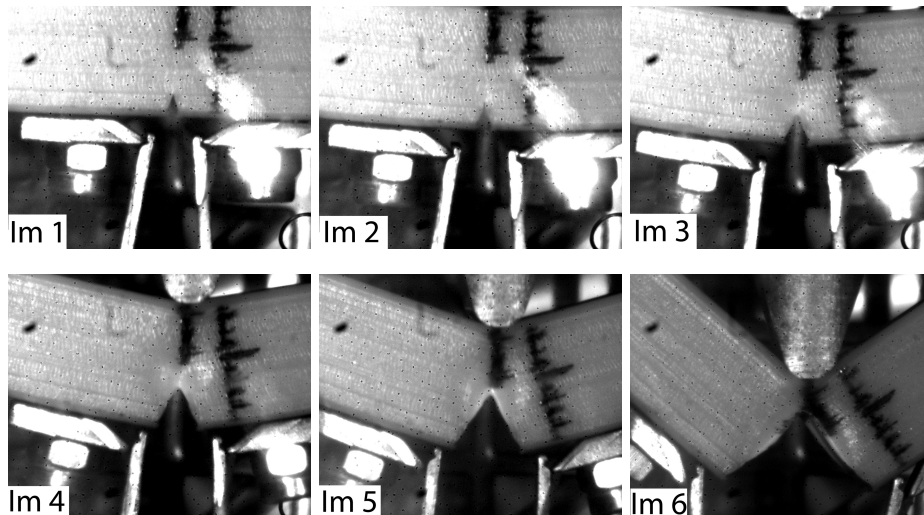
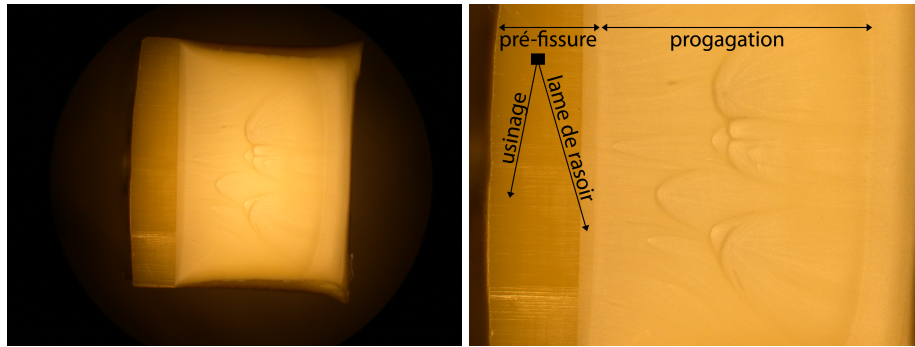
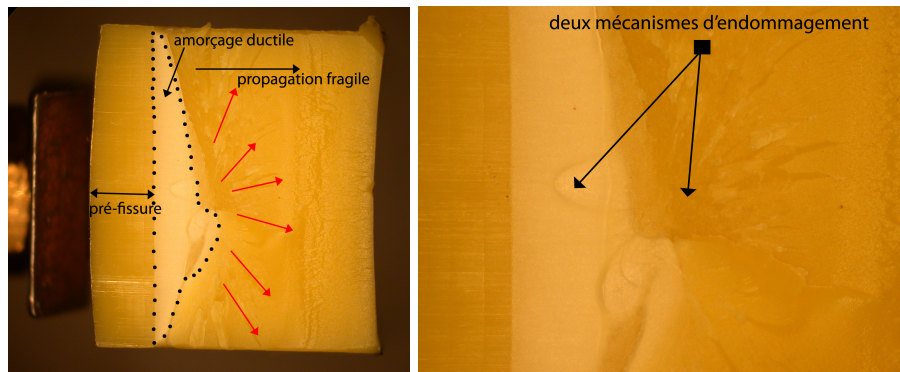


FIGURE 11.8 – Observations de l'ouverture et avancée d'une fissure, d'une éprouvette de flexion à 0°C et $50 \text{ mm}\cdot\text{min}^{-1}$.

11.2.3 Observations faciès de rupture

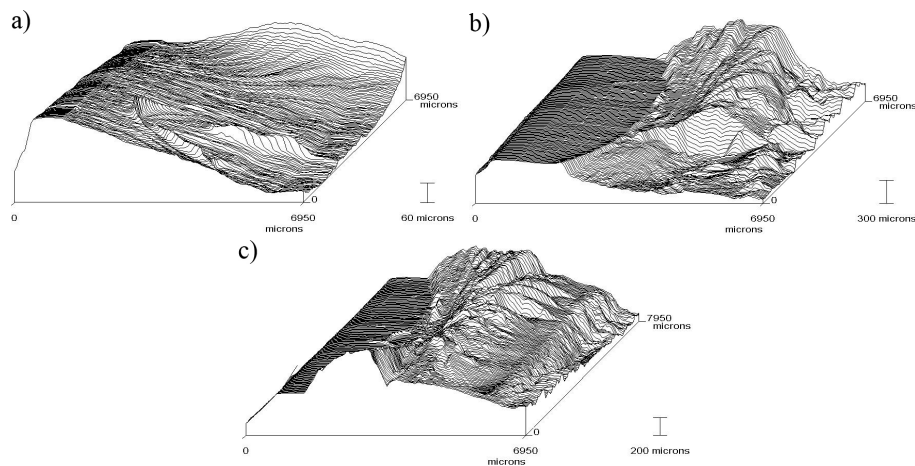
Les faciès de rupture pour chaque vitesse considérée sont observés au microscope optique. Les courbes globales révélant un mode de rupture différent selon la vitesse, l'observation des faciès de rupture devrait corroborer nos hypothèses. La figure 11.9 présente le faciès obtenu pour une vitesse faible de $50 \text{ mm}\cdot\text{min}^{-1}$, vitesse à laquelle a été révélée une propagation de fissure stable. La zone de propagation s'avère fortement blanchie, signe d'un endommagement par croissance de cavités et se distingue par la présence d'endommagements secondaires caractérisés par des traces paraboliques. Ces traces ont été décrites par Andrews (1968) et s'expliquent par la présence de cavités en front de fissure, dans un plan proche du plan de fracture. L'interception de ces cavités croissant de manière sphérique avec la fissure leur confère cette forme parabolique. D'ailleurs, Echalié (1989) constate que la densité de ces endommagements secondaires augmente avec la diminution de la température dans le cas du polyamide 11. A $200 \text{ mm}\cdot\text{min}^{-1}$, le faciès observé est à l'opposé de celui précédemment montré. Une zone blanchie est également présente mais fortement réduite dont l'aire avoisine $A_{\text{ductile}} = 15 \text{ mm}^2$, suivie par une zone non blanchie beaucoup plus importante ($A_{\text{fragile}} = 85 \text{ mm}^2$) présentant une surface très rugueuse coïncidant à la propagation de la fissure brutale. Dès lors, il s'avèrerait que la fissure s'amorce de manière ductile caractérisée par le blanchiment de l'échantillon et se propage ensuite de manière fragile.

Les trois faciès de rupture ont été étudiés par profilométrie afin de mettre en évidence les caractéristiques de la surface en fonction de la vitesse considérée. Les surfaces obtenues sont présentées sur la figure 11.11. On constate que l'augmentation de la vitesse entraîne la réduction de la zone où la surface est linéaire, compensée par l'apparition d'une zone rugueuse. L'observation des différents faciès de rupture met donc bien en évidence qu'une transition des mécanismes de rupture existe pour les essais présentés. Cependant quelles que soient les vitesses considérées où

FIGURE 11.9 – Faciès de rupture à 0°C et 50 mm.min⁻¹.FIGURE 11.10 – Faciès de rupture à 0°C et 200 mm.min⁻¹.

la rupture est brutale, une faible surface blanchie persiste, symbole d'un amorçage pouvant être considéré comme ductile.

Les observations tout comme les essais de profilométrie sur les échantillons permettent de mettre en évidence l'effet tunnel du front de fissure qui est un résultat courant. La longueur de la fissure en cœur est donc plus grande que celle visible en surface.

FIGURE 11.11 – Profilométrie des faciès de rupture à 0° : a) 50mm.s⁻¹ ; b) 100mm.s⁻¹ ; a) 200mm.s⁻¹.

11.3 MODÉLISATION DE LA RUPTURE

11.3.1 Introduction

La modélisation des essais de flexion 3 points sur des éprouvettes fissurées consiste en une manière de valider le modèle endommagement-comportement identifié à travers les essais de traction uniaxiale sur des éprouvettes à plus faible triaxialité c'est-à-dire les éprouvettes lisses et entaillées. Les simulations numériques sont dans un premier temps réalisées en 3 dimensions puis en 2 dimensions, ces derniers permettant non seulement de s'intéresser à la validité de l'hypothèse soit de déformations planes soit de contraintes planes mais également, en considérant des petites déformations de déterminer J_{Ic} . Des études de sensibilité au maillage ont été également entreprises mais ne sont pas présentées ici. En effet, seuls les résultats obtenus pour le maillage le plus pertinent le sont.

11.3.2 Calculs en 3 Dimensions

11.3.2.1 Maillage et conditions aux limites

A la différence des simulations numériques précédentes, la modélisation d'essais de flexion 3 points nécessite la discrétisation de l'éprouvette et des mors c'est-à-dire le marteau qui applique la charge ainsi que les appuis qui bloquent l'éprouvette. Un quart de l'éprouvette est discrétisé sur la base du maillage en 2 dimensions. Le passage en 3D augmente évidemment considérablement les nombres de nœuds et d'éléments pour atteindre 9675 nœuds et 7184 éléments de type *c3d8* et *c3d6* et le temps de calcul. Les éléments localisés dans le plan de propagation de la fissure possèdent la taille suivante : $t_1 = 50 \mu m$, $t_2 = 80 \mu m$ et $t_3 = 1250 \mu m$. Le maillage est présenté figure 11.12.

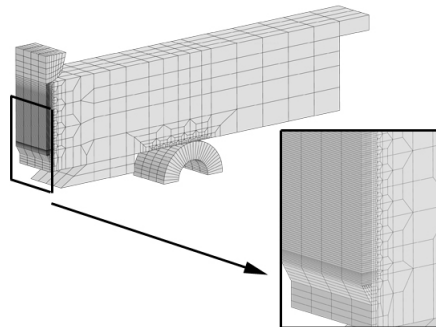


FIGURE 11.12 – Maillage de l'éprouvette fissurée en 3D.

11.3.2.2 Résultats

Le résultat numérique en 3D est observable sur la figure 11.13. Il apparaît que la montée en charge numérique concorde bien avec la courbe expérimentale et cela jusqu'à l'amorçage de la fissure. Cependant si ce premier point diffère notablement du résultat en déformations planes, la propagation stable de la fissure est toujours mal retranscrite. Numériquement la charge chute rapidement à ouverture constante ce qui n'est pas

le cas expérimentalement. Le paramètre q_2 semble être le paramètre clé de la propagation. Il s'avère que pour gérer l'évolution de l'endommagement lors des simulations sur éprouvettes NT , identifier les coefficients décrivant le paramètre q_2 s'avère relativement facile, lorsque cette étape s'appuie sur des observations microscopiques adaptées. Cependant cela devient nettement plus compliqué lorsqu'il s'agit de modéliser numériquement la propagation d'une fissure. D'une part, la description de q_2 par quatre coefficients implique la multiplication des simulations afin d'optimiser leurs valeurs. D'autre part, il s'avère que la propagation numérique de la fissure est extrêmement sensible aux valeurs des coefficients caractérisant q_2 . Enfin, s'ajoute le fait que les simulations en 3D sont couteuses en temps. Cet ensemble complique donc l'identification. La figure 11.13 inclut un second résultat de simulation numérique pour laquelle le paramètre q_2 a été modifié ; les valeurs utilisées sont répertoriées dans le tableau 11.4.

TABLEAU 11.4 – Coefficients des paramètres d'endommagement pour le PA11 à 0°C.

	q_1		q_2		
	M	m	p_t	v	
GTN	2	0.9	0.35	0.6	10
GTN (modified q_2)	2	0.85	0.3	0.925	10

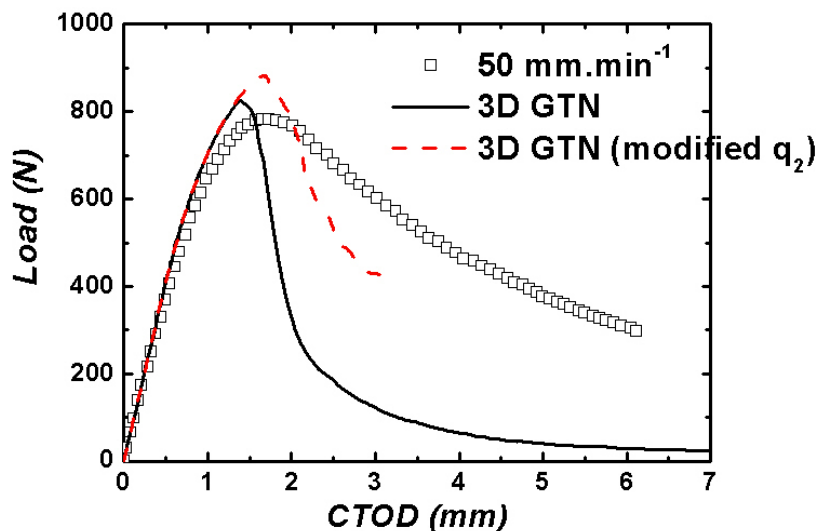


FIGURE 11.13 – Courbes CTOD-Charge expérimentale et numérique en 3D à 0°C et 50 mm.min⁻¹ avec le modèle de GTN.

11.3.2.3 Le modèle de Rousselier étendu

Initialement présenté au cours du chapitre 2 (section 2.2.3.1), le modèle de Rousselier (1987; 2001) est un modèle thermodynamique faisant suite aux travaux entrepris par Lemaître et Chaboche (1985) et consiste en la modification du potentiel d'écoulement de von Mises par l'introduction d'une variable scalaire f associée à la fraction volumique de vide. Le

modèle utilisé ici est l'extension du modèle de Rousselier proposé par Tanguy et Besson (2002) afin de prendre en compte la vitesse de déformation. Cette modification se caractérise par la définition d'une contrainte scalaire effective σ_* fonction de la porosité. Le modèle de Rousselier (1987) étendu par Tanguy et Besson (2002) s'écrit alors

$$\psi = \frac{\Sigma_{eq}}{(1-f)\sigma_*} + \frac{2}{3}f D_R \exp\left(\frac{q_R}{2} \frac{\Sigma_{kk}}{(1-f)\sigma_*}\right) - 1 \stackrel{def. \sigma_*}{=} 0 \quad (11.2)$$

avec D_R et q_R deux nouveaux paramètres.

Dès lors, un calcul est effectué en utilisant la version étendue du modèle auquel est appliqué la même loi d'écoulement que celle utilisée avec le modèle GTN. Le calcul est effectué en 3D sur le maillage présenté précédemment (figure 11.12). Les figures 11.14 et 11.15 présentent l'évolution de la force en fonction de l'ouverture de la fissure pour la simulation d'un essai à 0°C et respectivement 50 mm/min et 100 mm/min. Le résultat a été obtenu en fixant les paramètres d'endommagement de la sorte : $D = 1.5$, $q_R = 0.95$ et $f_c = 0.5$. L'endommagement n'est donc avec ce modèle pas une fonction de la plus grande déformation plastique principale mais simplement égale à une constante.

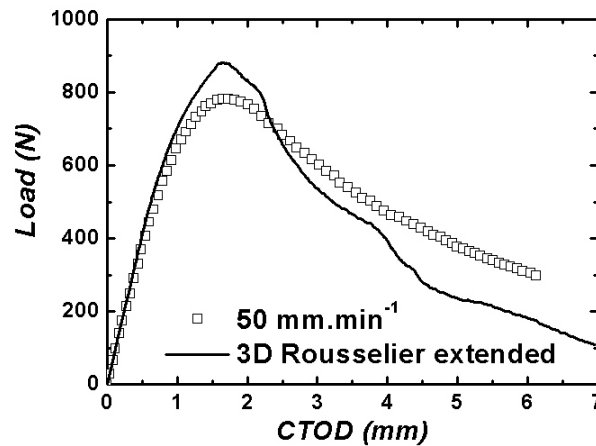


FIGURE 11.14 – Courbes CTOD-Charge expérimentale et numérique en 3D à 0°C et 50 mm.min⁻¹ avec le modèle de Rousselier étendu par Tanguy et Besson (2002).

11.3.3 Calculs en 2 Dimensions avec le modèle GTN

11.3.3.1 Maillage et conditions aux limites

Le maillage consiste en la moitié de l'éprouvette pour une raison de symétrie évidente et est constitué de 1935 nœuds et 1796 éléments de type $c2d4$ et $c2d3$. La taille des éléments en pointe de fissure est la même que ceux utilisés au niveau de la section minimale lors des simulations numériques sur éprouvettes entaillées soit $t_1 = 50 \mu m$ et $t_2 = 80 \mu m$. La figure 11.16 présente ainsi le maillage obtenu constitué de la moitié de l'éprouvette, de la moitié du marteau et d'un appui. A cela s'ajoute un élément dit "ressort" dont le but est exclusivement d'éviter que l'éprouvette ait un

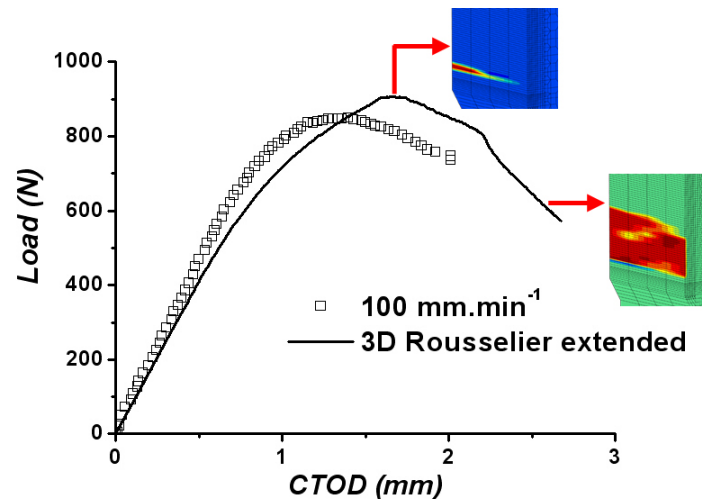


FIGURE 11.15 – Courbes CTOD-Charge expérimentale et numérique en 3D à 0°C et 100 mm.min⁻¹ avec le modèle de Rousselier étendu par Tanguy et Besson (2002).

mouvement de solide rigide. Les nœuds le définissant ont les déplacements dans les directions 1 et 2 bloqués ; son comportement est purement élastique caractérisé par un module de Young très faible $E_{spring} = 1 \text{ MPa}$ et un coefficient de Poisson égal à 0.3.

Les déplacements des nœuds définissant l'appui sont bloqués dans les deux directions. Concernant le marteau, seul le déplacement dans le sens 1 est autorisé. La modélisation du contact qu'il soit entre le marteau et l'éprouvette ou l'appui et l'éprouvette peut s'avérer problématique et générer des divergences de calculs. Une solution pour s'affranchir d'une telle difficulté consiste à éviter le contact des nœuds et ainsi éviter l'interpénétration. Enfin, il est nécessaire de mailler également la lamelle permettant de soutenir le capteur qui mesure l'ouverture de la fissure. L'appui, le marteau et la lamelle bénéficient d'un comportement élastique. Le marteau étant en acier, l'appui en aluminium, la littérature attribue un coefficient de frottement PA11-acier de 0.5, valeur utilisée pour les simulations numériques.

Remarque 11.2 *Lafarge (2004) s'est intéressé à l'influence du coefficient du frottement sur les résultats en réalisant des études de sensibilité. Lafarge (2004) met en évidence que l'augmentation du coefficient de frottement tend à accroître la rigidité du matériau et engendre non seulement une pente visco-élastique plus élevée mais également une valeur de la force maximale plus grande.*

11.3.3.2 Résultats

Les calculs en 2D nécessitent au préalable le choix de l'hypothèse soit de déformations planes (DP) soit de contraintes planes (CP). Dès lors, ceux-ci sont effectués dans les deux cas et les résultats présentés sur la figure 11.17 en terme d'évolution de la force en fonction de l'ouverture de fissure. La croissance des cavités est influencée de manière significative par le taux de triaxialité des contraintes (chapitre 9), ainsi une faible évo-

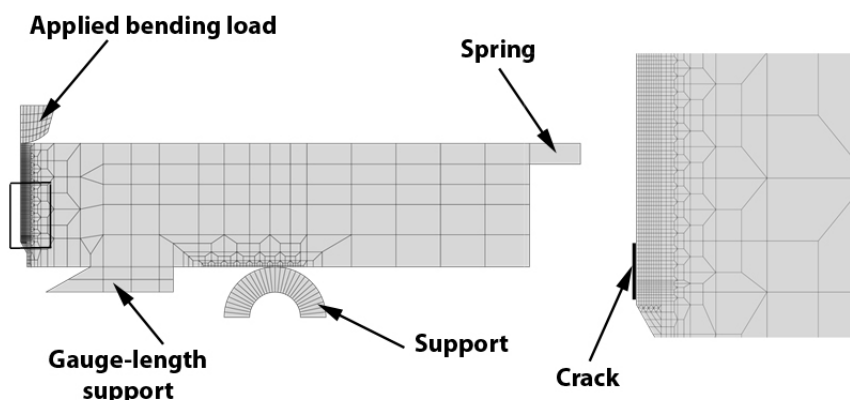


FIGURE 11.16 – Maillage de l'éprouvette fissurée en 2D.

lution de l'endommagement se produit dans des conditions de contraintes planes (Sun *et al.* 1992).

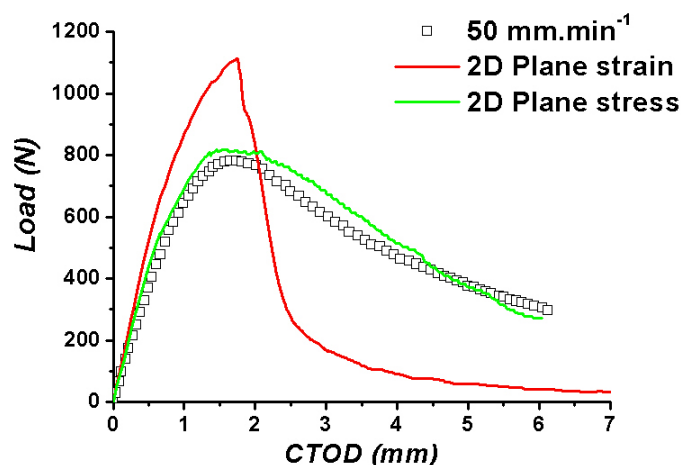


FIGURE 11.17 – Courbes CTOD-Charge expérimentale et numériques en 2D à 0°C et 50 mm.min⁻¹.

Les critères de rupture f_c et p_c définis précédemment correspondent ici aux valeurs limites pour casser les points de Gauss d'un élément et engendrer la propagation de la fissure. Les calculs en contraintes planes minimisent considérablement la valeur de la fraction volumique de vides ; la rupture des éléments et donc la propagation de fissure s'obtiennent par la rupture des fibrilles qui atteignent la valeur critique p_c déterminée à partir des essais sur éprouvettes NT. En déformations planes, le processus de rupture est différent et la propagation de la fissure n'est plus due à un critère en élongation mais s'explique par la coalescence des cavités. Un bémol existe tout de même et concerne le premier élément situé en amont de la fissure. En effet, en déformations planes, la rupture des points de Gauss de cet élément particulier ne s'effectue pas par le franchissement du seuil de porosité critique mais par l'atteinte de la déformation plastique principale maximale critique. Ce point souligne le fait que la propagation de la fissure s'obtient par l'intermédiaire des deux critères qui entrent

en compétition en cours de déformation. En déformations planes, non seulement nous surestimons la force maximale mais il apparaît également que, la propagation de la fissure est mal prise en compte, cela pouvant résulter d'une mauvaise identification des paramètres d'endommagement.

11.3.4 Approche globale : détermination de la ténacité J_{IC}

Au cours du paragraphe 2.3.3.1 intervenant dans le chapitre 2, nous avons présenté l'intégrale de contour de Rice-Cherapanov. Il a également été écrit que, pour certains types de géométrie, l'intégrale J peut être déterminée expérimentalement, à partir de l'aire sous la courbe charge-ouverture (équation 2.78). Sous couvert de l'hypothèse d'un front de fissure droit (absence d'un effet tunnel), cette formule faisant intervenir l'épaisseur de l'éprouvette peut être appliquée à un calcul en deux dimensions.

De nos jours, J se détermine également numériquement, la majorité des codes EF proposant son calcul et est obtenue par une intégration directe du contour en appliquant la formule suivante :

$$J = \int_{\Gamma} \left[W dy - \sigma_{ij} n_j \frac{\partial u}{\partial x} \right] ds \quad (11.3)$$

avec W l'énergie par unité de volume, Γ le contour de l'intégrale qui englobe la pointe de fissure, ds l'incrément de contour, $\sigma_{ij} n_j$ le vecteur de traction appliqué à ds , \underline{u} le vecteur déplacement appartenant à ds et (x, y, z) le système de coordonnées.

Dans le code EF de notre étude (Besson et Foerch 1997), l'intégrale de contour, présentée équation 11.3 se calcule en utilisant l'extension de la fissure virtuelle développée par de Lorenzi (1985). Sa détermination se déroule en considérant un calcul en deux dimensions sous l'hypothèse de petites déformations par l'intermédiaire d'un post-traitement. La détermination de J par MEF possède l'avantage de pouvoir rendre compte simultanément de l'approche locale comme par exemple, les mécanismes d'amorçage avec f_c . Cependant, le calcul de J implique une bonne concordance des courbes globales force-ouverture expérimentale et numérique.

Ce paragraphe s'intéresse plus particulièrement à la ténacité J_{IC} qui consiste en la valeur de J à l'amorçage. Numériquement, il s'agit de la valeur de J à l'instant de la rupture des premiers éléments.

La figure 11.17 dévoilait les courbes CTOD-charge lors des simulations numériques en 2D avec les hypothèses de déformations planes et contraintes planes. Il apparaît qu'en raison d'une surestimation du taux de triaxialité des contraintes engendrant un endommagement trop important, la charge maximale, obtenue avec l'hypothèse des DP, est grande en comparaison à $(F_{max})_{exp}$. Etant donné que $J_{IC} \propto \mathcal{A}_{(F-\delta)}$, J_{IC}^{DP} surestime la valeur de l'intégrale. Dès lors, cela signifierait simplement qu'une application de l'approche globale, sous l'hypothèse des déformations planes, serait moins pertinente. La simulation numérique en CP offrant une meilleure concordance, il semble approprié de travailler avec l'hypothèse des contraintes planes et la ténacité à l'amorçage J_{IC}^{CP} .

La figure 11.18 présente l'évolution de J^{CP} en fonction du temps jusqu'à l'amorçage. Les valeurs de J , calculées pendant la propagation de la fissure, sont des valeurs erronées, donc non tracées, car nous n'actualisons ni la pointe de la fissure, ni les contours. Le calcul en 2D, avec le modèle GTN, donne une valeur J_{IC}^{CP} de l'ordre de 12 kJ.m^{-2} . Il s'avère que la rupture du premier élément précède légèrement l'atteinte de F_{max} . Ainsi, nous obtenons une coïncidence entre un critère local en porosité critique et un critère global en J_{IC} .

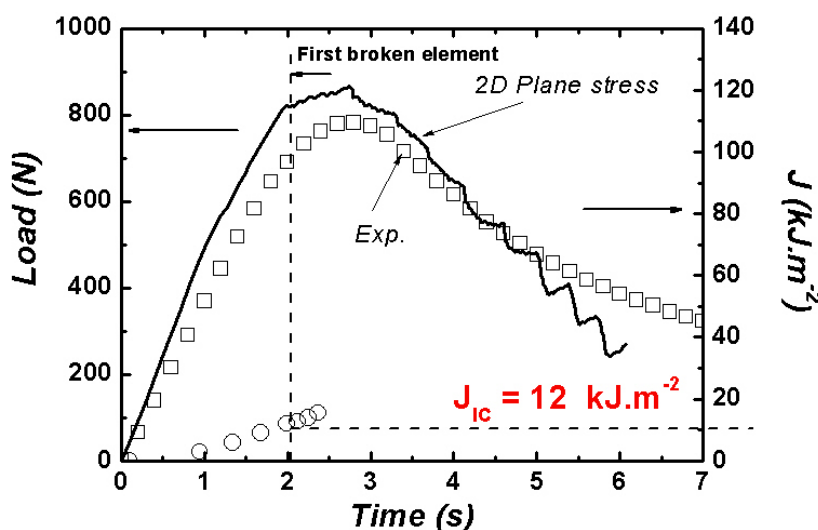


FIGURE 11.18 – Evolution de la charge et de l'intégrale de contour J après simulation numérique en contraintes planes avec le modèle GTN d'un essai de flexion 3 points à 0°C et 50 mm.s^{-1} .

11.3.5 Modélisation de la fissuration fragile

Au cours du chapitre 2, un paragraphe a été consacré à la modélisation de la craquelure dans les polymères amorphes vitreux par le modèle de la zone cohésive en prenant principalement comme référence les travaux de Estevez *et al.* (2000) et Tjssens *et al.* (2000). Needleman (1987) a proposé un modèle de zone cohésive afin de représenter la réponse mécanique d'une craquelure. Ce modèle étant implanté dans ZéBuLoN, on décide de le coupler au modèle GTN afin de modéliser numériquement la rupture à une vitesse plus importante (100 mm.min^{-1}), vitesse pour laquelle l'observation du faciès de rupture montrait la réduction de la part ductile. Comme le présente la figure 11.19, le modèle de la zone cohésive se caractérise par deux paramètres que sont la contrainte nominale à laquelle s'amorce la craquelure et l'ouverture critique de la craquelure engendrant la formation d'une fissure.

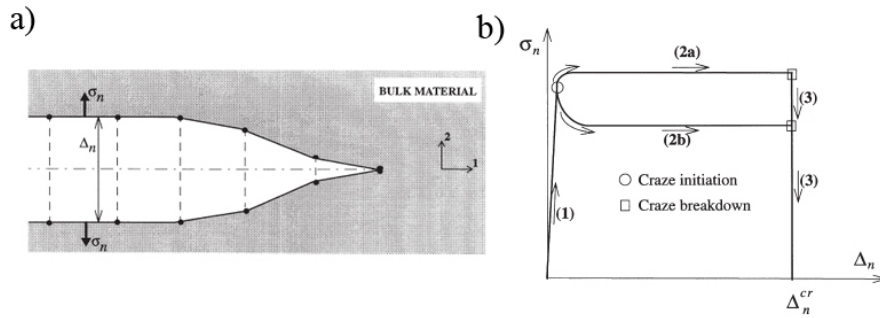


FIGURE 11.19 – a) description d'un craze par la CZM (Estevez et al. 2000, Tijssens et al. 2000); b) Représentation schématique de la loi d'ouverture en traction des surfaces cohésives (Estevez et al. 2000).

Dans la simulation visible figure 11.20, ces paramètres ont été fixés comme suit : $\sigma_n = 75 \text{ MPa}$ et $\Delta_n^{cr} = 0.6 \text{ mm}$.

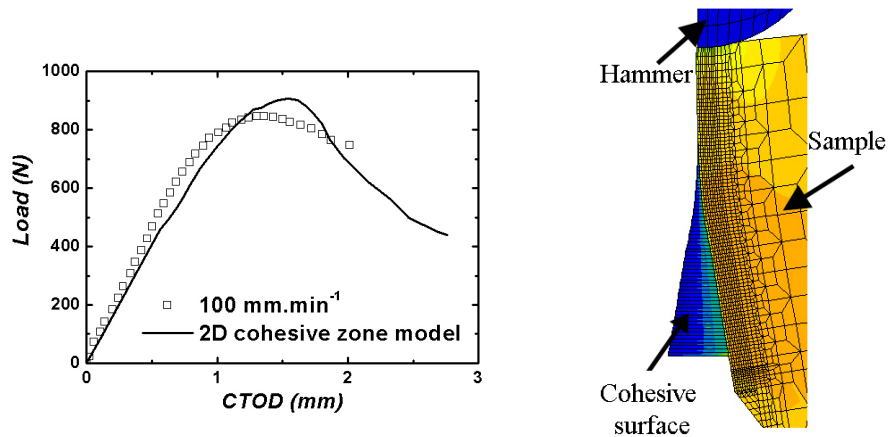


FIGURE 11.20 – Courbes CTOD-Charge expérimentale et numérique à 0°C et 100 mm.min^{-1} avec un modèle de zone cohésive.

Les observations des faciès de rupture des échantillons testés pour des vitesses de déflexion de 100 et 200 mm.min^{-1} avaient mis en évidence une zone blanchie correspondant à un amorçage ductile lié à la coalescence des cavités. Cependant le couplage CZM-GTN, tel qu'il est utilisé ici, ne permet pas de rendre compte de cette forme d'amorçage, la zone cohésive prenant le pas dès le début de la simulation sur l'endommagement par croissance de cavités proposé par le modèle GTN. En fin d'essai, la porosité obtenue s'avère très proche de la porosité initiale, preuve qu'aucun endommagement par croissance de cavités n'a été permis.

Nous avons montré que la simulation en deux dimensions sous l'hypothèse des déformations planes offrait des résultats moyens en terme de force maximale pour une vitesse de 50 mm.min^{-1} . Dès lors, il n'y a aucune raison pour que ce phénomène ne se répète pas pour une vitesse plus élevée. Corriger ce point serait une première étape.

Définir une surface cohésive se caractérise par le doublement des nœuds appartenant au plan de propagation de la fissure en leur astreignant un déplacement opposé (afin d'obtenir l'ouverture de la craquelure). Il serait éventuellement possible d'obtenir l'amorçage ductile suivi d'une propagation ductile avec accélération de la vitesse de propagation jusqu'à

la transition ductile-fragile en considérant un ligament cohésif, non pas sur l'ensemble du ligament, mais uniquement sur la longueur du ligament équivalente à la zone fragile observée. Ainsi, si les paramètres sont bien identifiés, le matériau devrait s'endommager en pointe de fissure par croissance de cavités et les éléments se casser par coalescence de cavités jusqu'à l'atteinte de la surface cohésive qui engendrerait une rupture rapide.

11.4 CONCLUSIONS

Ce chapitre a permis de mettre en évidence deux critères de rupture du polyamide 11, critères qui ne sont pas sans nous rappeler ceux énoncés par Lafarge (2004) dans le cas du PVDF. Le premier est un critère de rupture par la coalescence de cavités, caractérisé numériquement par l'application d'une porosité critique noté f_c . Le second est un critère de rupture par élongation des fibrilles traduit numériquement par l'existence d'une déformation plastique principale maximale critique p_c . A ces critères découlant d'une approche locale, s'ajoute un critère d'amorçage J_{IC} issu de l'approche globale. Il apparaît que le mode de rupture dépend du taux de triaxialité des contraintes. En effet, une faible triaxialité, n'encourageant pas la croissance des cavités (chapitre 9), privilégie une rupture par élongation maximale. La triaxialité augmentant, un basculement du taux de triaxialité est observé favorisant cette fois la rupture par porosité critique. La transition d'un critère à un autre semble se produire lorsqu'on considère une géométrie de type $NT_{0.8}$ pour une vitesse de déplacement imposée de 0.05 mm.s^{-1} à 0°C où expérimentalement, la rupture se produit soit par porosité critique soit par élongation critique. Ces observations et constatations ont permis de définir plus proprement le paramètre q_1 qui, afin de rendre compte des deux critères de rupture, prend la forme suivante :

$$q_1 = \begin{cases} 2 & \text{si } p_1 < 1.1 \\ 2 \cdot \exp(10(p_1 - 1.1)) & \text{si } p_1 \geq 1.1 \end{cases} \quad (11.4)$$

Remarque 11.3 *L'expression, ainsi proposée de q_1 , consiste en un artifice numérique qui nous permet de considérer une rupture à l'aide du critère en p_c . Les éléments ne pouvant être considérés comme cassés seulement lorsque la valeur de f aux points de Gauss franchit une porosité critique, cette expression nous permet d'obtenir indirectement une rupture des éléments par p_c . Si p_1 dépasse la valeur p_c , le paramètre q_1 augmente exponentiellement. Ce faisant, comme $q_1 = 1/f_c$, la porosité des éléments considérés chutent et donc, ceux-ci casseront pour des porosités plus faibles.*

Une solution plus propre serait d'utiliser la CZM avec comme le facteur déclencheur, l'atteinte de p_c .

L'identification ainsi faite de q_1 permet dès lors de s'intéresser à la modélisation numérique d'essais de flexion 3 points sur des éprouvettes fissurées. Les résultats obtenus en 3D s'avèrent intéressants et très proche de la réalité jusqu'à l'amorçage ; seule la propagation de fissure avec le modèle GTN fait défaut. En effet, les résultats sont très corrects lorsqu'on utilise un modèle de Rousselier étendu pour prendre en compte les effets

visqueux. Dès lors, ce résultat confirme nos a priori concernant l'implication du paramètre q_2 sur l'instabilité de la propagation de fissure numérique dans nos modélisations à l'aide du modèle GTN. L'implication de quatre coefficients dans la définition du paramètre q_2 se traduit en une complexité de l'identification qui requiert précision et ainsi engendre la nécessité de multiplier les simulations numériques. Une autre possibilité, concernant la difficulté à rendre compte de la propagation de la fissure, pourrait être l'effet de la taille de mailles, problème récurrent lors de l'utilisation de loi adoucissante.

Il aurait certainement été très enrichissant d'effectuer des simulations numériques d'essais de flexion 3 points sur les matériaux vieillis ("aged P40" et "aged P20 EPR") et également de déterminer à l'aide du code aux éléments finis des valeurs de J_{IC} afin de pouvoir les comparer entre les différents matériaux. Cependant, l'absence de données expérimentales d'une part, et la difficulté d'identifier de manière satisfaisante le paramètre q_2 rendent ces travaux compliqués. Trop d'informations manquent pour nous permettre de caractériser les coefficients intervenant dans q_2 . Ceux-ci sont, pour l'instant, corrects lorsque nous nous attachons à travailler sur des éprouvettes lisses ou entaillées à faible taux de triaxialité des contraintes. Cependant, les possibilités d'identification sont vastes et rien ne peut nous amener à penser que l'identification faite est révélatrice du comportement endommageable à des triaxialités plus importantes et donc, a fortiori, lorsqu'on s'intéresse à des éprouvettes fissurées. Afin de pouvoir comparer les ténacités à l'amorçage J_{IC} des différents matériaux, il serait nécessaire d'enrichir la base de données expérimentale, en appliquant la logique des essais effectués sur le PA11, c'est-à-dire en augmentant par palier le taux de triaxialité des contraintes et en associant, aux résultats mécaniques, des observations microscopiques pour quantifier l'évolution de l'endommagement. Cependant, les simulations numériques ont tout de même permis de définir des critères locaux de rupture en traction uni-axiale sur éprouvette NT_4 à 0°C : rupture du "aged P40" par porosité critique et rupture du "aged P20 EPR" par elongation critique.

Cinquième partie

Mise en valeur et prise en compte de l'auto-échauffement de la matrice

MISE EN ÉVIDENCE DE L'AUTO-ÉCHAUFFEMENT

12

SOMMAIRE

12.1 INTRODUCTION	261
12.2 AUTO-ÉCHAUFFEMENT EN TRACTION UNIAXIALE	261
12.2.1 Eprouvettes lisses	261
12.2.2 Eprouvettes entaillées NT_4	262
12.3 AUTO-ÉCHAUFFEMENT EN POINTE DE FISSURE	266
12.3.1 Introduction	266
12.3.2 Essais avec caméra thermique	266
12.3.3 Conclusions	268
12.4 CONCLUSIONS	268

CE chapitre concerne la mise en évidence expérimentale de la présence d'un auto-échauffement local en cours de déformation. La majorité des essais a été effectuée pour une température de 0°C soit en dessous de la zone de températures de transition vitreuse. La T_g des matériaux considérés étant de l'ordre de 50°C pour le PA11 et de l'ordre de 20°C pour les matériaux vieillis, il est très probable que la température dans une zone fortement contrainte comme en pointe de fissure franchisse le seuil de T_g entraînant une modification locale du comportement du matériau. Au cours de ce chapitre, les essais majeurs présentés précédemment sont ainsi suivis par caméra thermique afin d'identifier la valeur de l'auto-échauffement selon les géométries et vitesses considérées.

12.1 INTRODUCTION

Une des possibilités du code éléments finis ZéBuLoN est de pouvoir réaliser des calculs couplés mécanique et thermique en particulier pour des calculs de propagation de fissure où il a été montré que la température en pointe de fissure peut être très importante (jusqu'à 100°C pour les métaux (Tanguy *et al.* 2005)). Cette augmentation de la température également nommée auto-échauffement peut causer de grandes différences dans le comportement du matériau en particulier quand elle franchit le seuil de la transition vitreuse. La valeur de la T_g du PA11 ayant été mesurée à 50°C et réalisant nos essais à 0°C, une augmentation de 50°C en pointe de fissure suffirait à basculer d'un état à un autre.

Leevers (1995a;b; 1996) propose un modèle tenant compte de l'existence de craquelures en front de fissures obtenu suite à des essais d'impact dynamique. Ce modèle repose sur l'hypothèse de fusion des fibrilles qui forment la craquelure, due à l'échauffement adiabatique. Cet échauffement conduit à une décohésion des lèvres de la craquelure et ainsi à la propagation du front de la fissure (figure 12.1).

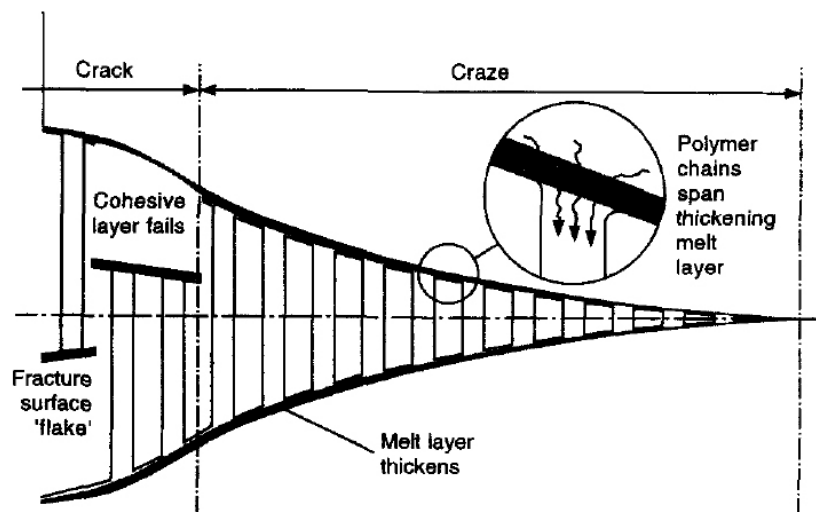


FIGURE 12.1 – Représentation de la pointe d'une craquelure subissant un mécanisme de décohésion thermique (Leevers 1995b).

12.2 AUTO-ÉCHAUFFEMENT EN TRACTION UNIAXIALE

12.2.1 Eprouvettes lisses

Des essais de traction uniaxiale suivis par caméra thermique ont été effectués pour trois vitesses de déformation : 0.1 s^{-1} , 0.01 s^{-1} et 0.001 s^{-1} . Ces essais permettent de mettre en évidence le fait qu'une augmentation locale de la température apparaît dès la striction de l'éprouvette. Une fois l'éprouvette strictionnée, la température se stabilise au cours de la propagation de la striction. Puis, peu avant la rupture finale, une nouvelle augmentation très localisée se produit à l'endroit où l'éprouvette casse.

La figure 12.2 présente une courbe d'évolution de la contrainte nominale en fonction du déplacement LVDT. Deux images de l'auto-échauffement local observé avant et après striction sont visibles figure 12.3. Au cours de la propagation de la striction, l'auto-échauffement engendre une température locale de 15 – 20°C. Les résultats montrent que juste avant la rupture, pendant un très court instant, la température observée peut atteindre 70°C.

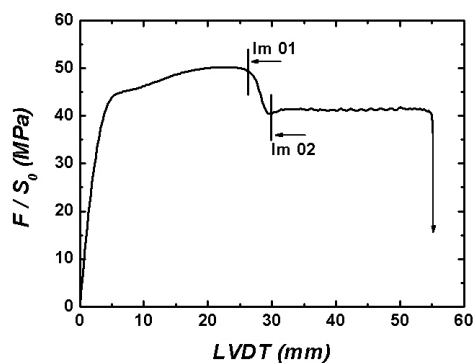


FIGURE 12.2 – Evolution de la contrainte nominale en fonction du déplacement LVDT à 0°C et 0.001 s^{-1} pour une éprouvette lisse.

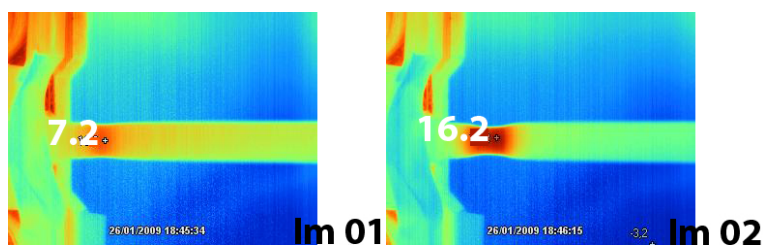


FIGURE 12.3 – Observations de l'auto-échauffement au niveau de la striction d'une éprouvette lisse à 0°C et 0.001 s^{-1} .

12.2.2 Eprouvtes entaillées NT_4

12.2.2.1 PA11

Des essais équivalents aux essais présentés lors du chapitre 7 sont effectués avec cette fois un suivi par caméra thermique. Si auto-échauffement il y a, celui-ci doit être localisé dans la zone la plus contrainte, c'est-à-dire au niveau de l'entaille. Une seule géométrie est testée, il s'agit de la géométrie NT_4 . Par l'intermédiaire de la caméra, il est possible d'obtenir un suivi de la température en cours de déformation. La figure 12.4 présente l'évolution de la température maximale en fonction du temps; les évolutions de la contrainte nominale et de la réduction diamétrale sont également reportées sur la figure. Un auto-échauffement significatif du matériau apparaît dès que le ré-entaillage de l'éprouvette démarre. A partir de ce moment, l'auto-échauffement augmente de manière quasi-linéaire : dans un premier temps, avec une pente assez importante jusqu'à la fin de la striction, puis, avec une pente adoucie, correspondant à la propagation de la striction. La température est uniforme dans le ligament jusqu'à l'instant précédent la rupture. En

effet, juste avant la rupture de l'échantillon, apparaît brusquement un saut de température (ici de 5 – 6°C), indiquant où l'échantillon va rompre.

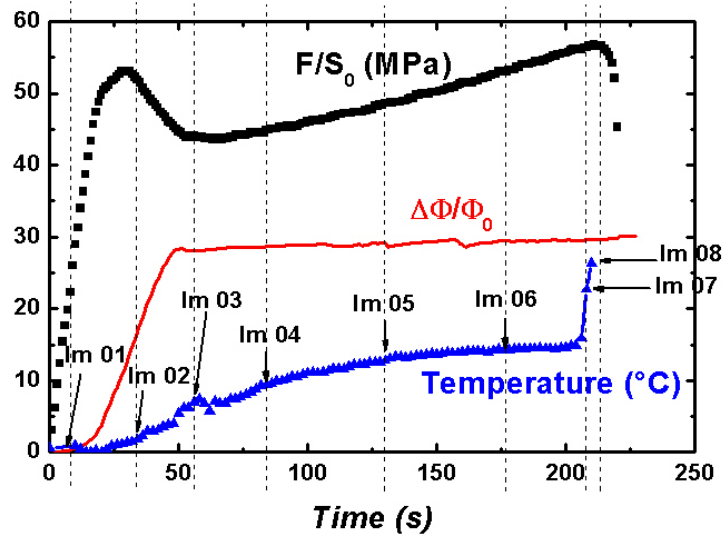


FIGURE 12.4 – Evolution de la contrainte, de la réduction diamétrale et de la température maximale en fonction du temps pour une éprouvette NT_4 de PA11 à 0°C et 0.05 mm.s^{-1} .

La figure 12.5 consiste en une succession de clichés à des moments "critiques" tels que le ré-entaillage de l'éprouvette, la propagation de la striction ou encore l'instant précédant la rupture dans le cas d'un essai de traction à vitesse de déplacement faible car égale à 0.05 mm.s^{-1} à 0°C .

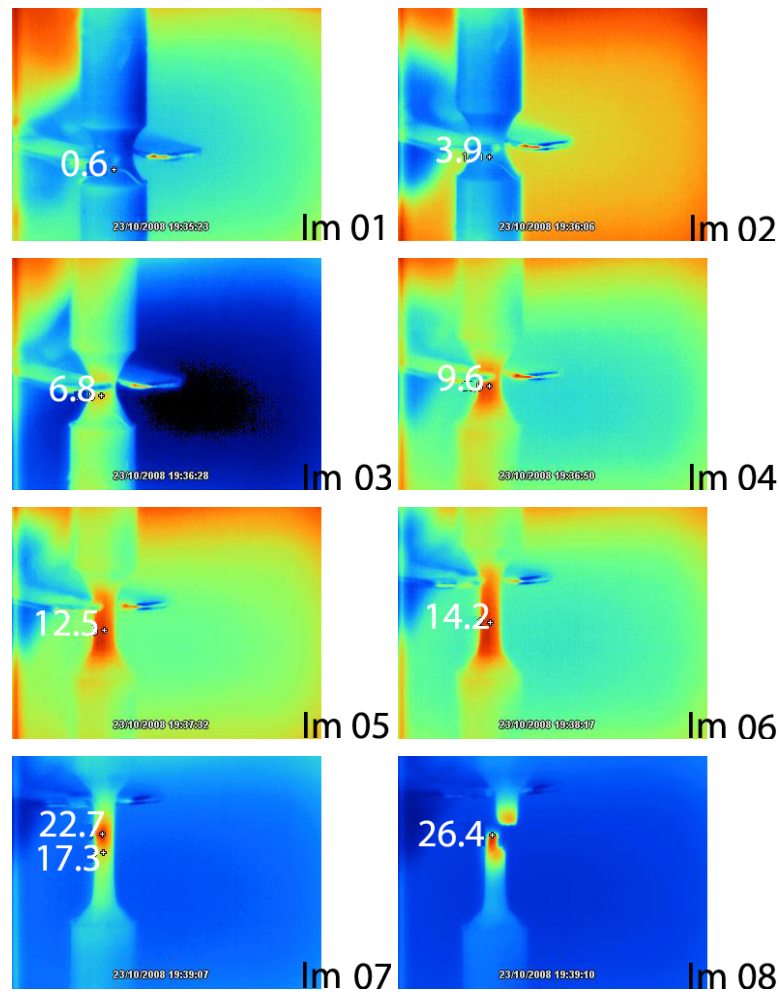


FIGURE 12.5 – Observations de l'auto-échauffement au niveau de la striction pour une éprouvette NT_4 de PA11 à 0°C et $0.05\text{ mm}\cdot\text{s}^{-1}$.

Lorsque la vitesse de déplacement est plus élevée, les résultats sont encore plus éloquentes. La figure 12.6 présente les mesures obtenues à une vitesse de traverse de $3\text{ mm}\cdot\text{s}^{-1}$. On constate que le température atteint 47°C dans presque tout le ligament, c'est-à-dire que le seuil de T_g est quasiment atteint. L'augmentation de la température est très localisée puisqu'aux bords du ligament, celle-ci n'atteint que 7°C .

Afin de s'assurer du bon sens de ces mesures, un calcul analytique simple est effectué. Il s'agit de déterminer l'énergie mécanique dissipée, soit l'aire sous la courbe contrainte-déformation obtenue expérimentalement pondérée par le coefficient β de transformation d'énergie mécanique en chaleur, et de la comparer au terme $\rho C_p \Delta T$. La meilleure concordance des résultats est obtenue pour $\beta = 0.9$.

12.2.2.2 Aged P20 EPR et Aged P20 NBR

Il a été dit plusieurs fois que la zone de températures de transition vitreuse des polyamides 11 renforcés est inférieure à celle du PA11 et avoisine les 20°C . Dès lors, le franchissement de la T_g engendré par une augmentation locale de la température s'avère encore plus probable que pour le PA11. Deux essais équivalents sur des éprouvettes NT_4 sont ainsi entrepris ; les résultats consistant en l'évolution de la contrainte et de la

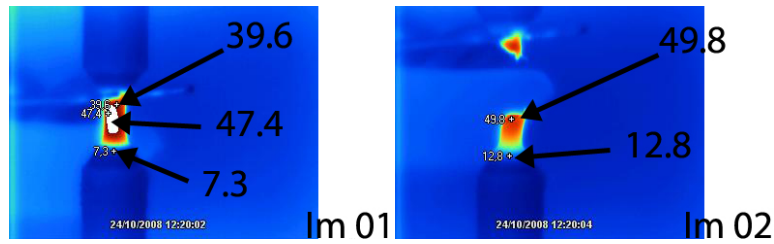


FIGURE 12.6 – Observations de l'auto-échauffement au niveau de la striction pour une éprouvette NT_4 de PA11 à 0°C et $3\text{ mm}\cdot\text{s}^{-1}$ juste avant la rupture (Im 01) et juste après (Im 02).

température en fonction du temps sont présentés figure 12.7 dans le cas du "aged P20 EPR" et figure 12.8 dans le cas du "aged P20 NBR". Les courbes d'évolution de la température en fonction du temps sont similaires pour les deux matériaux renforcés et ressemblent d'ailleurs à celles obtenues pour le PA11. Il apparaît que la température augmente linéairement en cours de déformation et atteint la valeur de la T_g en fin d'essai.

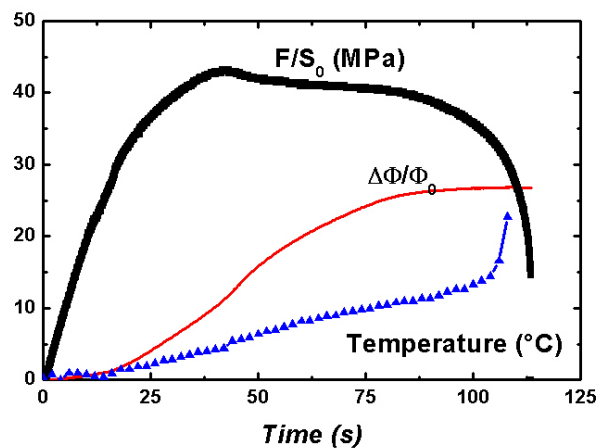


FIGURE 12.7 – Evolution de la contrainte, de la réduction diamétrale et de la température maximale en fonction du temps pour une éprouvette NT_4 de "Aged P20 EPR" à 0°C et $0.05\text{ mm}\cdot\text{s}^{-1}$.

Remarque 12.1 Des mesures d'émissivité ont été effectuées afin de s'assurer que l'endommagement du matériau ne l'altérerait pas. Ainsi, à température ambiante, le matériau est observé à l'aide de la caméra thermique. Pour chaque matériau considéré, une zone endommagée et une zone non endommagée ont été observées et les températures correspondantes relevées. Dès lors, il n'apparaît qu'une faible différence de l'ordre de $0.3 - 0.5^\circ\text{C}$ qui peut être considérée comme négligeable. Cependant, ces mesures n'ont pas été effectuées sur le matériau sous traction, ce qui laisse planer un doute.

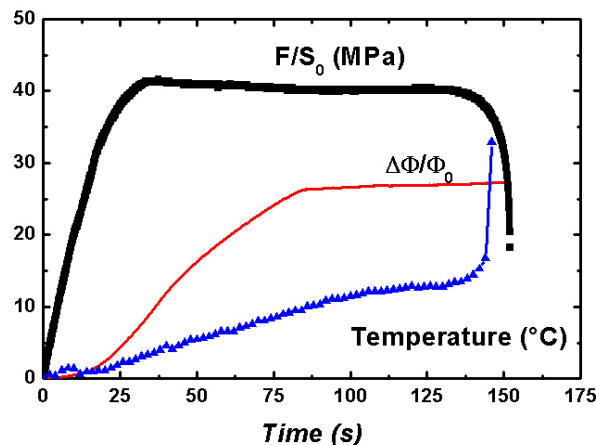


FIGURE 12.8 – Evolution de la contrainte, de la réduction diamétrale et de la température maximale en fonction du temps pour une éprouvette NT_4 de "Aged P20 NBR" à 0°C et $0.05\text{ mm}\cdot\text{s}^{-1}$.

12.3 AUTO-ÉCHAUFFEMENT EN POINTE DE FISSURE

12.3.1 Introduction

Des tentatives de mesure de l'auto-échauffement en pointe de fissure ont été effectuées à l'aide de thermocouples. En effet, la caméra thermique ne permettant d'obtenir que des informations surfaciques, l'utilisation de thermocouples permet de compléter ces informations en atteignant l'augmentation de température en cœur. Cependant, ces tentatives n'ont été guère fructueuses, ne permettant de constater une élévation de la température que de quelques degrés. Ces résultats sont probablement dus à la taille du thermocouple utilisé (très grand par rapport à la zone soumise à l'auto-échauffement) ou encore la difficulté d'atteindre le sommet de fissure. Les résultats obtenus par cette méthode ne sont donc pas présentés ici ; seuls ceux obtenus par caméra thermique le sont.

12.3.2 Essais avec caméra thermique

12.3.2.1 Protocole expérimental

Le protocole expérimental est, en tout point, le même que celui utilisé lors des essais de flexion 3 points présentés au cours du chapitre 11. La caméra thermique empêche la fermeture de l'enceinte pendant l'essai. Ainsi, l'enceinte reste ouverte, mais continue d'être régulée à 0°C . Enfin, la caméra permet de déterminer l'auto-échauffement en pointe de fissure, mais exclusivement en surface. Or, il est trivial que l'auto-échauffement du matériau est supérieur en cœur d'échantillon. L'auto-échauffement mesuré est donc une limite inférieure à l'auto-échauffement réel maximal.

12.3.2.2 Résultats

Deux vitesses de déflexion ont été considérées : $50\text{ mm}\cdot\text{min}^{-1}$ et $100\text{ mm}\cdot\text{min}^{-1}$. Quelques clichés obtenus par caméra thermiques sont pré-

sentés sur les figures 12.10 pour une vitesse de 50 mm.min^{-1} et 12.9 pour une vitesse de 100 mm.min^{-1} . L'auto-échauffement, mesuré en surface, est équivalent et atteint $16 - 18^\circ\text{C}$; en cœur, la température doit être plus importante et ainsi se rapprocher encore un peu plus de la température de transition vitreuse, de l'ordre de 50°C pour le PA11. L'auto-échauffement est maximal au niveau de l'amorçage de la fissure. En effet, la température en sommet de fissure augmente très rapidement jusqu'à l'atteinte de la charge maximale, puis diminue au cours de la propagation stable de la fissure (figure 12.11).

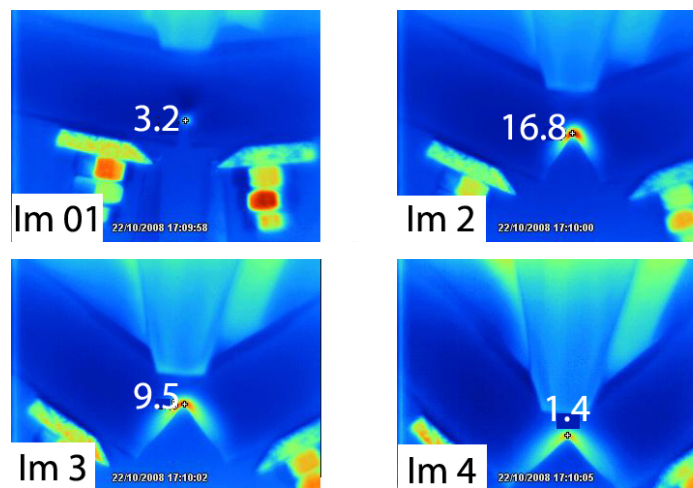


FIGURE 12.9 – Observations de l'auto-échauffement en pointe de fissure d'une éprouvette de flexion de PA11 à 0°C et 100 mm.min^{-1} ($a/W=0.2$).

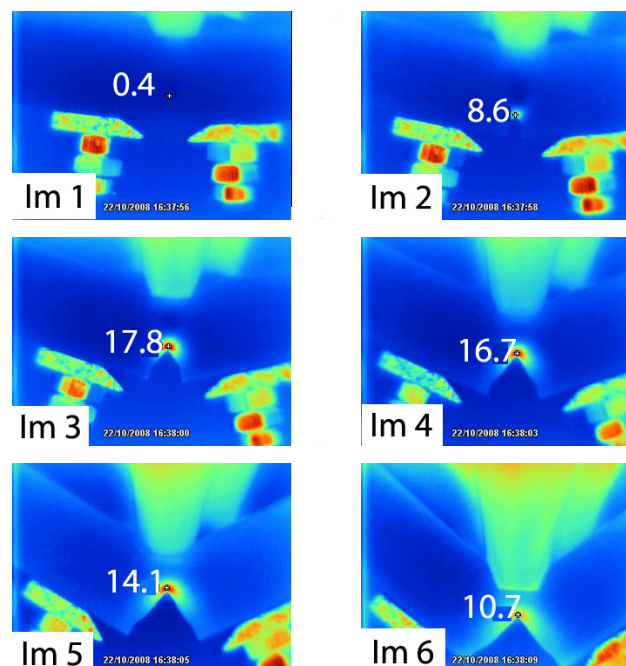


FIGURE 12.10 – Observations de l'auto-échauffement en pointe de fissure d'une éprouvette de flexion de PA11 à 0°C et 50 mm.min^{-1} ($a/W=0.192$).

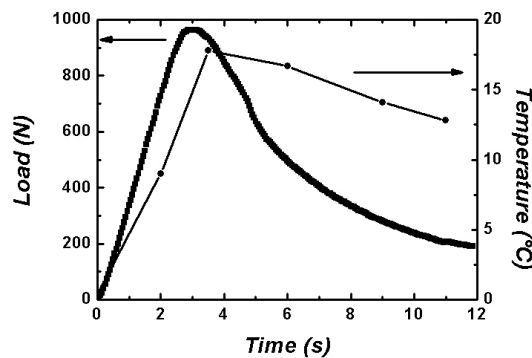


FIGURE 12.11 – Evolution de la force et de la température maximale en fonction du temps pour une éprouvette de PA11 en flexion 3 points, à 0°C et 50 mm.min⁻¹.

12.3.3 Conclusions

Les résultats obtenus avec suivi par caméra thermique sont bien plus concluants que ceux obtenus avec thermocouple qui laissaient entrevoir la possibilité qu'un auto-échauffement local s'opère en pointe de fissure. En effet, un auto-échauffement surfacique de l'ordre de 20°C opère en pointe de fissure, indiquant que la température en cœur d'échantillon doit être au minimum de 20°C lors d'essais à 0°C. Il apparaît donc que nous sommes dans un cas limite car, en considérant un auto-échauffement de cet ordre, nous nous approchons nettement de la zone de températures de transition vitreuse.

12.4 CONCLUSIONS

A travers ce chapitre, par l'intermédiaire d'essais suivis par caméra infrarouge, nous avons pu mettre en évidence l'existence d'une augmentation locale de la température, également appelée auto-échauffement dans les zones fortement contraintes telles que la zone strictionnée pour les éprouvettes lisses et entaillées ou en pointe de fissure pour les éprouvettes fissurées. L'augmentation de la température en cours d'essai apparaît être de l'ordre de 10 – 20 °C et peut atteindre, juste avant la rupture, 50 – 70°C pendant un instant très court. L'auto-échauffement de 10 – 20°C n'est pas infinitésimal et approche localement la température de la température de transition vitreuse en particulier dans le cas des matériaux vieilliss pour lesquels celle-ci avoisine 20°C contre 40°C pour le PA11. Dès lors, cette augmentation locale de la température pourrait engendrer des modifications de mécanismes de déformation expliquées par le fait que la température approche la T_g . Il serait donc intéressant de prendre en compte l'auto-échauffement lors des simulations numériques afin de simuler de manière plus réelle le comportement des matériaux. En dépit du fait que nous mettions en évidence un auto-échauffement adiabatique non négligeable au sein de nos matériaux dans les zones fortement contraintes, cela ne permet en rien de postuler sur le modèle développé par [Leevers \(1995a;b; 1996\)](#) introduit en début de chapitre. Nous sommes simplement confrontés à un problème d'échelle. Leevers s'intéresse à l'auto-échauffement à

l'échelle des fibrilles c'est-à-dire à une échelle nanométrique lorsque nous considérons l'auto-échauffement à une échelle plus grande.

QUELQUES CALCULS THERMO-MÉCANIQUES

13

SOMMAIRE

13.1 INTRODUCTION	273
13.2 TROIS MÉTHODES DE DÉTERMINATION DE LA VARIATION DE TEMPÉRATURE	274
13.2.1 Par post-processeur	274
13.2.2 En cours de calcul mécanique	274
13.2.3 Simulations avec couplage faible thermique-mécanique . .	274
13.2.4 Commentaire	275
13.3 DÉTERMINATION DES PARAMÈTRES EN FONCTION DE LA TEM- PÉRATURE	275
13.3.1 Présentation de la méthode	275
13.3.2 Résultats des essais	275
13.3.3 Lois de variation des paramètres en fonction de la tempé- rature	276
13.4 SIMULATIONS NUMÉRIQUES SUR ÉPROUVETTES NT	277
13.4.1 Premiers résultats	277
13.4.2 Détermination du coefficient β	278
13.4.3 Simulations numériques actualisées	279
13.5 SIMULATIONS NUMÉRIQUES EN FLEXION 3 POINTS	283
13.5.1 Calculs adiabatiques	283
13.5.2 Calculs thermo-mécaniques à couplage faible	285
13.6 CONCLUSIONS	288

Au cours du chapitre précédent, il a été montré que le matériau subissait une augmentation locale de la température. Cet auto-échauffement peut être important et ainsi générer des modifications des mécanismes de déformation et d'endommagement. Ce chapitre s'intéresse alors à la prise en compte de ce nouveau paramètre lors des simulations numériques. Pour ce faire, une identification des paramètres à différentes températures est nécessaire afin de déterminer les lois d'évolutions de chaque coefficient en fonction de la température. Ensuite, en intégrant ces nouvelles

lois et moyennant quelques hypothèses, il est possible de réaliser des calculs thermo-mécaniques et ainsi, rendre compte de manière plus réaliste du comportement du matériau.

13.1 INTRODUCTION

Un calcul thermo-mécanique pourrait nous donner des informations concernant la présence et la valeur de l'auto-échauffement en cours d'essai en pointe de fissure. Au préalable, il est nécessaire de déterminer les conditions de calculs et donc de savoir s'il s'agit d'un cas isotherme, adiabatique ou intermédiaire avec diffusion de la chaleur. Basu et van der Giessen (2002) montrent que les cas isothermes représentent des processus très lents où le temps permet au système d'être en équilibre thermique et $\dot{T} = 0$ quel que soit l'endroit où l'on se place. À l'inverse, les cas adiabatiques concernent les processus rapides au cours desquels la chaleur n'a pas le temps de diffuser. Les champs de contraintes et de températures en sommet de fissure ne sont pas influencés par une plasticité dépendant de la température mais par le fait que la chaleur peut quitter la zone plastique par conduction. Basu et van der Giessen (2002) expliquent que les cas isotherme et adiabatique peuvent être définis comme des cas spéciaux avec soit une conductivité nulle soit une conductivité infinie. Cette conductivité peut être évaluée par le paramètre sans dimension κ tel que :

$$\kappa = \frac{\lambda t_0}{\rho_0 c_v L_0^2} \quad (13.1)$$

où t_0 est un temps caractéristique, L_0 une longueur caractéristique associée au problème, c_v la chaleur spécifique à volume constant, k la conductivité thermique et ρ la masse volumique.

Si $\kappa \ll 1$, les conditions sont isothermes et si $\kappa \gg 1$, les conditions sont adiabatiques. L'application de l'équation 13.1 à notre problème en utilisant les valeurs données dans le tableau 13.1 pour un temps caractéristique de 2 s et une longueur caractéristique de $7.5 \cdot 10^{-3}$ m, nous indique que nous serions dans un cas intermédiaire puisque la valeur de κ est de l'ordre de 2.5. Dès lors, il semble nécessaire de prendre en compte l'auto-échauffement et la diffusion de la chaleur au sein du matériau.

TABLEAU 13.1 – Quelques propriétés physiques et thermiques du PA11.

λ	ρ	C
$W.m^{-1}.K^{-1}$	$kg.m^{-3}$	$J.Kg^{-1}.K^{-1}$
0.3	$1.03 \cdot 10^3$	$2.35 \cdot 10^6$

Remarque 13.1 *Le temps et la longueur caractéristiques consistent respectivement au temps d'atteinte de la force maximale lors d'un essai de flexion 3 points à $0^\circ C$ et $50 mm.s^{-1}$ et à la différence entre la largeur du barreau et la longueur de la pré-fissure soit $W - a$.*

13.2 TROIS MÉTHODES DE DÉTERMINATION DE LA VARIATION DE TEMPÉRATURE

13.2.1 Par post-processeur

A la fin du calcul mécanique, est lancé un post-processeur qui calcule la variation de température.

$$\Delta T = \beta \frac{1}{\rho C_p} \int \sigma_{eq} \delta \epsilon_{eq} \quad (13.2)$$

avec β le coefficient d'échange (pourcentage d'énergie transformée en chaleur), ρ la masse volumique, C_p la chaleur spécifique, σ_{eq} la contrainte équivalente et $\delta \epsilon_{eq}$ l'incrément de déformation plastique.

```
****post_processing
***local_post_processing
  **elset ALL_ELEMENT
  **packet_size 10
  **output_number 1-100
  **file integ
  **process function *output dT *expression  $\beta/\rho C_p$ *seq;
  **process integrate *list_var dT p
  **process function *output bDT *expression I_p*dT*broken
***global_post_processing
  **process volume_above *var broken *threshold 0.5 *normalize
  **process volume_integrate *list_var bDT
****return
```

Cette méthode permet d'obtenir une information concernant une éventuelle augmentation locale de la température par dissipation thermique. Actant par post-processeur, le calcul mécanique ne prend pas en compte le résultat obtenu.

13.2.2 En cours de calcul mécanique

Une autre possibilité est la détermination de la température en cours de simulation. La température initiale devient une donnée du problème, comme l'est la porosité initiale. Les paramètres intervenant dans la modélisation (écrouissage, loi de Norton. . .) deviennent des fonctions de la température. Ainsi, l'évolution de la température peut être prise en compte et modifier le comportement du matériau.

13.2.3 Simulations avec couplage faible thermique-mécanique

L'implantation du couplage faible utilise une approche itérative à un problème couplé arbitraire. Les sous-problèmes sont résolus avec le couplage qui s'opère à travers un transfert approprié des résultats entre les problèmes. Dans notre cas, il s'agit d'un calcul thermo-mécanique. Ainsi, le problème mécanique peut transférer la génération de chaleur interne due à la dissipation mécanique au problème thermique qui détermine, dès lors, l'évolution du champ de température résultant. Le résultat du calcul thermique est alors re-transféré au problème mécanique, permettant une modification des coefficients.

13.2.4 Commentaire

La précaution est de rigueur lorsque l'on travaille avec le coefficient de dissipation d'énergie mécanique en chaleur (β) couplé à un modèle de comportement endommageable tel que le modèle GTN ou le modèle de Rousselier. En effet, l'endommagement se traduit par l'augmentation de la fraction volumique de cavités qui devrait engendrer la diminution du coefficient β voire l'annuler. Dès lors, il faudrait que β soit décrit par une fonction de la porosité. Cependant, l'auto-échauffement adiabatique est implanté dans ZéBuLoN de telle sorte que dans l'équation 13.2, le coefficient ρC_p dépend de la porosité du matériau dense car faisant intervenir $1 - f$ où f est la fraction volumique de cavités.

13.3 DÉTERMINATION DES PARAMÈTRES EN FONCTION DE LA TEMPÉRATURE

13.3.1 Présentation de la méthode

Il a été montré au cours du chapitre 12 que l'auto-échauffement local en traction uniaxiale sur des éprouvettes lisses n'apparaissait pas avant la striction. Or, lors des simulations numériques de ces essais, seule l'évolution de la contrainte en fonction de la déformation avant striction nous intéresse. Dès lors, on peut considérer que la température avant striction est homogène, que celle-ci varie très peu par rapport à la température de consigne et donc qu'il n'est pas nécessaire que les coefficients de la loi de comportement dépendent de la température lors des simulations. Afin d'obtenir les lois d'évolution de chaque coefficient, une série d'essais de traction uniaxiale, avec une vitesse de déplacement de 0.05 mm.s^{-1} sur des éprouvettes de type NT_4 pour une plage de températures allant de 0°C à 100°C , est réalisée. Pour chaque température, est réalisée une simulation numérique isotherme afin de déterminer la valeur des coefficients caractérisant le comportement du matériau (Laiarinandrasana *et al.* 2009). Enfin, on détermine la loi d'évolution de chaque coefficient en fonction de la température.

13.3.2 Résultats des essais

Deux capteurs ont été utilisés : le premier pour suivre l'évolution de la déformation axiale et le second pour suivre l'évolution de la réduction du diamètre de la section minimale. Les résultats sont présentés sur la figure 13.1 ; il s'agit de l'évolution de la contrainte en fonction de la déformation axiale d'une part et de la réduction du diamètre de la section minimale d'autre part. On observe deux résultats généraux avec l'augmentation de la température : le premier concerne la réduction du niveau de contraintes et le second l'augmentation de la déformation axiale, le matériau franchissant le seuil de la T_g . L'augmentation de la température n'a par contre aucun effet sur la valeur de la réduction diamétrale de la section minimale à rupture qui quelle que soit la température considérée, avoisine 45%. L'éprouvette lisse, issue de la propagation de la striction des

échantillons NT_4 , aurait donc le même rayon, quelle soit la température considérée.

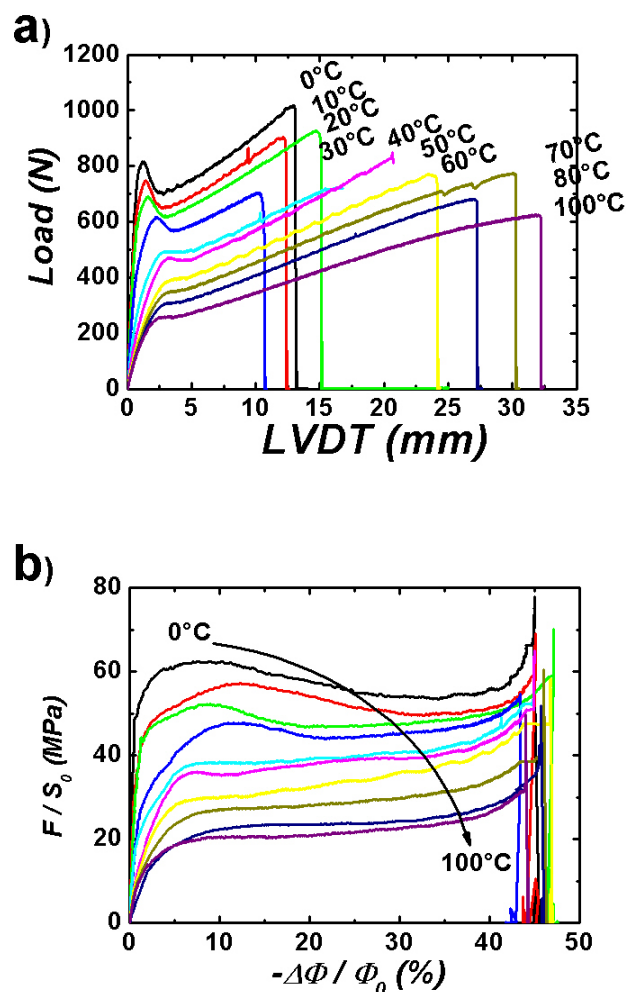


FIGURE 13.1 – Courbes contrainte-déformation obtenues par traction uniaxiale sur NT_4 de 0°C à 100°C : a) en fonction de la déformation axiale ; b) en fonction de la réduction du diamètre de la section minimale.

13.3.3 Lois de variation des paramètres en fonction de la température

Le tableau 13.2 répertorie les valeurs des différents paramètres du modèle en fonction de la température. Il n'est pas possible de faire de même avec les coefficients du paramètre q_2 définissant l'endommagement. En effet, il aurait été nécessaire d'effectuer des essais interrompus à chaque température, d'observer les surfaces obtenues par microtomie au microscope électronique à balayage et enfin de quantifier l'évolution de la porosité par analyse d'images. Il est à noter que, lors de l'identification de ces coefficients, une évolution continue est requise.

TABLEAU 13.2 – Variation des coefficients décrivant le comportement mécanique du PA11 en fonction de la température.

T	Coefficients								
	E	ν	K	n	R_0	Q	b	A	B
0°C	1500	0.42	38.5	10	10	25	30	7.9	3
10°C	1500	0.42	38.5	10	10	20	30	7.9	3
20°C	1500	0.42	38.5	10	10	18	20	7.9	3
30°C	1000	0.42	35	10	8	18	10	7.9	3
40°C	600	0.42	30	10	7	15	10	7.9	3
50°C	500	0.42	30	10	7	14	10	7.9	3
60°C	300	0.42	25	10	7	12	10	5.9	3.7
70°C	200	0.42	25	10	7	5	10	5.9	4.1
80°C	200	0.42	25	10	4	3	10	3.9	4.2
100°C	200	0.42	25	10	2	2	10	3.	4.2

13.4 SIMULATIONS NUMÉRIQUES SUR ÉPROUVETTES NT

13.4.1 Premiers résultats

La figure 13.2 présente les résultats obtenus lors des premières simulations adiabatiques sur éprouvettes NT. L'ensemble des paramètres décrivant le comportement du matériau deviennent des fonctions de la température ; seuls les paramètres gérant l'évolution de l'endommagement soit q_1 et q_2 restent indépendants vis à vis de la température. Il s'agit évidemment d'une hypothèse forte en particulier lorsqu'est franchi le seuil de la température de transition vitreuse. On constate une bonne concordance entre les courbes expérimentales et numériques à 0°C.

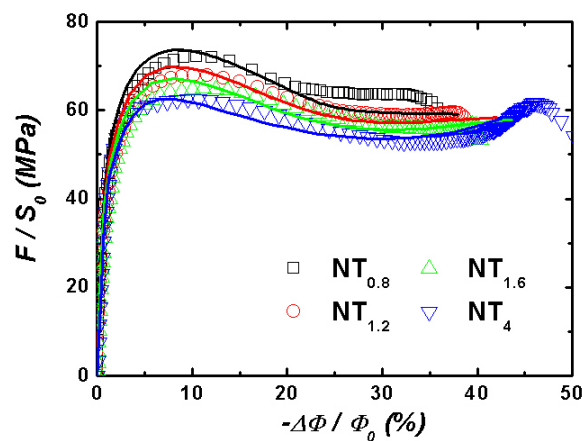


FIGURE 13.2 – Résultats des simulations numériques adiabatiques : courbes contrainte-déformation obtenues par traction uniaxiale sur éprouvettes NT à 0°C et 0.05 mm.s^{-1} pour des essais interrompus avec $\beta = 0.9$.

Le choix de simuler dans un premier temps les essais interrompus n'est pas anodin. Les paramètres d'endommagement étant considérés comme constant vis à vis de la température, nous souhaitons savoir comment l'évolution de la loi d'écoulement avec la température influence l'évolu-

tion de l'endommagement. La figure 13.3 dévoile les isovaleurs de la porosité pour chaque géométrie en fin de calcul. Si pour les géométries $NT_{1.2}$, $NT_{1.6}$ et NT_4 , une légère augmentation de la fraction volumique de vides est constatée, augmentation d'autant plus faible que le taux de triaxialité des contraintes est faible, le résultat concernant la géométrie $NT_{0.8}$ se distingue. En effet, lors des simulations isothermes, on obtenait une porosité de l'ordre de 20% qui coïncidait avec l'essai interrompu observé (chapitre 8). Cependant, au cours du chapitre traitant de la rupture du polyamide 11 (chapitre 11), il a été souligné que l'éprouvette $NT_{0.8}$ était une géométrie particulière et qu'expérimentalement le critère de rupture qui lui est associée, oscillait entre rupture par coalescence des cavités et rupture par élongation des fibrilles. Dès lors, le résultat obtenu en supposant des conditions adiabatiques, conditions plus proches de la réalité que des conditions isothermes, concordent avec le dernier point exprimé puisque la rupture s'opère clairement par coalescence des cavités.

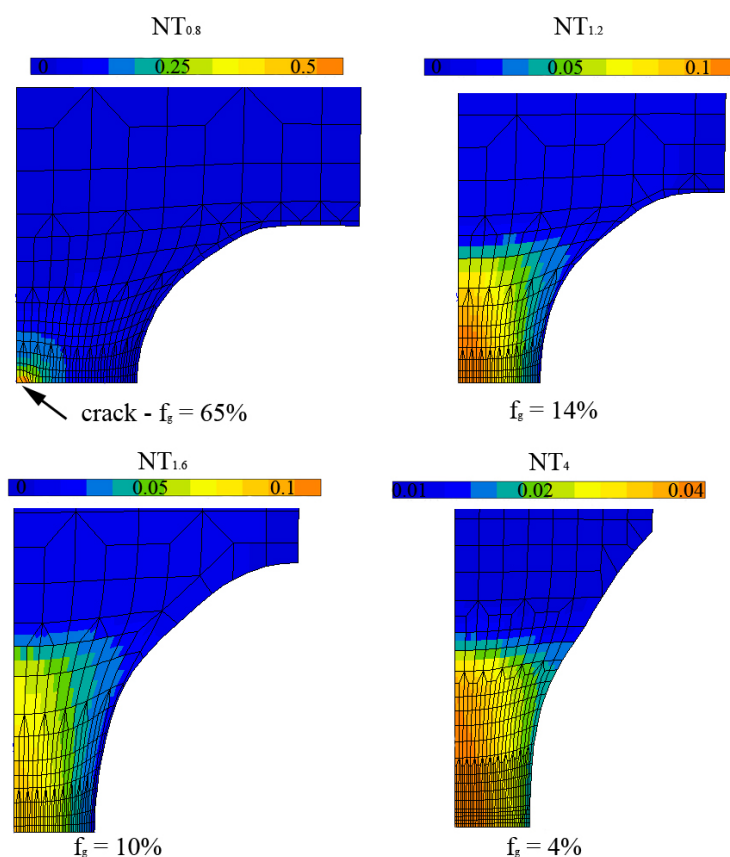


FIGURE 13.3 – Isovaleurs de la porosité avec $\beta = 0.9$ pour les quatre géométries NT considérées à 0°C et 0.05 mm.s^{-1} .

13.4.2 Détermination du coefficient β

L'équation 13.2, qui permet de déterminer l'augmentation de la température, fait intervenir le coefficient β qui définit la part de travail transformée en chaleur. Fixé à 0.9, la figure 13.4 montre que la température augmente trop rapidement par rapport aux données obtenues expérimentalement par suivi avec caméra thermique. Ainsi, on cherche à affiner le

coefficient afin de mieux rendre compte de la cinétique d'augmentation locale de la température. Il apparaît que la valeur de β permettant d'obtenir la meilleure concordance entre les résultats expérimentaux et numériques, lorsque l'on considère l'évolution de la température en surface, s'avère de l'ordre de 0.2 soit 20% (figure 13.4).

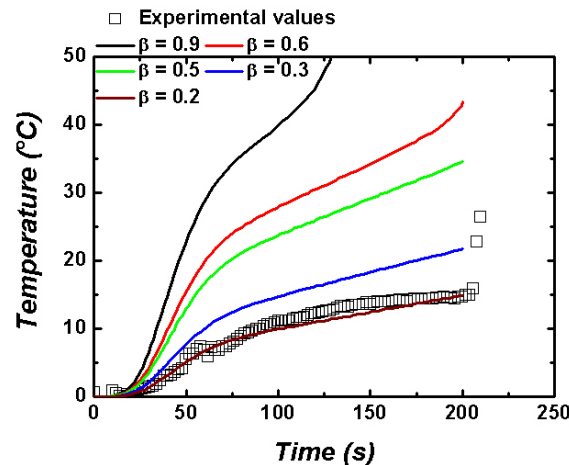


FIGURE 13.4 – Comparaison expérimentale et numérique de l'augmentation de la température en surface en fonction du coefficient de transformation de travail en chaleur β lors d'un essai de traction à 0.05 mm.s^{-1} à 0°C sur une éprouvette NT_4 .

13.4.3 Simulations numériques actualisées

Les calculs présentés précédemment sont effectués de nouveau, avec cette fois la considération moins importante de la température étant donné que β est fixé à 0.2. Les courbes contrainte-réduction diamétrale sont présentées sur la figure 13.5; il apparaît que la bonne concordance des courbes numériques et expérimentales est préservée.

Dès lors, comme pour le paragraphe précédent, on s'intéresse dans un premier temps aux isovaleurs de la porosité pour les quatre géométries considérées avec un attrait particulier pour la géométrie $\text{NT}_{0,8}$, pour laquelle une craquelure se formait lorsque le coefficient β était fixé à 0.9. La minimisation de la part de travail mécanique transformée en chaleur à seulement 20% permet de réduire la valeur du taux de porosité en fin de calcul. Ainsi, comme le montre la figure 13.6, dans le cas de la géométrie $\text{NT}_{0,8}$, aucune craquelure n'apparaît et un taux de porosité légèrement supérieur est obtenu si on le compare à celui obtenu avec un calcul isotherme.

L'augmentation de la température par l'intermédiaire du coefficient β semble influencer directement sur la cinétique de l'endommagement. En effet, l'ensemble des paramètres décrivant le comportement mécanique du matériau voit leurs valeurs évoluer en cours de déformation suite à l'augmentation locale de la température. Cette augmentation de la température engendre une baisse de la rigidité, de son seuil d'écoulement et permet au matériau d'accepter des déformations plus importantes. Une conséquence

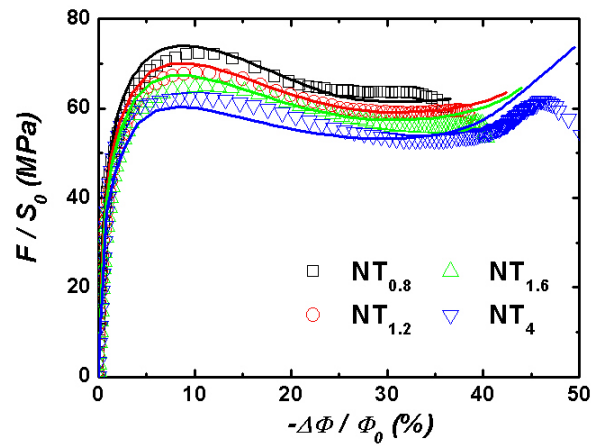


FIGURE 13.5 – Résultats des simulations numériques adiabatiques : courbes contrainte-déformation obtenues par traction uniaxiale sur éprouvettes NT à 0°C et $0.05\text{ mm}\cdot\text{s}^{-1}$ pour des essais interrompus avec $\beta = 0.2$.

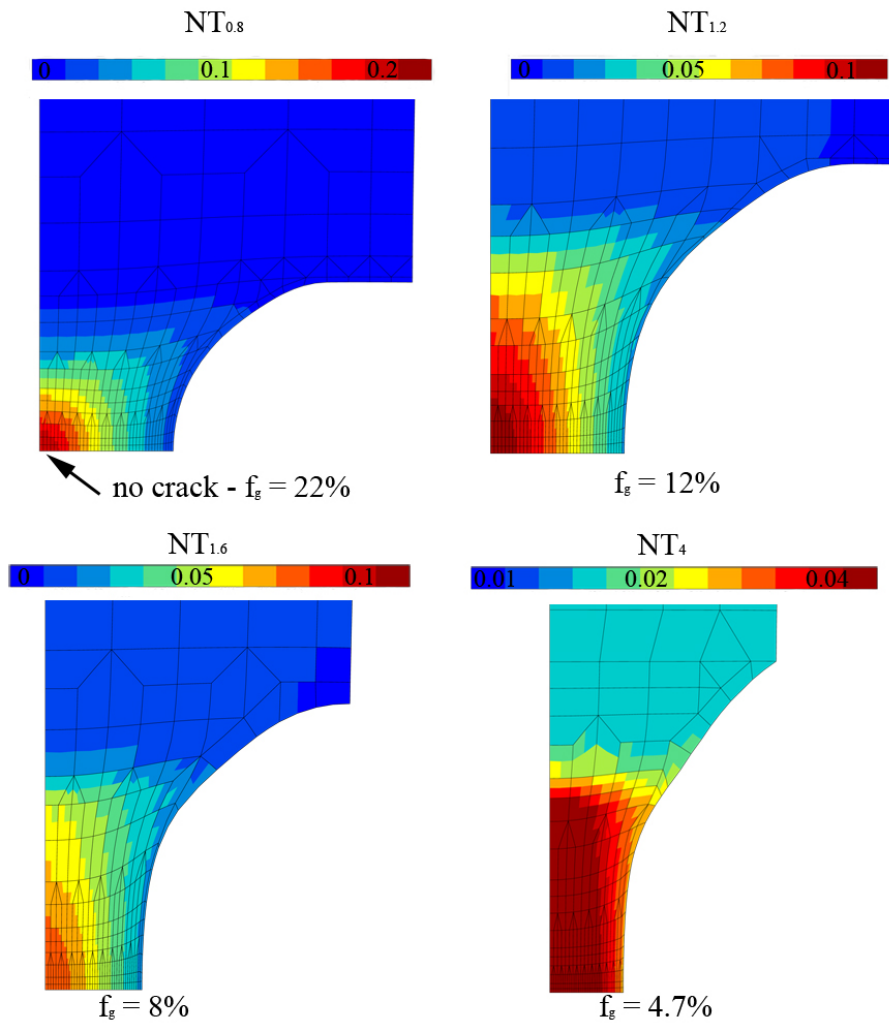


FIGURE 13.6 – Isovaleurs de la porosité avec $\beta = 0.2$ pour les quatre géométries NT considérées à 0°C et $0.05\text{ mm}\cdot\text{s}^{-1}$.

directe de l'auto-échauffement est la sensibilité accrue à l'endommagement étant donné que les paramètres le définissant restent constants vis à vis de la température.

La figure 13.7 présente les évolution en cœur et en surface de la température obtenue numériquement, au niveau de la section minimale pour les quatre géométries. Cette figure peut être associée à la figure 13.8 qui est un descriptif des isovaleurs de la température au niveau de la striction et à la figure 13.9 qui compare la répartition de la température déterminée par caméra infrarouge et par simulation numérique pour une éprouvette NT_4 . Les figures 13.7 et 13.8 mettent en évidence le fait que le calcul numérique prévoit une température plus importante en surface et non en cœur. De plus, il apparaît que la différence de température finale entre le cœur de l'éprouvette et la surface s'amenuise avec l'augmentation du rayon d'entaille c'est-à-dire la réduction du taux de triaxialité initial des contraintes en cœur. D'ailleurs, pour la géométrie NT_4 , soit celle avec le plus grand rayon d'entaille, la température pourrait être considérée comme homogène au niveau de la section minimale voire même dans une partie importante du ligament résultant de la propagation de la striction (figure 13.8). Il s'avère que la répartition de la température devient plus éparse avec la réduction du rayon d'entaille. Ce constat s'explique par la répartition non uniforme du champ de déformation plastique dans le ligament avec l'augmentation du taux de triaxialité des contraintes. En effet, la dissipation d'énergie mécanique en chaleur se calculant à partir de l'incrément de déformation plastique, comme défini équation 13.2, la répercussion de la non-uniformité du champ de déformation plastique est immédiate sur le champ de température comme il est possible de le constater sur la figure 13.10 qui compare les répartitions de la déformation plastique principale maximale et de la température. De plus, dans ces simulations numériques, nous ne prenons pas en compte le refroidissement en surface engendré par les jets d'azote.

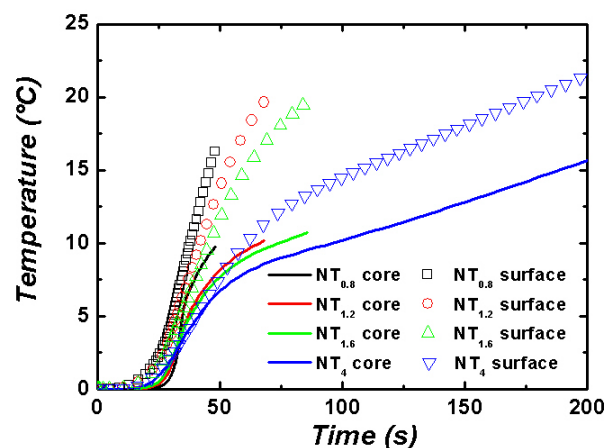


FIGURE 13.7 – Evolution numérique de la température en cœur et en surface d'éprouvettes NT à 0°C en fonction du temps avec $\beta = 0.2$.

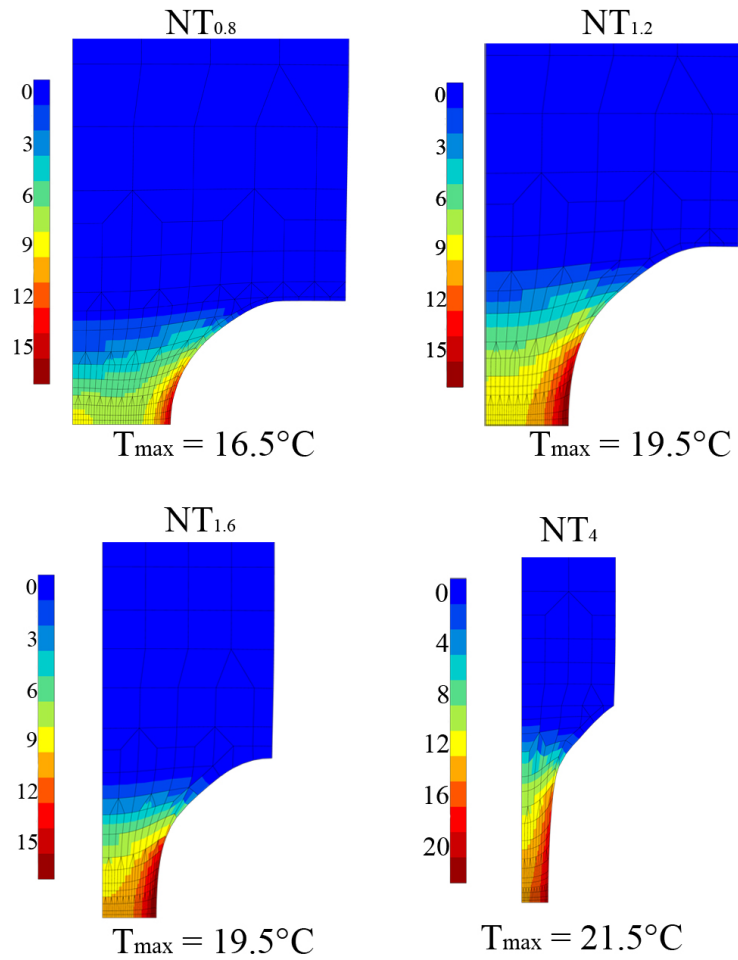


FIGURE 13.8 – Isovaleurs de la température au niveau de l'entaille des éprouvettes NT à 0°C pour $\beta = 0.2$.

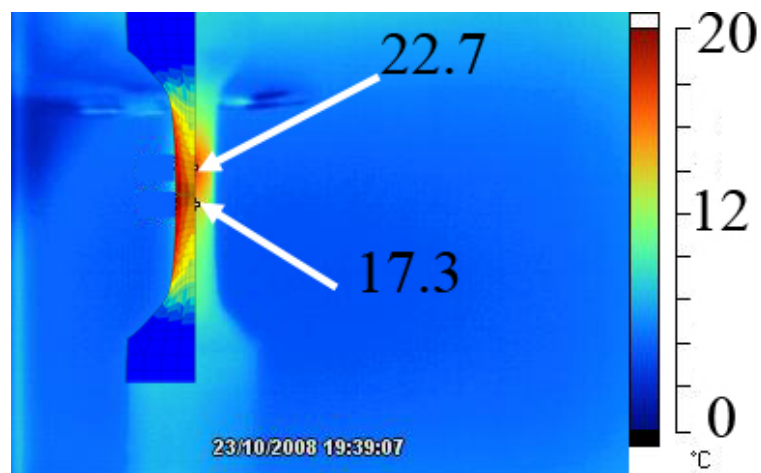


FIGURE 13.9 – Comparaison des isovaleurs expérimentale (à droite) et numérique (à gauche) de la température au niveau de l'entaille pour une éprouvette NT₄ (0°C et $\beta = 0.2$).

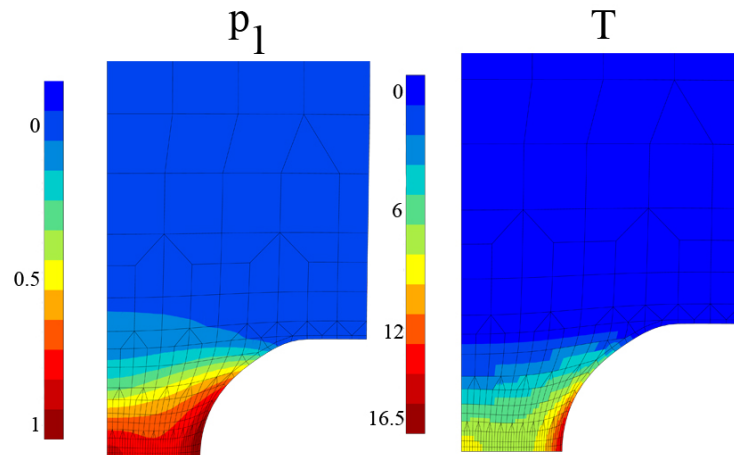


FIGURE 13.10 – Comparaison des isovaleurs numériques de la déformation plastique principale maximale et de la température au niveau de l'entaille pour une éprouvette NT₄.

13.5 SIMULATIONS NUMÉRIQUES EN FLEXION 3 POINTS

13.5.1 Calculs adiabatiques

Au cours du chapitre 11, les résultats numériques d'essais de flexion 3 points ont été exposés dans des conditions isothermes. Ces calculs sont donc repris ici dans des conditions adiabatiques. Comme précédemment, les paramètres intervenant dans la description du comportement mécanique deviennent des fonctions de la température, température qui est déterminée à partir du travail mécanique. Les calculs isothermes ayant présenté quelques délicatesses (surestimation de la force maximale en 2D déformations planes, propagation trop rapide de la fissure en déformations planes et en 3D), seuls les calculs en 3D sont étudiés jusqu'à l'amorçage de la fissure. Cependant, la simulation numérique en utilisant de la modèle étendu de Rousselier (Rousselier 1987, Tanguy et Besson 2002) avait donné d'excellents résultats dans des conditions isothermes. Dès lors, il semble intéressant de les confronter avec les résultats obtenus dans des conditions adiabatiques.

La figure 13.11 présente les évolutions de la force en fonction de l'ouverture de la fissure obtenues :

- avec le modèle GTN en appliquant $\beta = 0.2$;
- avec le modèle GTN en appliquant $\beta = 0.2$ et en utilisant le q_2 modifié (cf chapitre 11) ;
- avec le modèle de Rousselier étendu avec $\beta = 0.2$;
- avec le modèle de Rousselier étendu avec $\beta = 0.3$;

La prise en compte de l'auto-échauffement adiabatique lors des simulations numériques de flexion 3 points sur des éprouvettes fissurées a tendance à légèrement réduire la valeur de la force à l'amorçage de la fissure c'est-à-dire au sommet de la courbe force-CTOD et à accroître la chute de charge liée à la propagation de la fissuration, ce second point est particulièrement vrai lorsque l'on utilise le modèle étendu de Rousselier. La variation du coefficient β a très peu d'influence sur la propagation de la fissure, comme en atteste la figure 13.11 lorsqu'on compare les résultats entre la courbe "Rousselier extended $\beta = 0.2$ " et "Rousselier

extended $\beta = 0.3$ ". Par contre, la modification de la fonction décrivant q_2 a plus d'impact sur la chute de charge. Cette remarque tend à conforter la nécessité de définir ce paramètre en fonction de la température. Une autre possibilité, pour expliquer la mauvaise concordance des courbes expérimentale et numériques après atteinte de la force maximale, pourrait consister en une identification manquant de précision des paramètres du rhéodurcissement en fonction de la température.

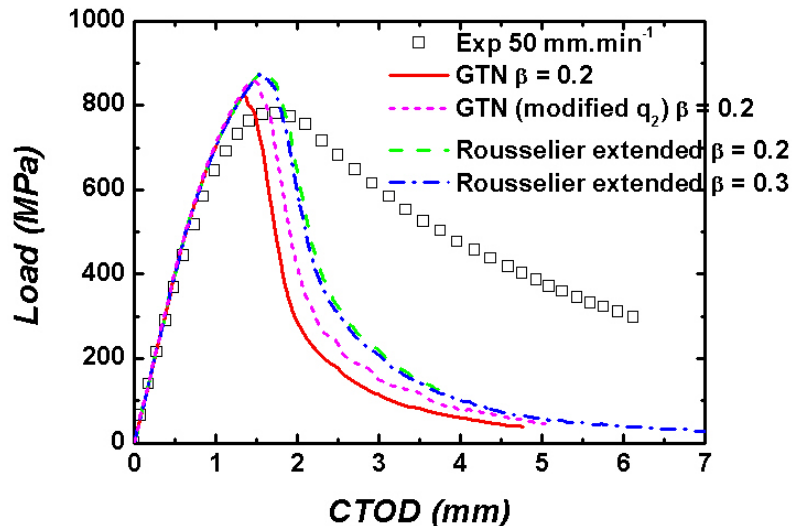


FIGURE 13.11 – Courbes charge-ouverture expérimentale et numériques (3D) à 0°C et 50 mm.min⁻¹.

La figure 13.12 présente les isovaleurs de la contrainte dans la direction d'ouverture de la fissure, de la porosité et de la température en pointe de fissure au temps correspondant à l'atteinte de la valeur de la force maximale sur la courbes force-CTOD soit l'amorçage de la fissure.

La figure 13.12 permet également de comparer les isovaleurs obtenues à l'aide du modèle GTN et celles obtenues par l'intermédiaire du modèle de Rousselier. Au premier regard, on peut s'apercevoir que les deux modèles utilisés ici donnent des résultats équivalents qu'ils soient en terme de contrainte, de fraction volumique de cavités ou d'auto-échauffement adiabatique. Il semble que la contrainte précédant l'amorçage de la fissure initialement présente dans le matériau, soit de l'ordre de 150 – 160 MPa. Il est également bien mis en évidence que cette propagation est précédée par un endommagement relativement important puisqu'atteignant presque 50% qui est la valeur de notre porosité critique. La répartition de l'endommagement est, semble-t-il, également conforme à celle caractérisée par observations microscopiques : endommagement maximal en cœur d'éprouvette associé à un effet tunnel. Les essais de flexion 3 points sur éprouvettes fissurées pour une vitesse de déflexion de 50 mm.min⁻¹ à 0°C et suivis par caméra infrarouge avaient permis de déceler un auto-échauffement de l'ordre de 18°C en surface en amont de la pointe de fissure. Si numériquement en cœur la température obtenue s'avère du même ordre, l'augmentation est minimisée en surface, celle-ci étant d'environ 8°C. Ce

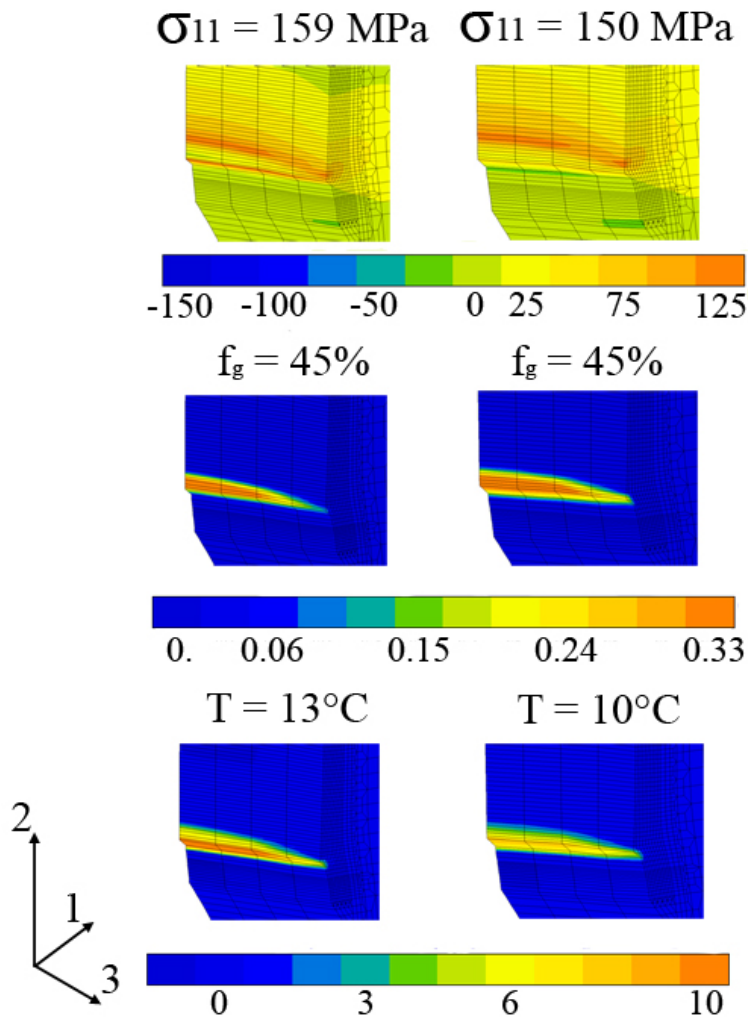


FIGURE 13.12 – Isovaleurs de σ_{11} , f_g et T à l'amorçage avec $\beta = 0.3$: à gauche le modèle GTN et à droite le modèle de Rousselier étendu.

constat force à se poser la question de la bonne ou mauvaise identification de coefficient β qui pourrait avoir été sous-estimé ou simplement, identifie les limites du calcul adiabatique tel qu'il a été utilisé jusqu'ici et suggère de considérer la diffusion de la chaleur.

La propagation de la fissure obtenue par simulation numérique à l'aide du modèle de Rousselier étendu doit être considérée avec précaution. Les éléments du ligament les plus en surface se déforment énormément lors du passage de la fissure et deviennent distordus. Ce constat n'étant pas présent lors des simulations numériques sans prise en compte de la température, cela laisse supposer que la température serait responsable.

13.5.2 Calculs thermo-mécaniques à couplage faible

Il a été montré à la fois expérimentalement et numériquement qu'un auto-échauffement local adiabatique s'opérait en sommet de fissure. La question que l'on doit se poser dorénavant est la suivante : la chaleur produite suite à la transformation du travail plastique a-t-elle le temps de diffuser en cours de déformation ? Une première idée de la réponse tient

dans un calcul analytique simple impliquant la distance caractéristique de propagation de la chaleur qui se définit comme suit :

$$x_D = \sqrt{D t} \quad (13.3)$$

avec D la diffusivité thermique ($m^2.s^{-1}$) donnée par l'équation 13.4 et t (s) un temps caractéristique.

$$D = \frac{\lambda}{\rho C} \quad (13.4)$$

avec λ la conductibilité thermique ($W.m^{-1}.K^{-1}$), ρ la masse volumique ($kg.m^{-3}$) et C la capacité thermique massique ($J.Kg^{-1}.K^{-1}$).

L'application des équations 13.3 et 13.4 pour notre matériau, dont les valeurs sont répertoriés dans le tableau 13.1, et pour un temps caractéristique de 10 s qui correspond globalement au temps d'essai d'un essai de flexion 3 points pour une vitesse de déflexion de $50 mm.min^{-1}$, donne une valeur de x_D de l'ordre de 0.035 mm. Ainsi ce résultat tend à considérer que les calculs adiabatiques sont suffisants étant donné que la diffusion de la chaleur semble pouvoir être négligée.

Le modèle numérique à couplage faible, tel qu'il est implanté, ne permet pas de considérer une génération de chaleur autre que $\beta = 1$. Dès lors, les résultats présentés consistent en une surestimation de la diffusion de la chaleur au sein du matériau. Il apparaît donc nécessaire de considérer les travaux présentés ici, travaux confrontant l'utilisation d'un modèle couplé comportement-endommagement de type Gurson (1977) ou Rous-selier (1987) à la diffusion de la chaleur comme une première esquisse qui nécessitera un approfondissement futur.

Les résultats numériques en terme d'évolution de la force en fonction de l'ouverture de la fissure sont décrits sur la figure 13.13, figure sur laquelle le résultat issu d'une simulation adiabatique est également évoqué. Une nouvelle fois, on constate l'augmentation de la valeur de la force maximale qui est peut être liée soit au fait que la génération de chaleur est prise égale à 1 soit au pouvoir diffusif de matériau.

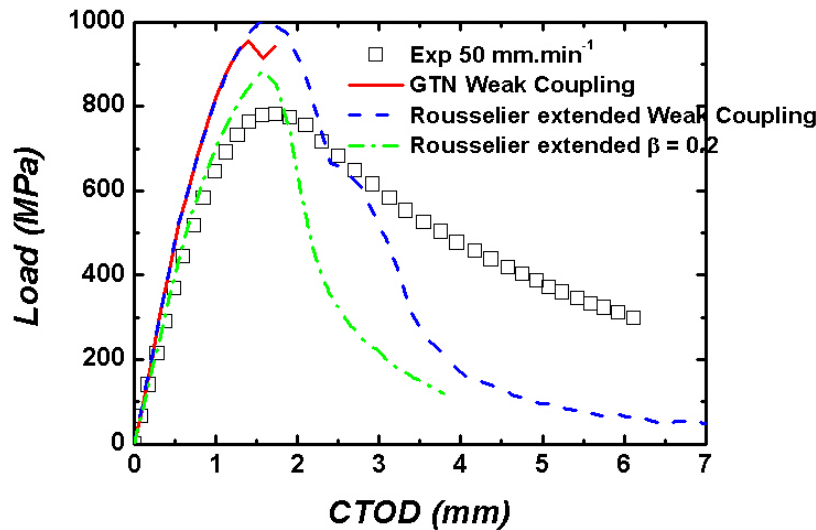


FIGURE 13.13 – Courbes charge-ouverture expérimentale et numériques (3D et $\beta = 1$) à 0°C et $50\text{ mm}\cdot\text{min}^{-1}$.

La figure 13.14 dévoile les isovaleurs à l’amorçage de plusieurs grandeurs obtenues de la simulation numérique faisant intervenir le modèle de Rousselier étendu. Si les valeurs de la porosité et de la contrainte d’ouverture sont du même ordre que celles obtenues en réalisant un calcul adiabatique, la température en pointe de fissure est divisée par 2.

L’équivalent est effectué pour le modèle de Gurson-Tvergaard-Needleman. Les isovaleurs à l’amorçage diffèrent quelque peu de celles obtenues avec le modèle de Rousselier étendu mais également de celles issues du calcul adiabatique (figure 13.15). Il semble que, comparé aux autres calculs, nous nous trouvons à un stade plus avancé de l’endommagement caractérisé par une porosité maximale plus importante, d’ailleurs supérieure à f_c , qui a donc engendré la rupture des éléments aux points de gauss, et une contrainte d’ouverture plus grande également avoisinant 200 MPa . L’auto-échauffement, en pointe de fissure, est équivalent quelque soit le modèle considéré.

Nous avons remarqué qu’avec le modèle de Rousselier étendu, la prise en compte de la température semblait perturber la déformation de certains éléments. Or cette remarque s’avère également vraie dans le cas des simulations thermo-mécanique à couplage faible. Le calcul équivalent en appliquant le modèle GTN divergeant avant le stade de propagation de la fissure, il n’est pas possible de déterminer si oui ou non, les éléments se déforment également suite au passage de la fissure.

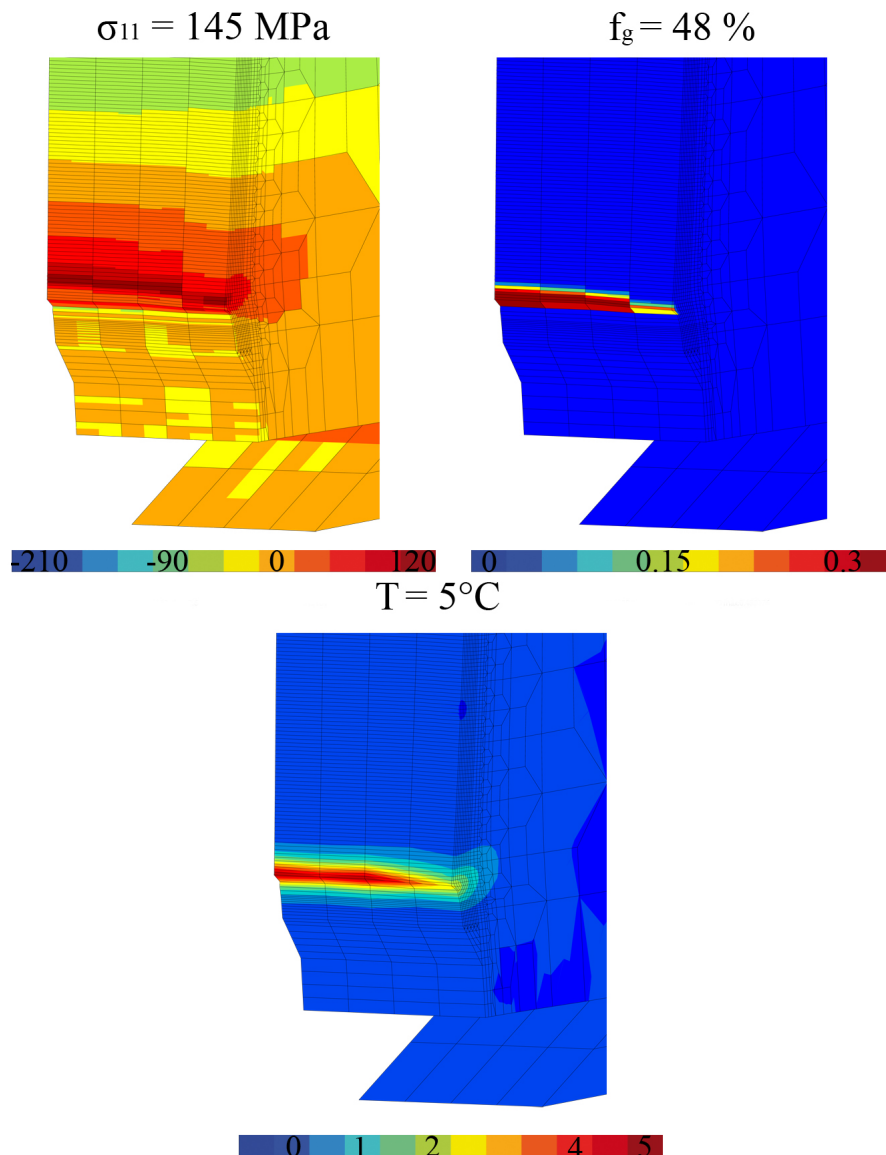


FIGURE 13.14 – Isovaleurs à l'amorçage de la contrainte d'ouverture, de la porosité et de l'auto-échauffement adiabatique à 0°C et $50 \text{ mm}\cdot\text{min}^{-1}$ avec le modèle de Rousselier étendu.

13.6 CONCLUSIONS

Ce chapitre a permis de prendre en considération l'échauffement adiabatique observé expérimentalement au sein de notre matériau sous chargement quasi-statique à 0°C . Cela a impliqué, dans un premier temps, la réalisation d'essais uniaxiaux sur des éprouvettes entaillées de type NT_4 pour une large plage de températures (0 à 100°C) puis, dans un second temps, l'application de la méthode d'identification des paramètres de la loi de comportement mécanique pour chacune des températures considérées. Ce faisant, il nous a été possible de déterminer les évolutions de chacun des paramètres en fonction de la température. Cette première étape effectuée, il a été nécessaire d'une part, de caler le coefficient de dissipation d'énergie mécanique β et d'autre part, d'ajuster de nouveau, ou plutôt affiner, les coefficients intervenant dans la fonction d'endommagement q_2

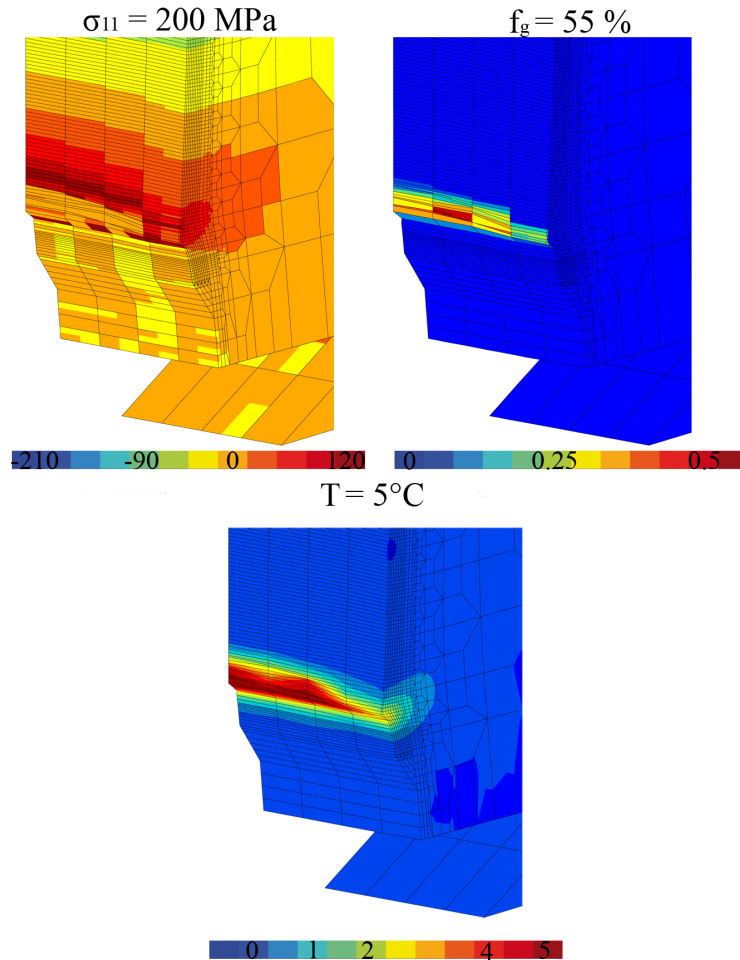


FIGURE 13.15 – Isovaleurs à l’amorçage de la contrainte d’ouverture, de la porosité et de l’auto-échauffement adiabatique à 0°C et $50\text{ mm}\cdot\text{min}^{-1}$ avec le modèle GTN.

qui ne sont pas fonction de la température. Par conséquent, nous avons pu nous intéresser à l’évolution de la température en cœur au sein des éprouvettes entaillées ainsi qu’en pointe de fissure. Quel que soit le type d’éprouvette, entaillée ou fissurée, entaillée avec différents rayons d’entaille, il n’apparaît que la température franchisse le seuil de la température de transition vitreuse.

Si les simulations numériques des essais sur éprouvettes *NT* ne posent pas de difficultés particulières, plusieurs problèmes apparaissent lors du passage à une géométrie plus complexe faisant intervenir la propagation d’une fissure. En effet, si les résultats numériques semblent plus que corrects jusqu’à l’amorçage de la fissure, la propagation pose quelques problèmes. Si la propagation de fissure avec le modèle GTN sans prise en compte de la température n’était pas probante, elle est encore moins lorsque nous ajoutons l’auto-échauffement adiabatique. Concernant le modèle de Rousselier étendu, l’ajout de la variation des paramètres en fonction de la température nous fait perdre la bonne concordance numérique-expérimentale obtenue en isotherme. Plusieurs hypothèses peuvent expliquer les difficultés rencontrées. D’une part, il s’avère que nous sommes confrontés, avec le modèle de Rousselier étendu, à des éléments très distor-

due suite au passage de la fissure. D'autre part, généralement la première rangée d'éléments au niveau de la pointe de la pré-fissure se déforme beaucoup et atteignent des valeurs en terme de déformation plastique importante sans pour autant nécessairement casser. Dès lors, en raison de cette plastification importante, il est possible de constater des élévations de température importantes. Enfin, une dernière explication réside dans l'identification du paramètre q_2 . Si l'on peut croire que, q_1 serait un paramètre intrinsèque du matériau, cela est moins évident pour q_2 . L'augmentation locale de la température, qui a tendance à adoucir le matériau, pourrait perturber la cinétique d'endommagement en influant sur la cinétique de croissance des cavités par exemple, la coalescence voire la germination. Certes, l'hypothèse prise de considérer q_2 comme étant constant vis à vis de la température paraît réaliste étant donné que, l'auto-échauffement ne s'avère pas suffisant pour franchir le seuil de la température de transition vitreuse. Cependant, nous avons pu constater à maintes reprises, au cours de ce mémoire, la précision extrême que requiert q_2 , des variations même faibles engendrant des résultats bien différents en terme de propagation de fissure.

Sixième partie

**Micromécanique des
polymères chargés**

MICROMÉCANIQUE DES POLYMÈRES CHARGÉS

14

SOMMAIRE

14.1 QUELQUES CALCULS NUMÉRIQUES PRÉLIMINAIRES EN ÉLASTI- CITÉ LINÉAIRE.	295
14.1.1 Méthode de calculs	296
14.1.2 Résultats des simulations numériques	298
14.1.3 Conclusion	299
14.2 LA TENSION DE SURFACE	299
14.2.1 Détermination de la taille minimale de la cavité	299
14.2.2 Simulations numériques	301
14.3 COMPLÉMENTS : LIAISON ENTRE LA DYNAMIQUE MOLÉCULAIRE ET LA MÉCANIQUE DES MILIEUX CONTINUS	318
14.4 CONCLUSIONS	321

CE chapitre est l'occasion d'effectuer des calculs sur des volumes élémentaires dans le but d'envisager un ou plusieurs micromécanismes influant sur la possibilité d'un nodule d'améliorer la ténacité d'un matériau polymère au sens de la dissipation d'énergie mécanique. Dès lors, une série de calculs simples est effectuée afin de s'intéresser aux conditions requises, en terme de taille des nodules et distance interparticulaire entre ces derniers, pour qu'une cavité se forme entre deux nodules et engendre une craquelure. Afin d'être au plus proche de la réalité, certains calculs prennent en compte la tension de surface.

14.1 QUELQUES CALCULS NUMÉRIQUES PRÉLIMINAIRES EN ÉLASTICITÉ LINÉAIRE...

Un volume élémentaire composé d'une matrice, d'un nodule et d'une cavité est considéré. Neuf maillages sont construits afin d'étudier l'influence de la taille relative du nodule de rayon R_n et la demi-distance interparticulaire interface/interface notée Λ (figure 14.1). Sont considérés 3 rayons et 3 distances déterminés comme suit :

$$R_n = \Lambda/2, \Lambda, 2\Lambda$$

$$r_c = \Lambda/4, \Lambda/6, \Lambda/10$$

avec r_c la taille de la cavité. Ces maillages sont réalisés à l'aide d'éléments axisymétriques de type *cax8* et pour chaque maillage, trois calculs sont réalisés :

- cas 1 : l'ensemble du volume est du PA11 qui est le cas de référence,
- cas 2 : la matrice de PA11 contenant deux nodules de caoutchouc,
- cas 3 : la matrice de PA11 contenant deux nodules de caoutchouc en présence d'une cavité (correspondant au domaine \mathcal{D}_2) à équidistance des deux nodules.

Chaque volume élémentaire est donc déterminé à partir des deux paramètres d'entrée, Λ et R_n , en sachant que la fraction volumique du nodule est prise égale à 10% et que le rayon de la cavité r_c est fixé. Les calculs sont réalisés en petites déformations.

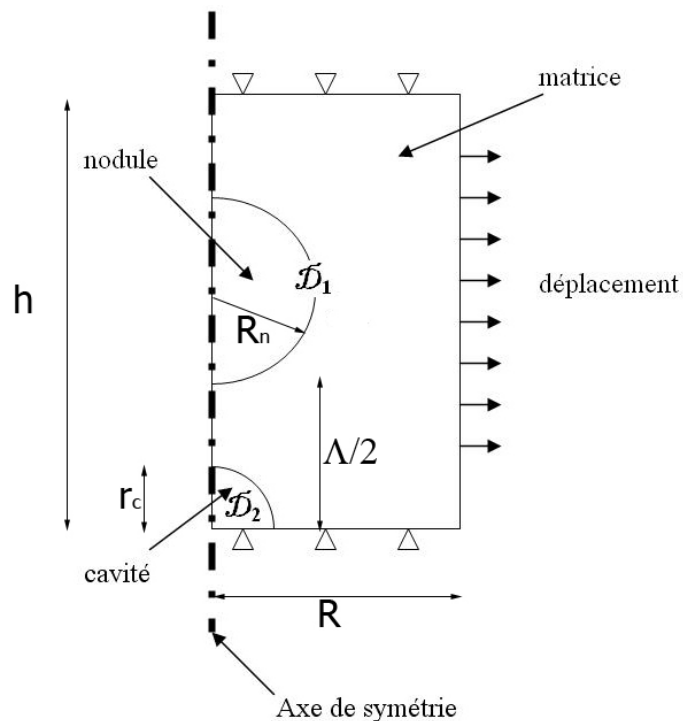


FIGURE 14.1 – Volume élémentaire considéré lors des simulations numériques

14.1.1 Méthode de calculs

Le calcul consiste à effectuer un bilan d'énergie classique entre les trois états considérés. Pour ce faire, il est nécessaire de considérer l'énergie élastique qui se détermine comme suit :

$$W = \frac{1}{2} \int_v \underline{\underline{\sigma}} : \underline{\underline{D}}^{-1} : \underline{\underline{\sigma}} dV \quad (14.1)$$

avec $\underline{\underline{D}}$ la matrice élastique extraite du comportement du matériau.

14.1.1.1 Les bilans d'énergie

14.1.1.1.1 Préambule Il existe plusieurs manières d'effectuer le bilan d'énergie ; deux sont proposées ici et présentées schématiquement sur la figure 14.2. La première méthode s'intéresse à la création d'une surface interne et d'une surface externe et ainsi au déchargement de l'énergie élastique stockée dans les domaines \mathcal{D}_1 et \mathcal{D}_2 lors de la création de ces surfaces ; il s'agit d'un cas idéalisé (figure 14.2a). La seconde consiste en un cas plus réel (figure 14.2b). En effet, une unique surface est créée. L'énergie consiste alors en la somme de l'énergie stockée dans le domaine \mathcal{D}_1 associée à l'énergie visco-plastique. La part stockée dans \mathcal{D}_2 est négligée car quasiment totalement déchargée.

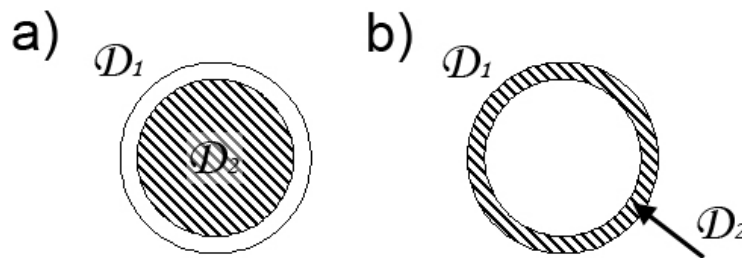


FIGURE 14.2 – Présentation schématique des deux méthodes de calcul utilisées : a) cas idéalisé de la MMC, décharge de l'énergie élastique contenue dans le domaine \mathcal{D}_2 par formation d'une surface interne et d'une surface externe, associée à une décharge dans le domaine \mathcal{D}_1 ; b) cas plus réel avec création d'une unique surface et relâchement de la dépression couplée à un cisaillement intense.

Les méthodes présentées sont bien évidemment discutables mais nous sommes confrontés au fait qu'il faille soit considérer un état sans cavité soit un état cavité avec cavité. De plus, cette stratégie nous permet tout de même d'obtenir des ordres de grandeurs.

14.1.1.1.2 Notations W est le symbole utilisé pour désigner l'énergie élastique. Afin de différencier les états et domaines considérés, la notation suivante est utilisée : W_j^i où i fait référence au cas et j au domaine. Par exemple, la notation $W_{\mathcal{D}_1}^1$ signifie "énergie élastique du domaine \mathcal{D}_1 à l'état 1. Le domaine 1 noté \mathcal{D}_1 correspond à la matrice et au nodule ; le domaine \mathcal{D}_2 correspond à la cavité.

Afin de simplifier l'écriture, nous posons :

$$W_{\mathcal{D}_n + \mathcal{D}_m}^i = W_{\mathcal{D}_n}^i + W_{\mathcal{D}_m}^i \quad (14.2)$$

De plus, il est trivial que, dans le cas 3, l'énergie élastique du domaine \mathcal{D}_2 , ensemble des éléments décrivant la cavité, est nulle et s'écrit

$$W_{\mathcal{D}_2}^3 = 0 \quad (14.3)$$

14.1.1.1.3 Méthodes de calculs Pour chaque calcul, sont déterminées l'énergie élastique totale du volume considéré $W_{\mathcal{D}_1+\mathcal{D}_2}$ et l'énergie élastique de la cavité $W_{\mathcal{D}_2}$. Ainsi, il est possible de comparer l'énergie élastique contenue au sein du domaine \mathcal{D}_2 entre les cas 1 et 2 soit avec ou sans nodule dans une matrice de PA11. Cette grandeur est définie comme

$$\frac{W_{\mathcal{D}_2}^2}{W_{\mathcal{D}_2}^1} \quad (14.4)$$

Il est également intéressant d'étudier les cas 2 et 3. Pour ce faire, on peut soit considérer uniquement le domaine \mathcal{D}_1 normé par $W_{\mathcal{D}_2}^1$ (équation 14.5) ou l'ensemble du volume élémentaire constitué par les domaines \mathcal{D}_1 et \mathcal{D}_2 toujours normé par $W_{\mathcal{D}_2}^1$ (équation 14.6).

$$\frac{W_{\mathcal{D}_1+\mathcal{D}_2}^3 - [W_{\mathcal{D}_1+\mathcal{D}_2}^2 - W_{\mathcal{D}_2}^2]}{W_{\mathcal{D}_2}^1} = \frac{W_{\mathcal{D}_1}^3 - W_{\mathcal{D}_1}^2}{W_{\mathcal{D}_2}^1} \quad (14.5)$$

$$\frac{[W_{\mathcal{D}_1}^3 + W_{\mathcal{D}_2}^3] - [W_{\mathcal{D}_1}^2 + W_{\mathcal{D}_2}^2]}{W_{\mathcal{D}_2}^1} = \frac{W_{\mathcal{D}_1+\mathcal{D}_2}^3 - W_{\mathcal{D}_1+\mathcal{D}_2}^2}{W_{\mathcal{D}_2}^1} \quad (14.6)$$

Remarque 14.1 La manière de procéder implique obligatoirement un calcul en élasticité linéaire engendrant des processus réversibles. Un calcul élasto-plastique voire élasto-viscoplastique serait cependant très intéressant mais beaucoup plus compliqué à analyser à cause des nombreux paramètres qui interviennent. En effet, en élasto-plasticité, il faut considérer l'histoire du chargement rendant donc difficile la comparaison d'un calcul sans cavité à un calcul où la cavité est présente initialement. Idéalement, il faudrait imposer la création d'une cavité en cours de déformation ce qui n'est malheureusement pas possible de faire en mécanique des milieux continus à la différence des simulations en dynamique moléculaire qui elles, permettent de simuler la naissance d'un vide au sein des chaînes de polymères (figure 14.3). Nonobstant, si deux courbes maîtresses existent, Géhant et al. (2003) montrent que lorsqu'une cavité apparaît la contrainte quitte la courbe contrainte-déformation obtenue sans cavité pour rejoindre celle avec cavité comme décrit figure 14.4.

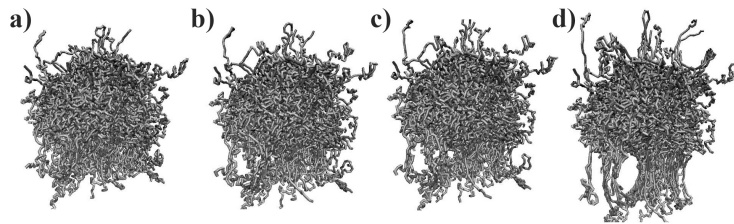


FIGURE 14.3 – Propagation des craquelures dans un système vitreux soumis à une traction triaxiale à différentes déformations (Schnell 2006) : a) $\epsilon_z = 0.2$; b) $\epsilon_z = 0.275$; c) $\epsilon_z = 0.3$; d) $\epsilon_z = 0.5$.

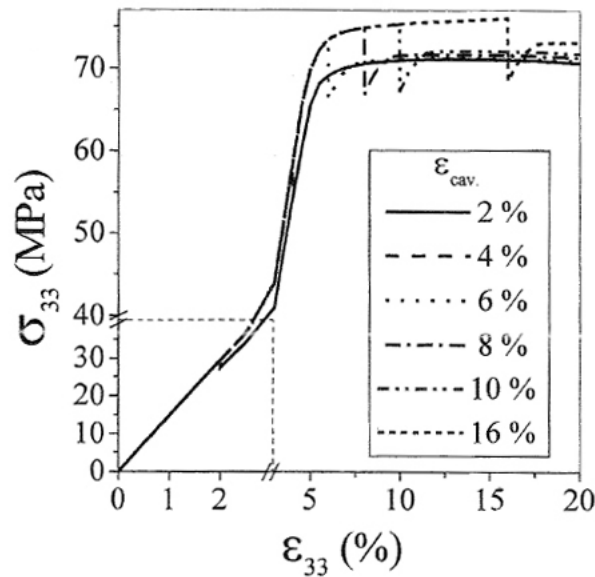


FIGURE 14.4 – Courbes contrainte-déformation d'un volume élémentaire sous tension uniaxiale pour différentes déformations à laquelle apparaît de la cavitation (Géhart et al. 2003)

14.1.2 Résultats des simulations numériques

Les bilans d'énergie sont répertoriés dans les tableaux 14.1 concernant la méthode 1 (intérêt porté sur le domaine \mathcal{D}_1) et 14.2 pour la méthode 2 (intérêt porté sur l'ensemble du volume élémentaire $\mathcal{D}_1 + \mathcal{D}_2$) en fonction du rayon R_n du nodule et Λ la distance inter-particulaire.

Concernant le domaine \mathcal{D}_2 c'est-à-dire l'ensemble des éléments désignant l'éventuelle cavité, pour une distance inter-particulaire fixée, l'augmentation du rayon du nodule influe sur le rapport des énergies entre les états 1 et 2. L'augmentation de Λ n'engendre aucune évolution de $W_{\mathcal{D}_2}^2 / W_{\mathcal{D}_2}^1$. Dans les cas des configurations $R_n = \Lambda$ et $R_n = 2\Lambda$ et quelle que soit la valeur de Λ , l'état 2 détient plus d'énergie que l'état 1 étant donné que le rapport $W_{\mathcal{D}_2}^2 / W_{\mathcal{D}_2}^1$ devient supérieur à 1.

Concernant le domaine \mathcal{D}_1 entre les états 2 et 3, un constat similaire peut être effectué. A Λ fixé, l'augmentation de R_n n'engendre pas de variation entre les rapports d'énergie et seule l'augmentation de Λ joue un rôle. Quel que soit le maillage considéré, les résultats montrent que l'inégalité $W_{\mathcal{D}_1}^3 - W_{\mathcal{D}_1}^2 < 0$ est toujours respectée et donc que le domaine \mathcal{D}_1 du polyamide avec nodule et en présence d'une cavité a moins d'énergie élastique que l'état équivalent sans cavité. La présence d'une cavité au sein de la cellule permettrait de consommer une partie de l'énergie élastique disponible.

Si on s'intéresse à l'ensemble de la cellule élémentaire en considérant le domaine \mathcal{D}_{1+2} , ce qui a été écrit dans le paragraphe précédent est toujours vrai. Une inégalité similaire est obtenue mais cette fois sur l'intégralité du domaine $W_{\mathcal{D}_{1+2}}^3 - W_{\mathcal{D}_{1+2}}^2 < 0$ ainsi, l'apparition d'une cavité permet toujours au système de consommer une partie de l'énergie disponible.

TABLEAU 14.1 – Bilan d'énergie pour les 9 simulations (méthode 1).

		$\frac{W_{D_2}^2}{W_{D_2}^1}$			$\frac{W_{D_1}^3 - W_{D_1}^2}{W_{D_2}^1}$		
		$\Lambda/4$	$\Lambda/6$	$\Lambda/10$	$\Lambda/4$	$\Lambda/6$	$\Lambda/10$
R_n	r_c						
	$\Lambda/2$	0.84	0.83	0.83	-1.92	-1.96	-1.96
	Λ	1.24	1.22	1.22	-2.53	-2.50	-2.45
	2Λ	2.30	2.28	2.22	-3.89	-3.77	-2.85

TABLEAU 14.2 – Bilan d'énergie pour les 9 simulations (méthode 2).

		$\frac{W_{D_2}^2}{W_{D_2}^1}$			$\frac{W_{D_1+D_2}^3 - W_{D_1+D_2}^2}{W_{D_2}^1}$		
		$\Lambda/4$	$\Lambda/6$	$\Lambda/10$	$\Lambda/4$	$\Lambda/6$	$\Lambda/10$
R_n	r_c						
	$\Lambda/2$	0.84	0.83	0.83	-2.76	-2.79	-2.78
	Λ	1.24	1.22	1.22	-3.77	-3.74	-3,66
	2Λ	2.30	2.28	2.22	-6.19	-6.13	-5.07

14.1.3 Conclusion

Les résultats obtenus par les simulations numériques répertoriés dans les tableaux 14.1 et 14.2 concernant respectivement $(W_{D_1}^3 - W_{D_1}^2) / W_{D_2}^1$ et $(W_{D_1+D_2}^3 - W_{D_1+D_2}^2) / W_{D_2}^1$ présentent des résultats du même ordre de grandeur et des tendances équivalentes, cela quelle que soit la méthode employée, le rayon relatif du nodule ou la distance inter-particulaire. Lorsque l'attention est portée exclusivement sur le domaine \mathcal{D}_1 , les valeurs du rapport $(W_{D_1}^3 - W_{D_1}^2) / W_{D_2}^1$ sont comprises entre -2 et -4 soit un facteur 2 entre les valeurs minimale et maximale. Si la cellule élémentaire entière est considérée, les valeurs sont cette fois comprises entre -3 et -6 et toujours avec l'existence d'un facteur 2 entre les valeurs inférieure et supérieure. Dès lors, les résultats présentés laissent à penser que, dans le cadre d'une étude basée sur des bilans énergétiques entre un matériau renforcé et un matériau renforcé où une cavité est née entre deux nodules, les influences liées à la taille relative du nodule et à la distance inter-particulaire sont du second ordre.

14.2 LA TENSION DE SURFACE

14.2.1 Détermination de la taille minimale de la cavité

Toute cavité est soumise à une tension de surface qui tend à la refermer. Dès lors, la cavité croît lorsque la contrainte est supérieure à la contrainte appliquée aux parois, contrainte équivalente à une dépression et qui se caractérise par le rapport entre la tension de surface par le rayon de la cavité supposée ici sphérique. En effet, la contrainte s'appliquant sur la cavité se détermine comme suit :

$$p = \frac{\gamma}{r_1} + \frac{\gamma}{r_2} \quad (14.7)$$

Puisque nous prenons l'hypothèse de la sphéricité de la cavité, l'équation 14.7 se simplifie en $p = 2\gamma/r$ avec γ la tension de surface et r le rayon de la cavité. Ainsi, pour un champ de contraintes donné, il existe un rayon critique de la cavité à partir duquel la cavité ne se résorbe pas. Il existe également un rayon à partir duquel l'effet de la dépression est à négliger. Il est possible de négliger la tension de surface si la contrainte appliquée aux parois de la cavité est de l'ordre du MPa. Ainsi, en supposant la sphéricité de la cavité et en considérant la tension de surface du PA11 ($\gamma = 0.03 \text{ N.m}^{-1}$), il vient :

$$(r_c)_{max} = \frac{2\gamma}{10^6} = 60 \text{ nm} \quad (14.8)$$

L'énergie élastique du domaine \mathcal{D}_2 s'obtient en appliquant la relation 14.1 sur le volume \mathcal{D}_2 , qui correspond ici à une demi-sphère de rayon r_c .

$$W_{\mathcal{D}_2}^1 = \int_v w.dv = \frac{2\pi r_c^3}{3} w \quad (14.9)$$

Lorsque le domaine \mathcal{D}_2 est considéré comme une cavité soumise à une dépression, l'énergie de création de surface se traduit comme

$$W_s = \gamma_s S_c = \gamma 2\pi r_c^2 \quad (14.10)$$

avec S_c l'aire de la cavité (d'une demi-sphère) et γ_s la tension de surface.

Pour que la cavité puisse croître, il est nécessaire que l'énergie élastique engendrée par la dépression $W_{\mathcal{D}_2}^1$ soit supérieure à l'énergie de création de surface W_s . Cela se traduit par l'inégalité suivante :

$$\alpha \frac{2\pi r_c^3}{3} w - \gamma 2\pi r_c^2 \geq 0 \quad (14.11)$$

avec α un facteur dépendant de la configuration étudiée en terme de rayon relatif de nodule d'après le tableau 14.2 et qui varie de 3 à 6.

La résolution de l'inégalité 14.11 permet de déterminer un rayon critique de cavité $(r_c)_c$ à partir duquel la cavité résiste à la dépression et entre dans une phase de croissance.

$$(r_c)_c = \frac{\gamma 2\pi}{\alpha \frac{2\pi}{3} w} = \frac{3\gamma}{\alpha w} \quad (14.12)$$

Si l'on considère l'état 1, soit une matrice de PA11 ne comportant ni seconde phase ni cavité à laquelle on applique une contrainte de l'ordre de celle officiant en sommet de préfièvre à l'amorçage, c'est-à-dire les champs de contraintes et de déformations obtenus lors des simulations numériques en flexion 3 points à 0°C et 50 mm.min^{-1} dans le cas du PA11 (chapitre 11). Les champs de contraintes et déformations sont uniformes et sont définis comme suit :

$$\underline{\underline{\sigma}} = \begin{pmatrix} 96 & 0 & 0 \\ 0 & 73 & 0 \\ 0 & 0 & 96 \end{pmatrix} \quad (14.13)$$

$$\underline{\underline{\epsilon}} = \begin{pmatrix} 0.021 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0.021 \end{pmatrix} \quad (14.14)$$

Dans la littérature, la tension de surface du polyamide 11 s'élève à 0.03 N.m^{-1} . Ainsi, dans un premier temps, si on considère $\sigma_y = 0$ alors il vient

$$r_c = \frac{2\gamma}{p} = 0.68 \text{ nm} \quad (14.15)$$

avec $p = \text{Tr}(\underline{\underline{\sigma}}) / 3 = 88 \text{ MPa}$, la dépression.

Si on applique les équations 14.9 et 14.10, on obtient :

$$\frac{W_{D_2}^1}{(r_c)_c^3} = 4.22 \cdot 10^6 \text{ J} \quad (14.16)$$

$$\frac{W_s}{(r_c)_c^2} = 0.1884 \text{ J} \quad (14.17)$$

et $(r_c)_c \approx 0.5 \text{ nm}$. Il faut donc que le rayon d'une cavité soit supérieur ou égale à 0.5 nm pour que celle-ci ne disparaisse pas sous l'effet de la tension de surface.

Dans le cas d'une croissance de cavité sphérique sous traction équi-triaxiale en élasticité plasticité parfaite et dans un milieu infini, Hill (1950) établit que la paroi interne de la cavité se déforme plastiquement dès que la contrainte atteint une valeur égale aux deux tiers du seuil plastique en traction uniaxiale.

$$\frac{2\gamma}{r_c} = \frac{2}{3}\sigma_y \quad (14.18)$$

La contrainte obtenue lorsqu'est appliquée la formule de Hill (1950) avec $r_c = 0.5 \text{ nm}$ donne $2\sigma_y/3 = 120 \text{ MPa}$. Ainsi, dans les conditions de Hill, pour le rayon critique déterminé en élasticité, la cavité ne peut pas croître.

Ce paragraphe permet de borner les domaines de validité des calculs numériques. En effet, concernant les calculs numériques basés sur la mécanique des milieux continus, il apparaît nécessaire de savoir pour quel plage de rayons de cavité, nous devons considérer la tension de surface et à partir de quel rayon les outils liés à la MMC deviennent insuffisants et impliquent d'effectuer des simulations en dynamique moléculaire. Les bornes sont schématisées sur la figure 14.5. En effet, si nous considérons une dépression de l'ordre de 1% de σ_y (soit de l'ordre du MPa), la taille de la cavité avoisine 60 nm et le terme $2\gamma/r$ devient négligeable. Ainsi, nous pouvons considérer que, pour un rayon de la cavité proche de 100 nm , il n'est plus nécessaire de prendre en compte la tension de surface. La mécanique des milieux continus atteint ses limites lorsque l'on s'intéresse à des cavités de l'ordre du nanomètre et nécessite l'intervention d'un outil plus approprié qui est la dynamique moléculaire.

14.2.2 Simulations numériques

Ce paragraphe est dédié à la prise en compte, lors des simulations numériques, de la dépression appliquée à la cavité. Pour ce faire, une

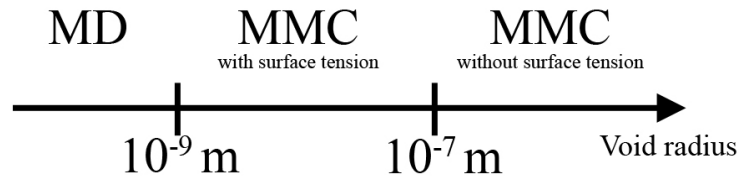


FIGURE 14.5 – Les différentes échelles de taille d'une cavité avec les outils numériques associés.

dépression équivalente à $2\gamma/r$ est appliquée sur les parois de la cavité dont la valeur est re-calculée à chaque pas de temps par l'intermédiaire de la détermination du volume. Ce calcul est une première approche car la cavité reste assimilée à une sphère en cours de calcul (la courbure est supposée identique en chaque point).

Pour chaque maillage présenté précédemment, plusieurs cas sont traités : la croissance ou non d'une cavité dans un milieu composé uniquement de polyamide 11 et dans un milieu de PA11 renforcé par un nodule de caoutchouc. Le calcul analytique donnant un rayon critique de la cavité de l'ordre de 0.5 nm , pour chaque cas de chaque maillage, deux calculs sont réalisés : un premier avec un rayon de cavité égal à 1 nm et un second avec une cavité dix fois plus petite soit 1 \AA . Evidemment, la considération d'une cavité de taille si petite et assimilable à la taille d'un atome ne relève d'aucun sens physique ; il s'agit simplement d'une considération purement calculatoire. Il semblerait que pour le premier cas, en élasticité linéaire, l'augmentation du volume de la cavité soit constatée et pour le second, sa diminution. Cette série de calculs permet ainsi de vérifier que le résultat obtenu analytiquement est reproductible numériquement, d'étudier l'effet de la présence d'un nodule de caoutchouc et enfin, de s'intéresser aux effets de la taille des nodules et de la distance inter-particulaire.

Les conditions aux limites et de chargement sont les mêmes que celles explicitées précédemment dans le sens où l'on considère un volume élémentaire localisé en pointe de fissure. Le module de Young et le coefficient de Poisson du nodule sont définis comme suit : $E_r = 1 \text{ MPa}$ et $\nu_r = 0.49992$. Afin de limiter les paramètres qui diffèrent entre la matrice de PA11 et le nodule, les modules de compression sont pris égaux.

$$K_{PA11} = \frac{E_{PA11}}{3(1 - 2\nu_{PA11})} = K_r = 2 \text{ GPa} \quad (14.19)$$

Le module de Young du PA11 n'est pas modifié et reste égal à 1500 MPa , $\nu_{PA11} = 0.38$.

14.2.2.1 Vérification du calcul analytique

On effectue dans un premier temps un calcul relativement simple que l'on pourrait considérer comme un calcul sur une cellule de polyamide 11 contenant une cavité dont la taille correspond à une fraction volumique de 1%. Est appliquée sur cette cavité la tension de surface. Lors du premier calcul en élasticité linéaire, un rayon de 1 nm lui est attribué puis lors

du second 0.1 nm . Dès lors, on s'attend à observer, dans le premier cas, l'augmentation du volume de la cavité et dans le second, sa diminution. La figure 14.6 présente le maillage utilisé et les isovaleurs de la contrainte de von Mises pour les deux tailles de cavités considérées en fin de calcul et permet de bien mettre en évidence la différence de volume des deux cavités. Afin de rendre les choses moins abstraites, un calcul de variation de volume est réalisé. Lorsque le rayon initial de la cavité est considéré comme égal à 1 nm , le volume de la cavité croît d'environ 18%; lorsque ce dernier est dix fois inférieur, le volume de la cavité diminue de 4%. Ce calcul confirme donc le calcul analytique effectué précédemment en désignant le rayon critique de la cavité (r_c) de l'ordre de 1 nm .

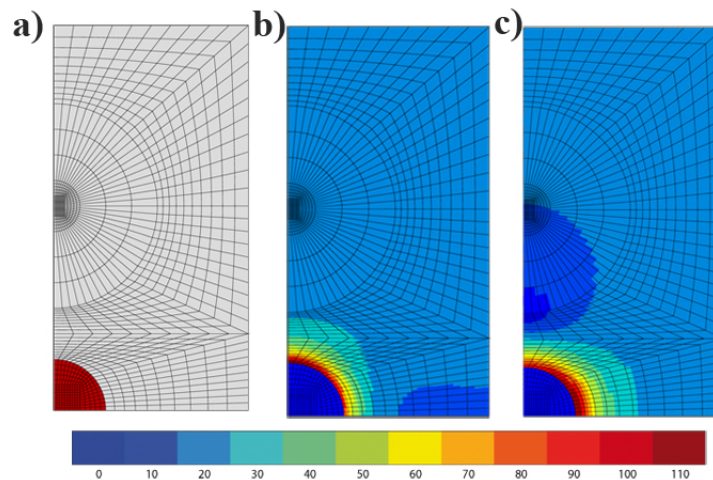


FIGURE 14.6 – Calcul en élasticité linéaire sur du PA11 : a) maillage de la cellule ; b) isovaleurs de σ_{eq} pour une cavité de 1 nm ; c) isovaleurs de σ_{eq} pour une cavité de 0.1 nm .

Les mêmes calculs sont cette fois effectués sur une cellule équivalente mais contenant également un nodule de caoutchouc dont la fraction volumique est prise égale à 10%. La fraction volumique de cavité reste de l'ordre de 1%. Ce calcul permet de s'intéresser, dans un cas simple, à l'éventuel effet de la présence d'un nodule. Le maillage et les isovaleurs de la contrainte de von Mises sont observables sur la figure 14.7 et attestent d'un résultat similaire. Cependant, les calculs de la variation de volume mettent en évidence quelques différences. Dans le cas 1, l'augmentation du volume de la cavité n'atteint que 14% et sa diminution, dans le cas 2, apparaît être plus importante étant donné que la variation de volume atteint -8% . Dès lors, il semblerait que dans ces conditions de taille de nodule et de distance inter-particulaire, la présence d'un nodule minimise l'augmentation du volume.

14.2.2.2 Préambule

Dans la suite du chapitre, deux nouveaux cas sont considérés :

- Cas PA11 : matrice de polyamide 11 contenant une cavité ;
- Cas RT-PA11 (Rubber Toughened PA11) : matrice de polyamide 11 contenant deux nodules et une cavité localisée à mi-distance inter-particulaire.

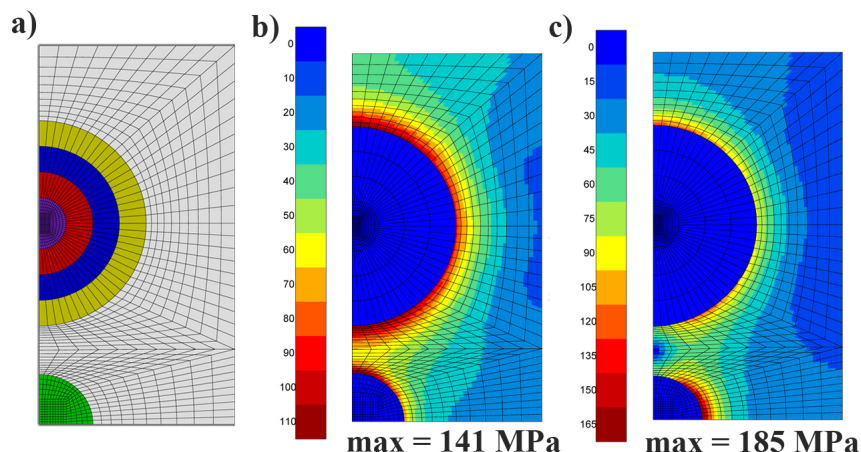


FIGURE 14.7 – Calcul en élasticité linéaire sur du PA11 contenant un nodule : a) maillage de la cellule ; b) isovaleurs de σ_{eq} pour une cavité de 1 nm ; c) isovaleurs de σ_{eq} pour une cavité de 0.1 nm.

Les neuf discrétisations présentées en début de chapitre sont conservées. Les paragraphes suivants sont dédiés à l'effet du comportement de la matrice (élastique, élasto-plastique, élasto-visco-plastique et élasto-visco-plastique avec rhéodurcissement) sur les conditions de développement d'une craquelure entre deux nodules.

14.2.2.3 En élasticité linéaire

Le tableau 14.3 répertorie les variations de volume obtenues pour les deux tailles de cavités (1 nm et 0.1 nm) et les neufs maillages présentés précédemment fonction de la demi-distance interparticulaire et du rayon du nodule dans le cas du PA11 non renforcé. Evidemment pour ce cas, les notions de distance interparticulaire et de rayon de nodule n'ont aucun sens et en réalité, les neufs maillages permettent de s'intéresser à la variation de volume en fonction de la fraction volumique de cavité. En effet, la taille de la cellule évolue selon les maillages mais le rayon de la cavité reste fixe. Les résultats présentés dans le tableau 14.3 associés à la figure 14.8 indiquent clairement qu'il n'y a aucune influence de la fraction volumique de cavités sur l'évolution de la variation de volume que le rayon soit pris égal à 1 nm ou 0.1 nm.

Lorsque r_c est fixé à 1 nm, la série de calculs permet également de s'intéresser à la précision de la simulation numérique. Les fluctuations de la variation de volume sont très faibles attestant d'une précision correcte. Seule une formulation fait défaut pour $R_n = 2\Lambda$ et $r_c = \Lambda/10$ pour laquelle la variation de volume atteint environ 23%. Tout se passe comme si nous considérons une cavité en milieu infini. Dès lors, le matériau ne voit pas la cavité, engendrant l'apparition d'effets de bords et a fortiori des problèmes numériques. Ce maillage est donc écarté dans la suite de l'étude.

On considère le cas 2 c'est-à-dire une cellule contenant une matrice de PA11, un nodule et bien sûr une cavité. Cette fois, les notions de distance

TABLEAU 14.3 – Variations de volume de la cavité dans le cas d'une cellule de PA11 comportant une cavité en élasticité linéaire.

r_c		$r_c = 1 \text{ nm}$			$r_c = 0.1 \text{ nm}$		
		$\Lambda/4$	$\Lambda/6$	$\Lambda/10$	$\Lambda/4$	$\Lambda/6$	$\Lambda/10$
R_n	$\Lambda/2$	18.56%	18.74%	18.79%	-4.22%	-4.36%	-4.31%
	Λ	18.79%	18.79%	18.41%	-4.5%	-4.5%	-4.02%
	2Λ	18.36%	18.17%	23.52%	-3.79%	-3.62%	–

interparticulaire et de rayon de nodule ont un sens et cette série de calculs numériques en élasticité linéaire devraient permettre d'observer si la naissance d'une craquelure entre deux nodules est influencée par ces deux paramètres. Les résultats concernant la variation de volume sont reportés dans le tableau 14.4 et tracés en fonction de la fraction volumique de vide sur la figure 14.8. Si l'on compare les variations de volume de la cavité obtenues avec celles du cas de référence, on s'aperçoit que celles-ci fluctuent quelque peu et qu'ainsi il serait possible d'identifier une éventuelle influence soit de la distance interparticulaire soit de la taille du nodule soit des deux. Cependant ces fluctuations s'avèrent infimes et confèrent le sentiment qu'en élasticité, ces paramètres n'ont pas un impact particulier sur la naissance d'une craquelure. La présence de nodules semblent accroître très légèrement la variation de volume lorsque $r_c = 1 \text{ nm}$ et la minimiser quand $r_c = 0.1 \text{ nm}$ (variations de l'ordre de 2 – 3%).

TABLEAU 14.4 – Variations de volume de la cavité dans le cas d'une cellule de PA11 comportant deux nodules de caoutchouc et une cavité en élasticité linéaire.

r_c		$r_c = 1 \text{ nm}$			$r_c = 0.1 \text{ nm}$		
		$\Lambda/4$	$\Lambda/6$	$\Lambda/10$	$\Lambda/4$	$\Lambda/6$	$\Lambda/10$
R_n	$\Lambda/2$	19.84%	19.84%	19.84%	-3.55%	-3.55%	-3.55%
	Λ	21.27%	20.79%	20.32%	-3.07%	-4.5%	-4.5%
	2Λ	21.75%	20.79%	26.52%	-3.79%	-3.62%	–

14.2.2.4 En élasto-plasticité

En élasto-plasticité, l'ensemble des calculs considérant un rayon initial de la cavité de 0.1 nm diverge. Ce résultat n'est en rien surprenant et traduit simplement une réalité physique. La cavité collapse très vite et son rayon diminuant engendre une tension de surface encore plus importante. Dès lors, les éléments se déforment énormément rendant impossible la suite du calcul. Le tableau 14.5 réunit donc uniquement les variations de volume pour une cavité initiale de 1 nm pour les deux cas considérés : PA11 et RTPA11.

Que l'on considère le cas PA11 ou le cas RT-PA11, il apparaît clair que l'apparition de la plasticité facilite considérablement la variation de volume de la cavité puisque celle-ci atteint des valeurs supérieures à 100%.

La présence des nodules a une nouvelle fois tendance à favoriser l'augmentation de la variation de volume de la cavité dans le cas où celle-ci doit

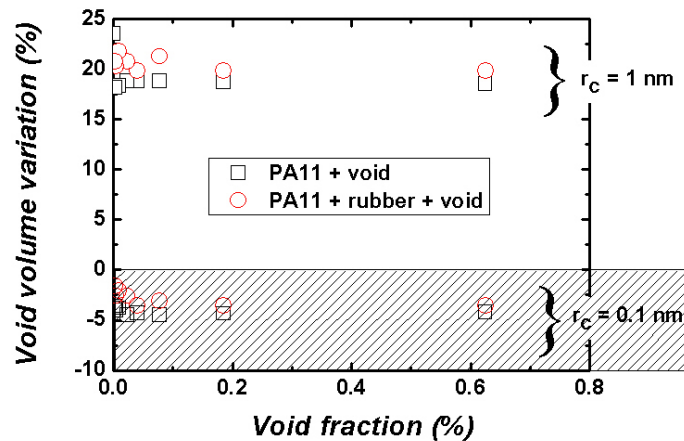


FIGURE 14.8 – Variation du volume de la cavité en fonction de la fraction volumique en élasticité linéaire.

TABLEAU 14.5 – Variations de volume de la cavité dans les deux cas pour $r_c = 1 \text{ nm}$ en élasto-plasticité.

$R_n \backslash r_c$	cas PA11			cas RT-PA11		
	$\Lambda/4$	$\Lambda/6$	$\Lambda/10$	$\Lambda/4$	$\Lambda/6$	$\Lambda/10$
$\Lambda/2$	159.7%	225.15%	243.29%	218%	282%	277%
Λ	250.9%	236.1%	146%	640%	366%	178%
2Λ	174%	123.9%	—	371%	175%	—

croître ($r_c = 1 \text{ nm}$). Sous certaines conditions de distance interparticulaire et de taille de nodule, la croissance de la cavité perturbe le nodule et engendre le déploiement de la contrainte maximale au sein du ligament séparant les deux entités ; il s'agit des maillages 1 ($\Lambda = 4r_c$ et $R_n = 2r_c$), 2 ($\Lambda = 6r_c$ et $R_n = 3r_c$), 4 ($\Lambda = R_n = 4r_c$), 5 ($\Lambda = R_n = 6r_c$), 6 ($\Lambda = 4r_c$ et $R_n = 8r_c$) et 7 ($\Lambda = 6r_c$ et $R_n = 12r_c$). Cependant, si la contrainte maximale est plus ou moins répartie dans le ligament, sa valeur n'est pas affectée par Λ ou R_n et vaut toujours 30 MPa .

Ayant supposé la sphéricité des cavités, il est important de s'intéresser à la forme de celles-ci en fin de calcul. Il est évident que, si leur forme n'est plus assimilable à celle d'une sphère, nous sortons du domaine de validité de nos hypothèses et dès lors, les résultats doivent être traités en conséquence. Par exemple, le résultat obtenu figure 14.9 dans le cas $R_n = \Lambda$ et $r_c = \Lambda/4$ est à considérer avec précaution, la cavité n'étant plus assimilable à une sphère. Dès lors, la tension de surface ne peut plus se réduire à $2\gamma/r$ mais doit reprendre son expression de base c'est-à-dire $\gamma/r_1 + \gamma/r_2$.

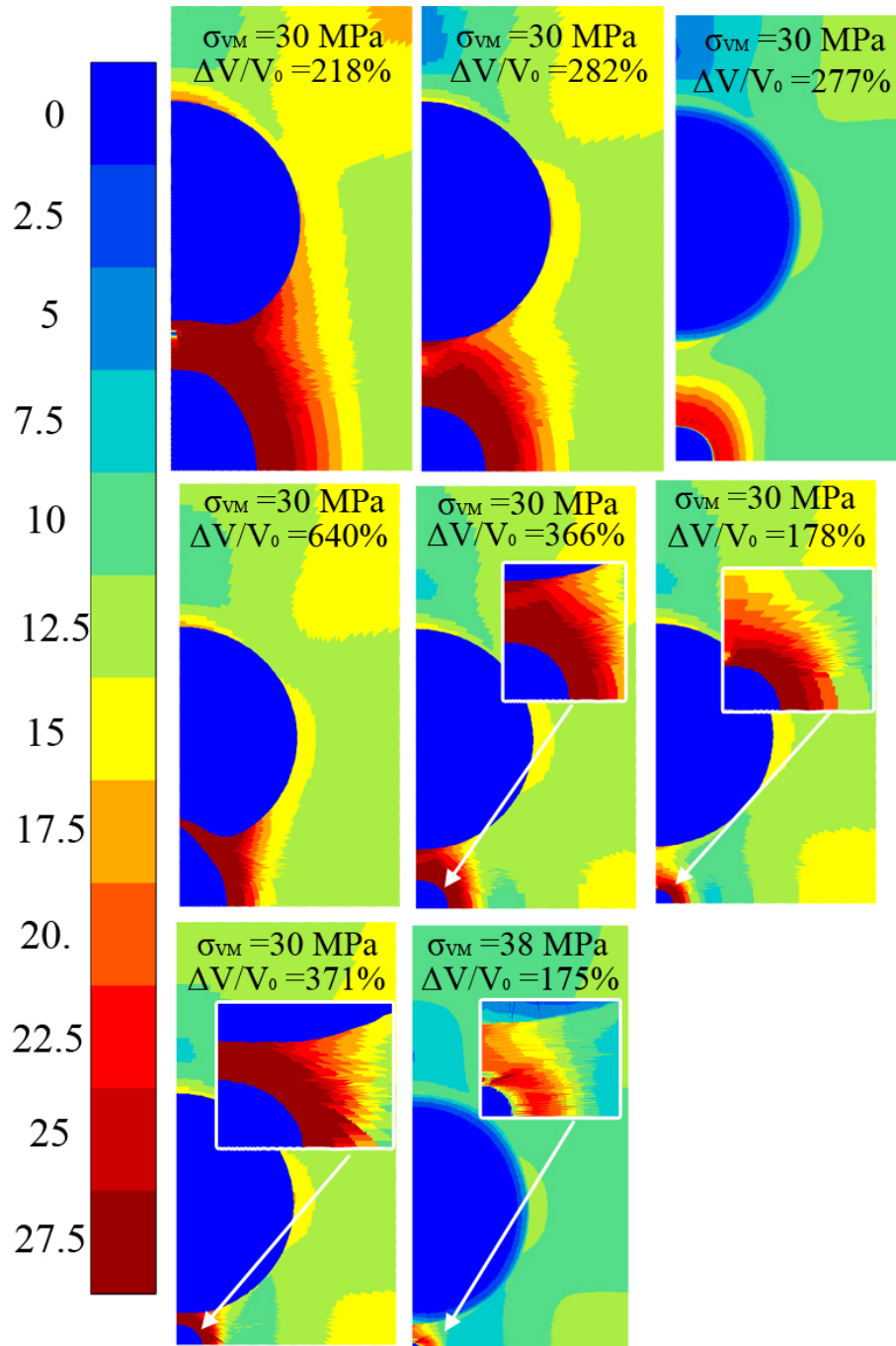


FIGURE 14.9 – Isovaleurs de la contrainte équivalente de von Mises pour chaque maillage en élasto-plasticité dans le cas RT-PA11 (cavité et nodule en bleu); la contrainte équivalente de von Mises maximale et la variation de volume de la cavité sont écrites pour chaque maillage.

14.2.2.5 En élasto-visco-plasticité

Est abordé ici un comportement mécanique plus réaliste puisque prenant en compte les phénomènes visqueux mais qui ne correspond pas au comportement mécanique de notre matériau étant donné que nous ne considérons que l'écroutissage isotrope sans la fonction supplémentaire

décrivant le rhéodurcissement. Comme précédemment les deux cas sont traités (présence ou non de nodules de caoutchouc) dont chacun comprend deux sous-cas ($r_c = 1 \text{ nm}$ et $r_c = 0.1 \text{ nm}$). Les résultats obtenus suite aux simulations numériques dites de référence soit sans nodules et avec nodules sont répertoriés dans le tableau 14.6 pour un rayon initial $r_c = 1 \text{ nm}$. Les résultats pour $r_c = 0.1 \text{ nm}$ sont disponibles en annexe F.

Comme pour les cas précédents, la présence du nodule semble favoriser l'augmentation de la variation de volume de la cavité lorsque son rayon est égal à 1 nm . Si nous faisons abstraction du maillage pour lequel $\Lambda = 10r_c$ et $R_n = 20r_c$ qui donne des résultats étranges, probablement engendrés par la finesse du maillage, qu'il y ait absence ou non de nodules, aucune variation significative liée à la modification des deux paramètres d'entrée ne transparait. En effet, des différences existent selon le maillage impliqué mais les évolutions de la variation de volume apparaissent être du second ordre par rapport à ce que l'on cherche à étudier.

TABLEAU 14.6 – Variations de volume de la cavité dans les deux cas pour $r_c = 1 \text{ nm}$ en élasto-visco-plasticité.

		PA11			RT-PA11		
R_n	r_c	$\Lambda/4$	$\Lambda/6$	$\Lambda/10$	$\Lambda/4$	$\Lambda/6$	$\Lambda/10$
		$\Lambda/2$	45.63%	46.1%	50.4%	53.74%	49.92%
	Λ	47.06%	46.10%	42.28%	64.25%	54.70%	45.15%
	2Λ	39.42%	36.55%	—	61.38%	49.92%	—

La figure 14.10 dévoile les isovaleurs de la contrainte de von Mises pour le cas RT-PA11 avec $r_c = 1 \text{ nm}$ (le sous-cas 2, $r_c = 0.1 \text{ nm}$ est disponible en annexe F). Lorsque le rayon initial de la cavité est considéré égal à 1 nm , la contrainte maximale de von Mises atteint 60 MPa . Selon la configuration, celle-ci ne varie que très peu.

La prise en compte de la viscosité amenuise considérablement les déformations des nodules mises en évidence en élasto-plasticité lorsque le rayon initial de la cavité est égal à 1 nm . En effet, les variations de volume de la cavité sont moindres et dès lors, les nodules sont moins affectés. De plus, on s'aperçoit que les valeurs de la contrainte équivalente de von Mises atteignent des valeurs équivalentes au double de celles rencontrées en élasto-plasticité. Ce résultat s'avère logique étant donné que l'apparition de la viscosité permet d'atteindre, pour une déformation donnée, une contrainte plus élevée engendré par l'augmentation de la vitesse de déformation.

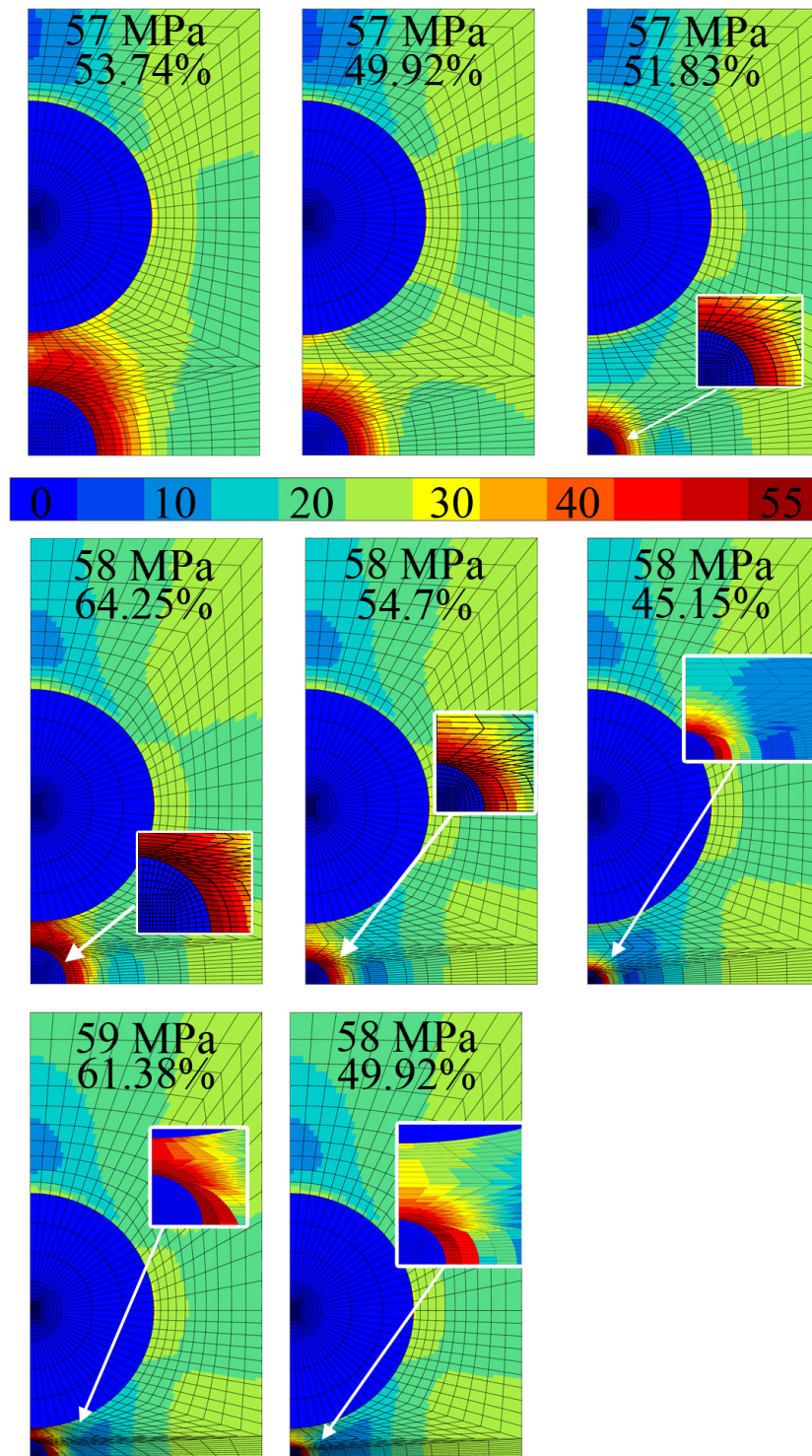


FIGURE 14.10 – Isovaleurs de la contrainte équivalente de von Mises pour chaque maillage en élasto-visco-plasticité sans rhéodurcissement dans le cas RT-PA11 pour $r_c = 1 \text{ nm}$ (cavité et nodule en bleu); la contrainte équivalente de von Mises maximale et la variation de volume de la cavité sont écrites pour chaque maillage.

14.2.2.6 Rôle du rhéodurcissement

Il a été souligné au cours du chapitre 8 que le comportement mécanique de nos matériaux était un comportement élasto-visco-plastique. Il a également été écrit que les matériaux (excepté le "aged P40") acquièrent une résistance supplémentaire à grande déformation engendrée par l'élongation des fibrilles, le rhéodurcissement. Ainsi des calculs numériques en élasto-visco-plasticité avec rhéodurcissement peuvent s'avérer intéressants d'une part car il s'agit du comportement réel de nos matériaux et d'autre part car ils permettraient éventuellement d'identifier l'influence du rhéodurcissement sur le comportement de la cellule élémentaire. Les variations de volume de la cavité sont répertoriées dans les tableaux 14.7 pour $r_c = 1 \text{ nm}$ (voir annexe F pour $r_c = 0.1 \text{ nm}$).

TABLEAU 14.7 – Variations de volume de la cavité dans les cas PA11 et RT-PA11 en visco-élasto-plasticité avec prise en compte du rhéodurcissement.

$R_n \backslash r_c$	PA11			RT-PA11		
	$\Lambda/4$	$\Lambda/6$	$\Lambda/10$	$\Lambda/4$	$\Lambda/6$	$\Lambda/10$
$\Lambda/2$	43.24%	46.58%	47.06%	49.92%	49.92%	48.49%
Λ	47.54%	46.58%	40.37%	63.29%	54.7%	45.15%
2Λ	40.37%	37.51%	—	56.13%	47.06%	—

L'ajout du rhéodurcissement au comportement mécanique de la matrice n'a que peu d'influence sur le développement de la cavité. Ce résultat s'avère guère surprenant étant donné que le temps de calcul est court (1s) et ainsi, n'offre pas le temps à la matrice d'atteindre ce stade. Des calculs plus longs ont été entrepris mais engendrent des instabilités de calculs. Une augmentation de la contrainte peut être constatée sur les isovaleurs présentées figure 14.11.

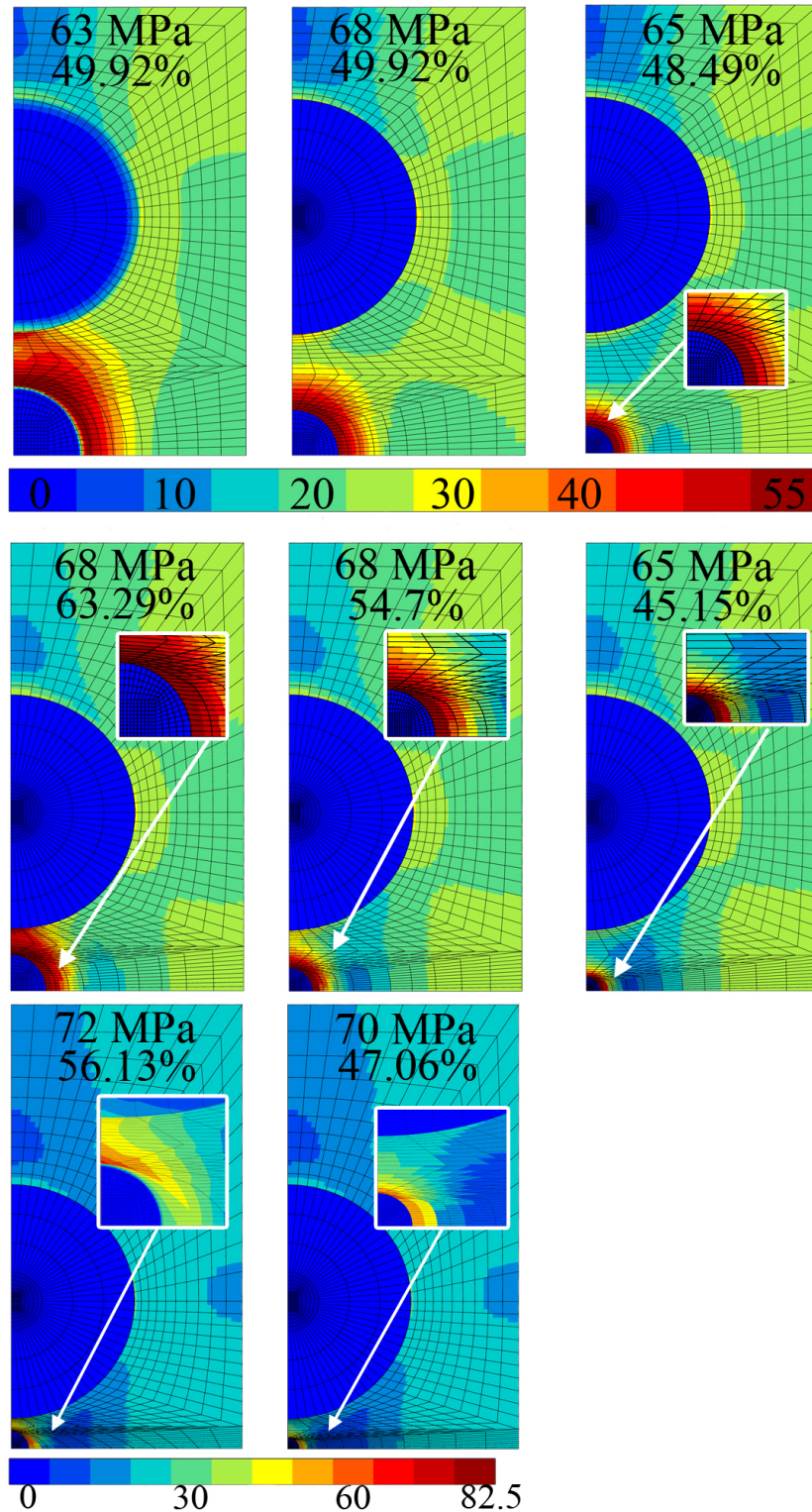


FIGURE 14.11 – Isovaleurs de la contrainte équivalente de von Mises pour chaque maillage en élasto-visco-plasticité avec rhéodurcissement dans le cas RT-PA11 pour $r_c = 1 \text{ nm}$ (cavité et nodule en bleu); la contrainte équivalente de von Mises maximale et la variation de volume de la cavité sont écrites pour chaque maillage.

14.2.2.7 Si les nodules de caoutchouc cavitent...

Au cours de ce paragraphe, nous considérons toujours une matrice élasto-visco-plastique de polyamide 11 contenant une cavité localisée entre deux nodules de caoutchouc qui ont cavité. Les figures 14.12, 14.13, 14.15 et 14.16 présentent respectivement les isovaleurs de la contrainte équivalente de von Mises, du taux de triaxialité des contraintes, de la contrainte de cisaillement et de la déformation plastique cumulée pour les huit discrétisations utilisées depuis le début de ce chapitre.

Le tableau 14.8 permet de comparer les variations de volume de la cavité ($r_c = 1 \text{ nm}$) lorsque le nodule est cavité et lorsqu'il ne l'est pas. Il s'avère que la cavitation du nodule engendre la réduction de la croissance du volume de la cavité, cela quelle que soit la configuration. Si l'on s'intéresse à la variation du volume du nodule cavité (tableau 14.9), celle-ci s'avère être une constante indépendante de la distance interparticulaire ou du rayon du nodule. Il est à noter que lorsque le nodule n'est pas cavité, sa variation de volume atteint quelques pourcents (5 – 6% pour $R_n = \Lambda/2$ et $r_c = \Lambda/4$).

TABLEAU 14.8 – Variations de volume de la cavité dans le RT-PA11 sans et avec cavitation des nodules en visco-élasto-plasticité avec prise en compte du rhéodurcissement.

		RT-PA11			RT-PA11 with cavitated rubber		
R_n	r_c	$\Lambda/4$	$\Lambda/6$	$\Lambda/10$	$\Lambda/4$	$\Lambda/6$	$\Lambda/10$
	$\Lambda/2$		49.92%	49.92%	48.49%	20.32%	22.71%
Λ		63.29%	54.7%	45.15%	24.14%	27.96%	28.44%
2Λ		56.13%	47.06%	–	19.37%	23.66%	–

TABLEAU 14.9 – Variations de volume du nodule dans le RT-PA11 avec cavitation des nodules en visco-élasto-plasticité avec prise en compte du rhéodurcissement.

R_n	r_c	$\Lambda/4$	$\Lambda/6$	$\Lambda/10$
	$\Lambda/2$		24.03%	23.89%
Λ		24.25%	24.34%	24.25%
2Λ		24.29%	24.33%	–

Les cartographies de σ_{eq} , dévoilées figure 14.12, mettent en évidence le fait que la contrainte maximale se localise autour du nodule et de la cavité, engendrant ainsi dans le ligament séparant les deux entités un champ de contrainte élevé. Les valeurs maximales sont de l'ordre de 100 MPa excepté pour les cas où $R_n = 2\Lambda$. Cependant, il apparaît que pour $R_n = 2\Lambda$, la cavité n'adopte plus une forme sphérique (1 distance est plus petite devant les 2 autres) et ainsi, sort du domaine de validité de nos hypothèses. La comparaison des résultats obtenus avec ceux présentés sur la figure 14.11, dans le cas où le nodule n'avait pas cavité, met en évidence que la cavitation du nodule génère un accroissement du niveau de contrainte.

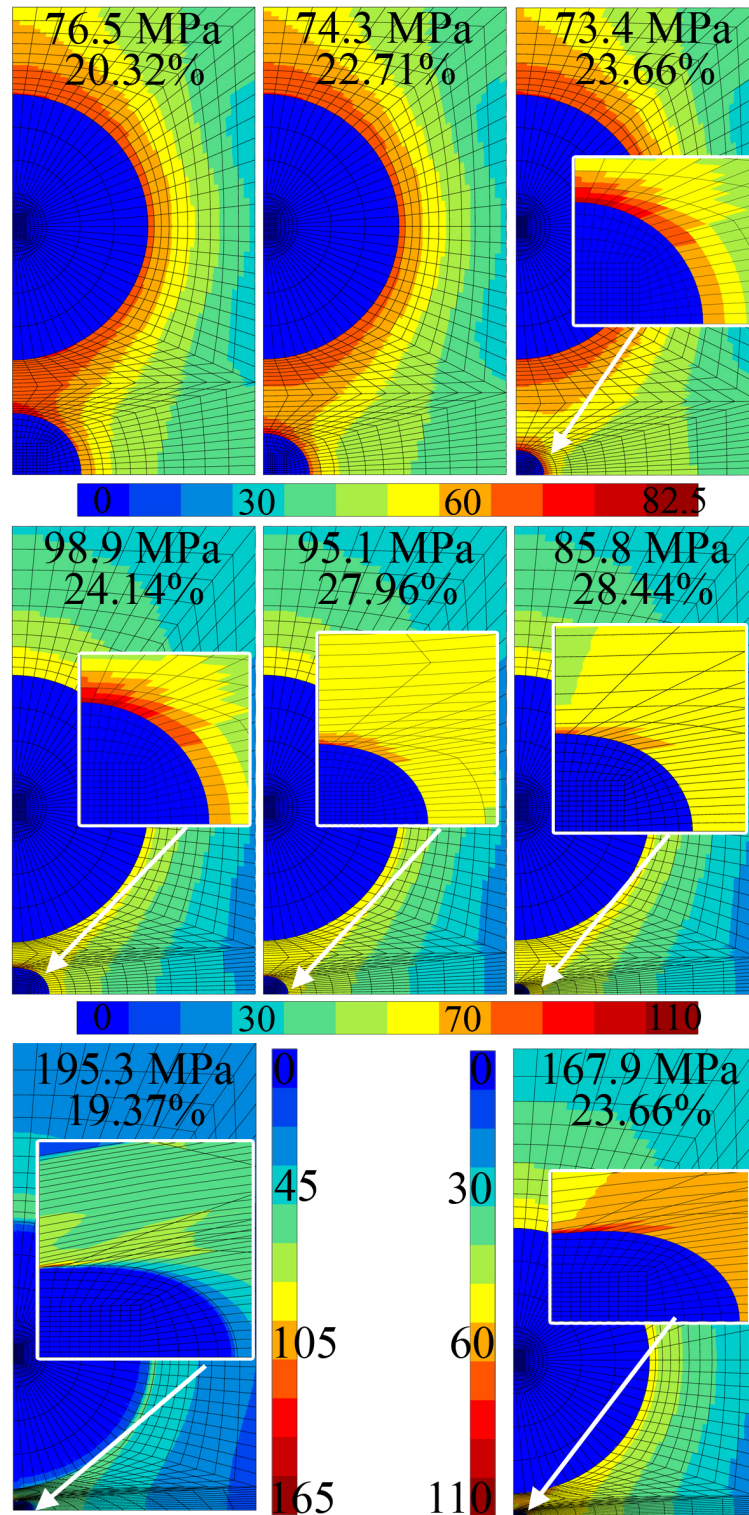


FIGURE 14.12 – Isovaleurs de la contrainte équivalente de von Mises pour chaque maillage en élasto-visco-plasticité avec rhéodurcissement dans le cas RT-PA11 avec cavitation totale des nodules pour $r_c = 1$ nm (cavité et nodule en bleu); la contrainte équivalente de von Mises maximale et la variation de volume de la cavité sont écrites pour chaque maillage.

La figure 14.13 s'intéresse à la répartition du taux de triaxialité. La cavitation du nodule allée à la présence d'une cavité permet de réduire le taux de triaxialité des contraintes aux abords de ces derniers. La distance interparticulaire Λ et le rayon du nodule R_n ne semble pas influencer sur les valeurs maximales atteintes qui se situent, quelle que soit la configuration étudiée, aux alentours de 3.

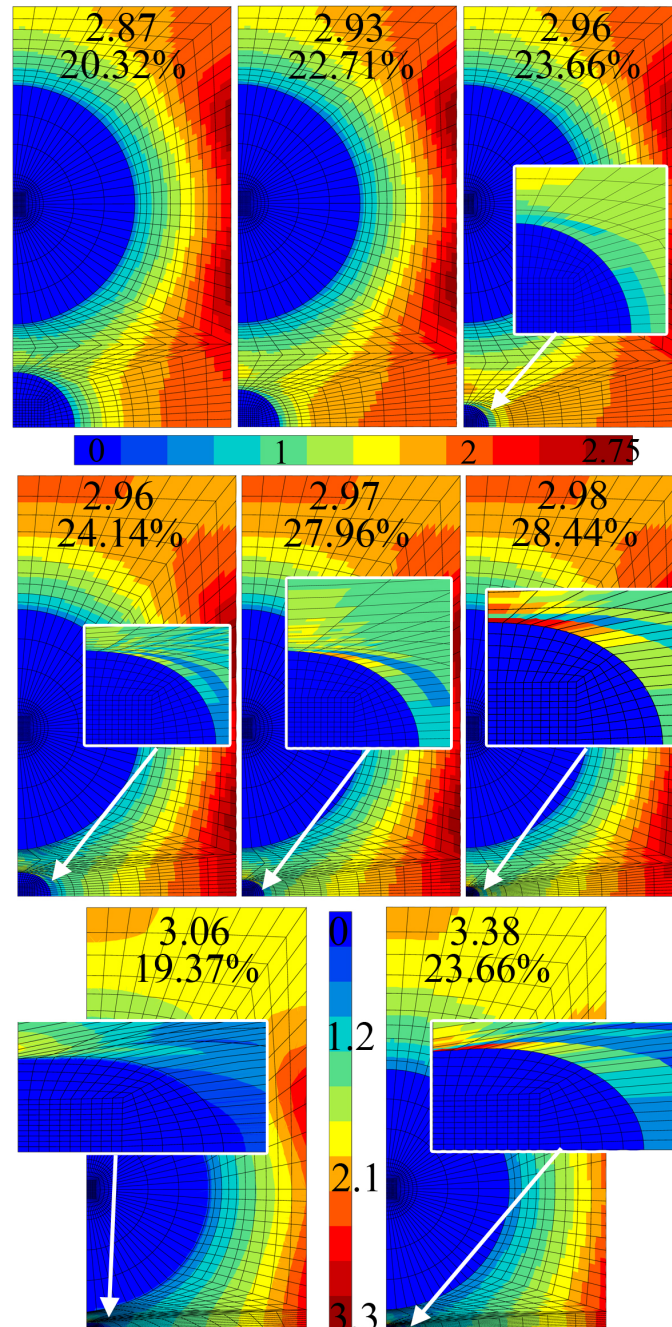


FIGURE 14.13 – Isovaleurs du taux de triaxialité des contraintes pour chaque maillage en élasto-visco-plasticité avec rhéodurcissement dans le cas RT-PA11 avec cavitation totale des nodules pour $r_c = 1$ nm (cavité et nodule en bleu); le taux de triaxialité maximal et la variation de volume de la cavité sont écrits pour chaque maillage.

La figure 14.14 s'intéresse à la répartition du taux de triaxialité des

contraintes dans le ligament entre les deux nodules en fin de calcul. Il est ainsi possible de voir si la distance interparticulaire ou le rayon du nodule influe localement sur la valeur du taux de triaxialité des contraintes. Il semble qu'un maximum local existe à mi-distance entre le nodule et la cavité. Ce maximum local varie d'ailleurs selon les configurations. En effet, on constate que pour R_n fixé, l'accroissement de la taille du trou engendre l'adoucissement du taux de triaxialité des contraintes.

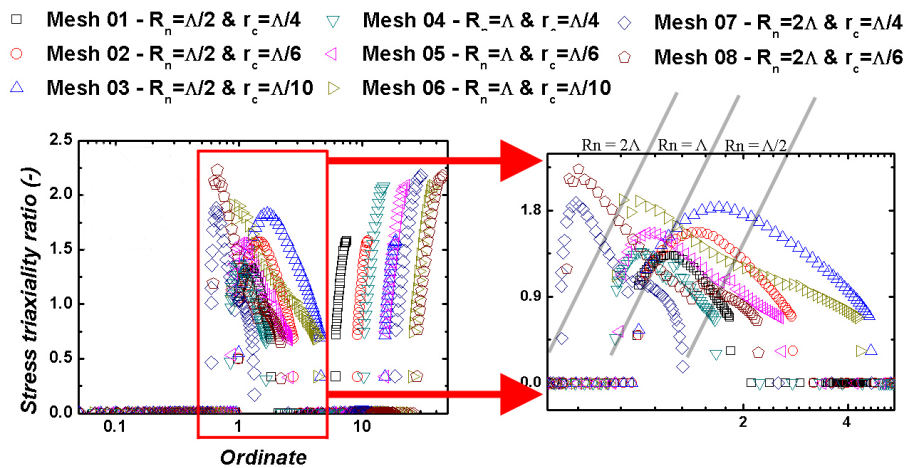


FIGURE 14.14 – Répartition du taux de triaxialité des contraintes en fin de calcul numérique le long de l'axe de symétrie et en particulier, au niveau du ligament séparant la cavité et le nodule cavité, pour chaque maillage en élasto-visco-plasticité avec rhéodurcissement dans le cas RT-PA11 avec cavitation totale des nodules pour $r_c = 1$ nm.

La distance interparticulaire tout comme le rayon des nodules influe également très peu sur les valeurs de la contrainte de cisaillement (figure 14.15). Cependant, la figure 14.16 met en évidence une dépendance de la déformation plastique cumulée p envers R_n qui est d'autant plus importante que R_n est grand. La valeur maximale se situe pour toutes les configurations considérées aux extrémités de la cavité.

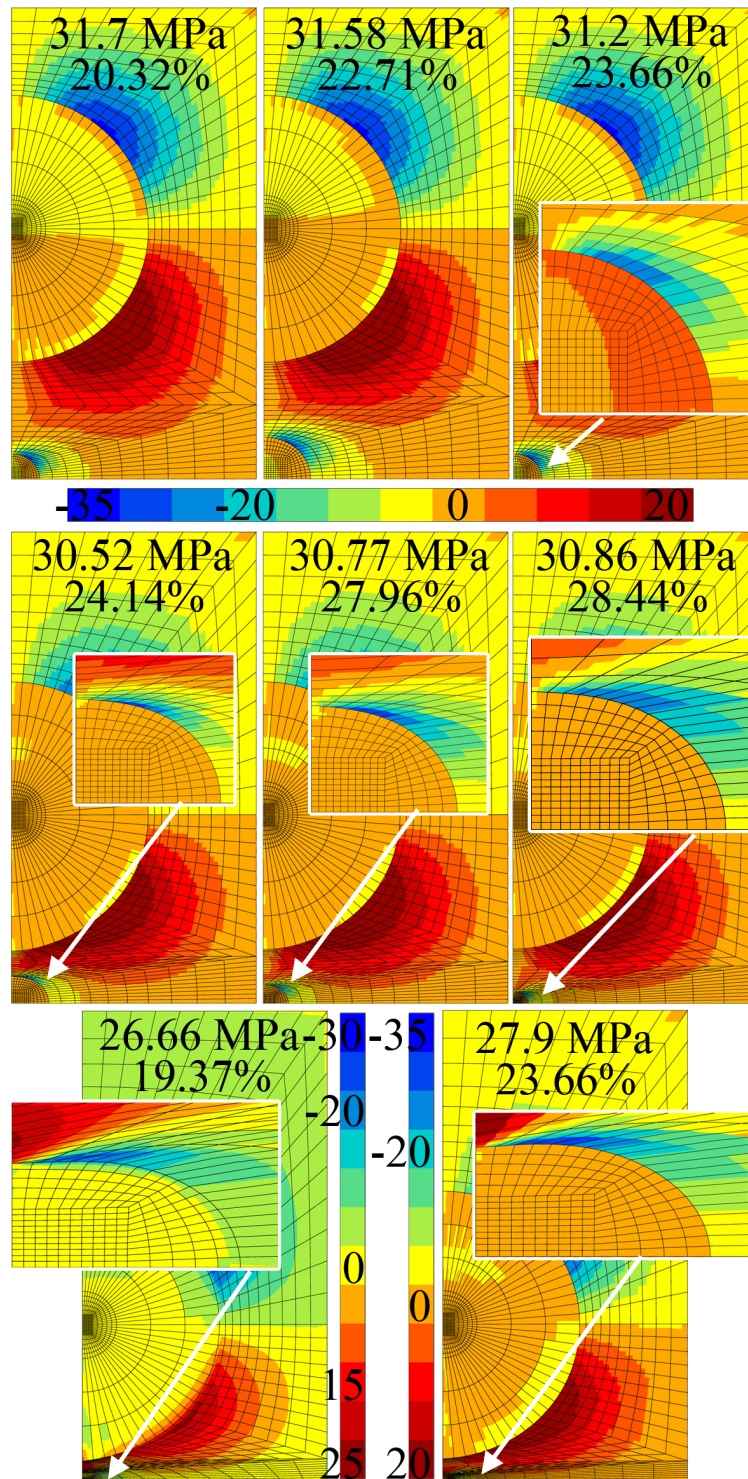


FIGURE 14.15 – Isovaleurs de la contrainte de cisaillement σ_{12} pour chaque maillage en élasto-visco-plasticité avec rhéodurcissement dans le cas RT-PA11 avec cavitation totale des nodules pour $r_c = 1 \text{ nm}$; la contrainte maximale de cisaillement et la variation de volume de la cavité sont écrites pour chaque maillage.

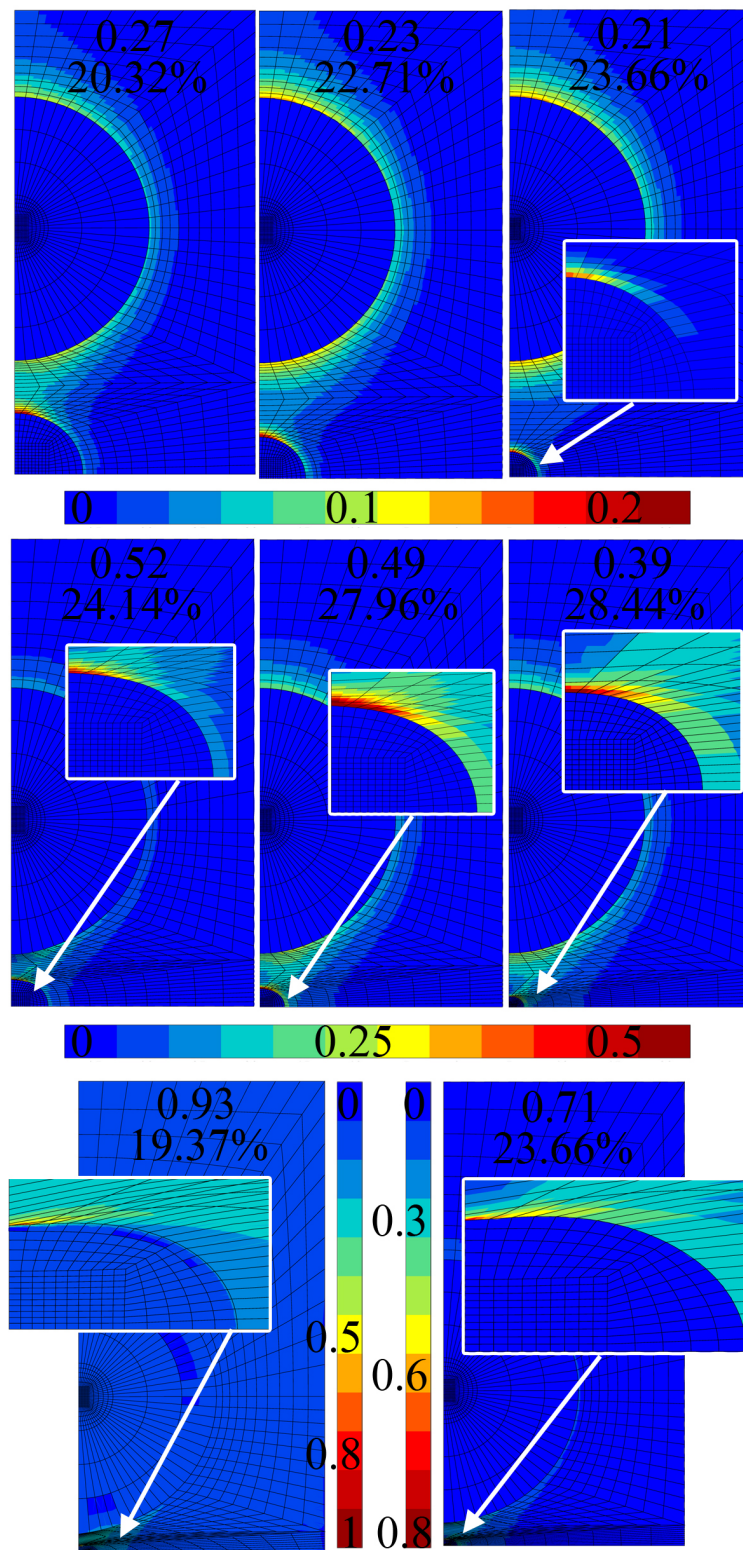


FIGURE 14.16 – Isovaleurs de la déformation plastique cumulée p pour chaque maillage en élasto-visco-plasticité avec rhéodurcissement dans le cas RT-PA11 avec cavitation totale des nodules pour $r_c = 1 \text{ nm}$; la déformation plastique cumulée maximale et la variation de volume de la cavité sont écrites pour chaque maillage.

14.3 COMPLÉMENTS : LIAISON ENTRE LA DYNAMIQUE MOLÉCULAIRE ET LA MÉCANIQUE DES MILIEUX CONTINUS

[Schnell \(2006\)](#) a effectué des simulations de dynamique moléculaire en utilisant le modèle générique *Coarse-Grained* (CGM) dans le but d'étudier le comportement général des polymères et s'est particulièrement intéressé à l'origine de la cavitation dans des fondus vitreux ("polymer melt") soumis à des grandes déformations. Pour ce faire, Schnell applique des tractions de forte amplitude à des boîtes de taille variable composées de chaînes CG de taille M , en respectant la condition nécessaire pour observer des craquelures $M > M_e$, où M_e est la longueur d'enchevêtrement¹, c'est-à-dire des chaînes longues ([Strobl 1997](#), [Baljon et Robbins 2001](#), [Rotler et Robbins 2003](#)).

Il est important de souligner le fait que les travaux de [Schnell \(2006\)](#) se portent sur des polymères vitreux et non, comme dans cette étude, sur des polymères semi-cristallins. L'idée développée ici est de comparer la mécanique des milieux continus et la dynamique moléculaire et ainsi de se rendre compte si, à ces échelles, la mécanique des milieux continus peut encore avoir un sens...

Au cours de ce paragraphe, nous utilisons une partie des résultats obtenus par [Schnell \(2006\)](#) par simulations de dynamique moléculaire afin de les comparer à des simulations par méthode des éléments finis. Les résultats issus des simulations de DM en question sont présentés sur la figure 14.17 : la variation de volume de la boîte comportant un nombre N de chaînes de polymère de longueur M est représentée, tout comme le rayon de la cavité, en fonction de la déformation. Au rayon de la cavité s'ajoute également le rayon de cette dernière après décharge, c'est-à-dire sans la part élastique.

En mécanique des milieux continus, il est impossible de faire apparaître une cavité en cours de calcul. Dès lors, nous sommes obligés d'effectuer les simulations DM de [Schnell \(2006\)](#) en considérant des cavités pré-existantes. Nous effectuons alors deux hypothèses fortes :

- la première consiste, à la manière de [Gurson \(1977\)](#), à considérer un matériau fictif contenant une cavité unique regroupant l'ensemble des cavités du matériau réel ;
- la seconde se localise dans le postulat de la forme de la cavité que nous considérons comme sphérique.

La figure 14.18 présente les évolutions de la contrainte (exprimée en unité de Lennard-Jones) obtenues par simulations de DM et par MEF en fonction de la déformation. Deux conclusions transparaissent de cette figure : la première réside dans la bonne concordance des courbes, preuve du fait que la MMC, utilisée avec précaution, peut être un outil performant pour ce type de calcul ; la seconde concerne la faible influence de $2\gamma/r$.

1. Dans un fondu liquide de polymère, de nombreux contacts existent entre les chaînes et deviennent d'autant plus conséquents lorsque les chaînes sont longues. Le nombre de contacts caractérise une forte interpénétration des chaînes dans l'espace défini par d'autres chaînes. Les chaînes ne peuvent pas s'entrecouper en raison des interactions de volume exclu. En raison de cette forte interpénétration résultent des enchevêtrements. La longueur

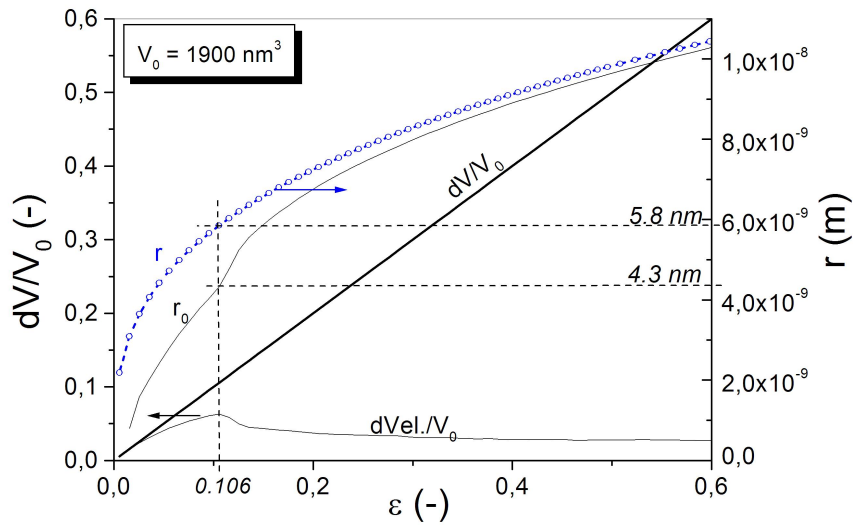


FIGURE 14.17 – Variation de volume de la boîte considérée et évolution du rayon de la cavité en fonction de la déformation : r le rayon de la cavité et r_0 le rayon de cette même cavité après déchargement.

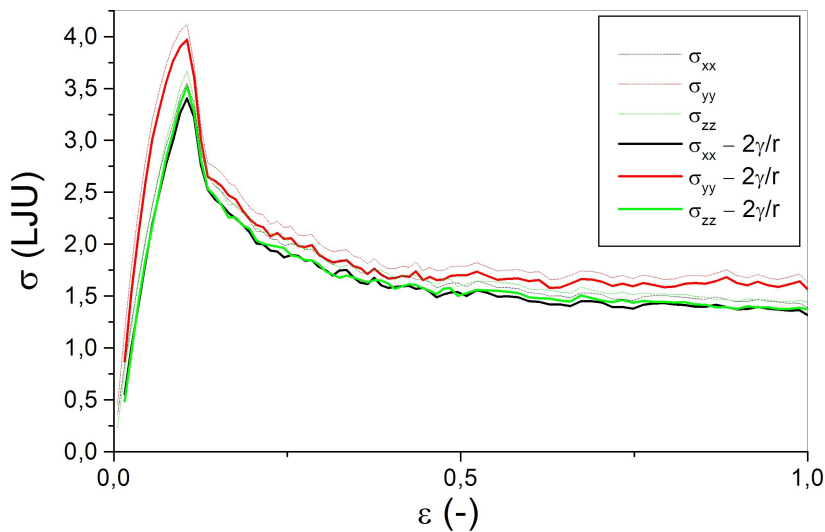


FIGURE 14.18 – Courbes contrainte-déformation obtenues en DM (pointillés) et MMC (trait plein).

Les écarts en terme de contrainte observés, entre les simulations en dynamique moléculaire et aux éléments finis, peuvent s'expliquer de plusieurs manières. L'assimilation de l'ensemble des cavités en une unique cavité force à faire abstraction de la possible interaction entre les cavités d'une part, et d'autre part, considérer un ensemble de cavités engendre-

de chaîne caractéristique, à partir de laquelle ces derniers peuvent être observés, est appelé longueur d'enchevêtrement, noté Me .

rait l'implication de cavités plus petites et donc des valeurs beaucoup plus grandes du terme $2\gamma/r$. La seconde hypothèse peut également intervenir afin d'expliquer les différences. Dès lors, il serait intéressant d'effectuer des simulations en considérant des distributions de cavités non obligatoirement sphériques de forme et diamètre variable où l'on pourrait également faire varier la densité. D'autres facteurs peuvent influencer les résultats comme par exemple la dépendance à la dépression hydrostatique. La dépression hydrostatique a tendance à diminuer le champ de contrainte et à faciliter l'apparition de la plasticité.

Remarque 14.2 *Il est coutumier d'exprimer les résultats obtenus en unités de Lennard-Jones (LJ) afin de se mettre à l'échelle des atomes. Le potentiel de Lennard-Jones, noté $U_{LJ}(r)$, décrit l'interaction entre des atomes non directement liés et s'ajoute à un potentiel de liaison. Le potentiel de Lennard-Jones se définit comme suit*

$$U_{LJ}(r) = 4\epsilon_{LJ} \left[\left(\frac{\sigma_{LJ}}{r} \right)^{12} - \left(\frac{\sigma_{LJ}}{r} \right)^6 \right] \quad (14.20)$$

avec ϵ_{LJ} la profondeur du puits de potentiel (figure 14.19), σ_{LJ} la distance à laquelle le potentiel s'annule et r la distance interatomique. Le terme en $(1/r)^{12}$ décrit la répulsion et celui en $(1/r)^6$ l'attraction. Il est également possible de

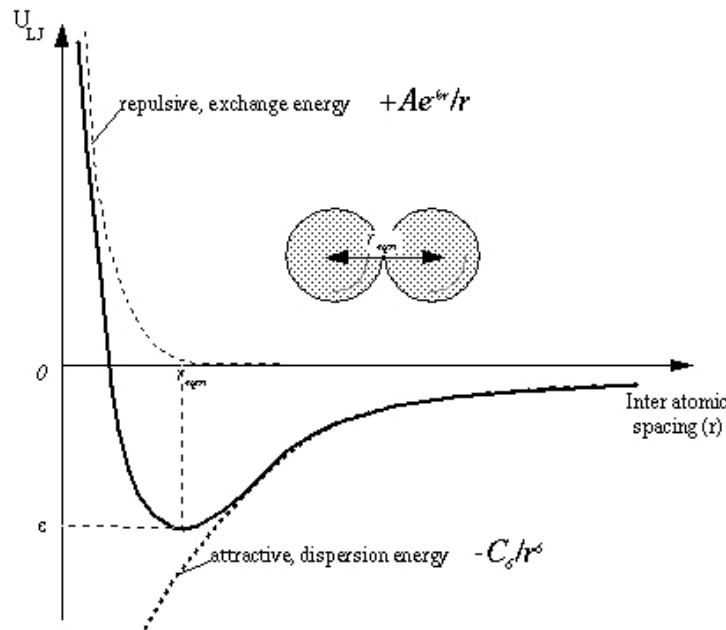


FIGURE 14.19 – Le potentiel de Lennard-Jones.

tronquer le potentiel par une astuce mathématique triviale afin que ce-dernier s'annule pour une distance r_c de telle sorte que

$$U_{LJ}^*(r) = \begin{cases} U_{LJ}(r) - U_{LJ}(r_c) & \text{si } r < r_c \\ 0 & \text{si } r \geq r_c \end{cases} \quad (14.21)$$

Cette méthode a notamment un intérêt purement numérique car permet, non seulement la diminution du temps de calcul (le potentiel devenant négligeable

à partir d'une certaine distance) mais également, d'assurer la continuité du potentiel et ainsi d'éviter les divergences de calcul.

14.4 CONCLUSIONS

Ce chapitre avait pour vocation de s'intéresser à la micromécanique des polymères chargés et en particulier d'apporter quelques réponses au sujet de la naissance d'une craquelure entre deux nodules. Pour ce faire, une série de calculs sur des volumes élémentaires ont été entrepris afin d'examiner l'influence de la distance interparticulaire Λ et la taille du nodule R_n au sens de la dissipation mécanique. Les conditions aux limites et de chargement ont été choisies telles que nous nous intéressons à ce mécanisme là où le champ de contrainte est maximal soit en pointe de fissure.

Les bilans d'énergie effectués en début de chapitre avaient pour but d'identifier les conditions de possibilités d'existence d'une craquelure entre deux nodules en fonction de la distance interparticulaire et du rayon du nodule. Cette série de calculs n'a pas permis de mettre en évidence une quelconque dépendance vis à vis d'un des deux paramètres mais a permis de constater que l'apparition d'une cavité permet à la cellule de consommer une partie de l'énergie disponible.

Un calcul analytique simple a permis de déterminer la taille minimale d'une cavité en élasticité linéaire afin que cette dernière puisse croître et non se résorber sous l'action de la tension de surface. Dans le cas du polyamide 11, ce rayon critique est de l'ordre du nanomètre. Un calcul numérique a pu corroborer ce fait. En effet, il apparaît que lorsque le rayon de la cavité est égal à 1 nm, la variation de volume de la cavité est positive et lorsque le rayon est dix fois plus petit, la variation de volume devient négative.

Une seconde série de calculs a ensuite été entreprise toujours dans le même but c'est-à-dire déterminer les conditions de naissance d'une craquelure entre deux nodules. Pour ce faire, aux maillages, conditions aux limites et conditions de chargement précédents est ajoutée la tension de surface. Deux cas ont été considérés : une matrice de PA11 comportant une cavité et une matrice de PA11 comportant deux nodules et une cavité. Les calculs sont réalisés pour deux tailles de cavités (1 nm et 0.1 nm) pour plusieurs types de comportement mécanique : élastique, élasto-plastique, élasto-visco-plastique et enfin pour le comportement mécanique identifié de nos matériaux soit élasto-visco-plastique avec rhéodurcissement. Il apparaît que les variations de volume de la cavité, qu'elles soient positives ou négatives, dépendent peu de la configuration du système en terme de distance interparticulaire et rayon de nodule. Les différences obtenues peuvent être considérées comme des différences du second ordre lorsqu'on les compare à ce que nous cherchons à identifier. Il a pu être mis en évidence que les résultats dépendent fortement du comportement mécanique de la matrice. En effet, il semble que :

- la plasticité facilite la variation de volume de la cavité ;
- la viscosité tend à amenuiser les effets de la plasticité mais accroît le champ de contraintes local ;

Ce chapitre n'apporte donc pas de réponse précise concernant la naissance d'une craquelure entre deux nodules en fonction de la distance interparticulaire ou du rayon des nodules. La présence des nodules semblent favoriser la variation de volume d'une cavité existante sans pour autant engendrer d'importantes variations. Si le nodule cavite, le constat ne change pas. Cependant, il apparaît que la variation de volume de la cavité sera moins importante mais compensée par celle du nodule. Que le nodule soit présent ou non, qu'il est cavité ou non, la cavité se développera. Dès lors, ce constat amène à s'interroger sur les conditions d'apparition d'une cavité. L'état que nous considérons lors des simulations numériques est un état proche de la traction triaxiale avec un rapport de compressibilité entre le nodule et la matrice faible.

Pour étudier les conditions d'apparition, considérons une matrice de PA11 renforcée par des nodules en élasticité. Nous supposons un critère d'apparition en contrainte et nous nous intéressons à la valeur moyenne de la contrainte de von Mises σ_{eq} et à la contrainte hydrostatique σ_h dans le domaine \mathcal{D}_2 . Trois configurations sont considérées $R_n = \Lambda/2$, $R_n = \Lambda$ et $R_n = 2\Lambda$ et pour chacune d'entre elles, le nodule est soit intact soit cavité. Les valeurs obtenues sont répertoriées dans le tableau 14.10.

TABLEAU 14.10 – Valeurs moyennées de la contrainte de von Mises et de la contrainte hydrostatique dans le domaine \mathcal{D}_2 dans le cas d'un RT-PA11 sans cavité avec nodule non cavité et cavité en élasticité.

		RT-PA11		RT-PA11 with cavitated rubber	
R_n	σ	σ_{eq}	σ_h	σ_{eq}	σ_h
		$\Lambda/2$	121 MPa	116 MPa	106 MPa
	Λ	124 MPa	121 MPa	123 MPa	98 MPa
	2Λ	130 MPa	125 MPa	154 MPa	114 MPa

Il semble que la réduction de la distance interparticulaire engendre une augmentation de la contrainte de von Mises et de la contrainte hydrostatique, cela que le nodule soit cavité ou non. Lorsque le nodule est considéré comme totalement cavité, il apparaît que :

- la contrainte hydrostatique diminue quelle que soit la configuration ($R_n = \Lambda/2$, Λ ou 2Λ);
- concernant σ_{eq} :
 - ◊ l'éloignement des nodules implique une baisse de σ_{eq}
 - ◊ lorsque Λ est faible, σ_{eq} augmente et surclasse la valeur équivalente dans le cas où le nodule est non cavité.

Quand le nodule ne cavite pas, la réduction de la distance interparticulaire tend à diminuer la contrainte équivalente de von Mises ainsi que la contrainte hydrostatique dans le ligament. En effet, σ_{eq} et σ_h décroît d'environ 10 MPa lorsqu'on diminue Λ par un facteur 4. Si le nodule cavite, une remarque équivalente émerge mais dans des ordres de grandeurs plus importants. En effet, pour une réduction de la distance interparticulaire équivalente, la contrainte de von Mises atteint une valeur inférieure de 50 MPa. La contrainte hydrostatique est moins affectée par la cavitation totale du nodule mais sa baisse est cependant plus importante également, de l'ordre de 25 MPa.

Dès lors, si nous postulons sur un critère d'apparition de cavités basé sur l'atteinte locale d'une contrainte critique, il advient que, plus la distance interparticulaire Λ sera minimisée, plus la contrainte équivalente de von Mises et la contrainte hydrostatique seront importantes et donc, plus il sera facile d'atteindre la contrainte critique engendrant la naissance d'une cavité entre les nodules. La cavitation des nodules permet d'adoucir la contrainte hydrostatique mais, à faible distance interparticulaire, accroît le champ de contraintes de von Mises. Ainsi, ces constatations couplées à l'hypothèse d'un critère d'apparition de cavités en contrainte contrediraient les études menées par Wu (1988), Muratoğlu *et al.* (1995a), Corté et Leibler (2007). En effet, ces derniers, à partir de constatations différentes, postulent l'existence d'une distance interparticulaire critique Λ_c qui, doit nécessairement majorer la distance entre deux nodules pour obtenir un renforcement efficace. Cependant, nous ne postulons rien de tel. D'une part, dans notre cas, les concentrations de contraintes dépendent seulement de la distance relative à la taille des nodules. Ce faisant, la notion de distance interparticulaire intrinsèque disparaît : à fraction volumique égale, morphologie de mélange égale et matrice égale, nous obtiendrons les mêmes concentrations et valeurs des contraintes. D'autre part, nous constatons simplement que, pour de faibles distances relatives, la matrice devrait avoir tendance à faciliter la cavitation et donc dissiper de l'énergie. Cela pourrait également être favorable aux renforts aux chocs. Enfin, on ne peut pas omettre le point sensible de la reproductibilité lorsqu'on s'intéresse aux publications expérimentales traitant ce sujet. Afin d'étudier les effets de distance interparticulaire ou de taille de nodules, l'obtention de morphologie similaire implique indubitablement une modification soit de la matrice soit des conditions de mise en œuvre. Dans le cas contraire, les distributions seront différentes et cela pourrait engendrer l'apparition d'agrégats. Pour ces raisons, la part expérimentale de ce thème s'avère extrêmement complexe.

Conclusion et perspectives

CONCLUSIONS & PERSPECTIVES

CONCLUSION GÉNÉRALE

Dans une quête de développement constant ARKEMA, le partenaire industriel de cette thèse, s'intéresse à la conception de polymères renforcés par une seconde phase de nodules d'élastomère. Parmi sa gamme étendue de polymères haute performance, un seul fait l'objet de notre étude : le Rilsan® PA11. De nombreuses études ont été effectuées sur les polyamides mais il apparaît que peu d'entre elles traitent du polyamide 11 et plus particulièrement de son comportement mécanique. Le constat de cette mince documentation s'avère relativement surprenant étant donné que ce matériau est couramment rencontré dans des applications diverses dont certaines, comme par exemple celle nous concernant ici, l'industrie offshore, nécessite une parfaite connaissance de la tenue en rupture ou en fatigue.

L'approche micromécanique, développée dans le dernier chapitre du manuscrit et basée sur la dissipation d'énergie, avait pour vocation d'évaluer l'influence de la distance interparticulaire et de la taille du nodule sur la naissance d'une craquelure entre deux nodules. Or, les analyses des bilans d'énergie et des calculs de variation de volume (avec prise en compte de la tension de surface) ont permis de montrer que l'influence de ces deux paramètres est du second ordre puisque le comportement mécanique de la matrice se place en acteur majeur. Cette conclusion motive l'identification du comportement mécanique du PA11. Les travaux menés au cours de cette thèse sont scindés en deux axes : le premier, définir et identifier à l'aide de simulations numériques le comportement mécanique du PA11 ; le second, étudier et comprendre les mécanismes de déformations, d'endommagement et de rupture des matériaux renforcés, vieillissants pour le contexte de l'étude.

Une étape obligatoire, préalable à tout calcul numérique visant à définir le comportement mécanique d'un matériau, réside dans la réalisation d'essais mécaniques. Ceux-ci ont impliqué trois géométries que sont les éprouvettes lisses et les éprouvettes axisymétriques entaillées (NT) sollicitées en traction uniaxiale et les éprouvettes fissurées (SENB) testées en flexion 3 points.

Les essais de traction sur éprouvettes lisses ont mis en évidence la dépendance du PA11 envers la viscosité et ainsi considérer que notre matériau se comporte comme un matériau élasto-visco-plastique. Des observations microscopiques au MEB de coupes du matériau non endom-

magé obtenues par cryo-fractographie ont décelé la présence de cavités de l'ordre de 1%. Des mesures de variations de volume de la zone strictionnée de l'éprouvette lisse par pycnométrie n'ont révélé que des variations très faibles, nous permettant ainsi de négliger l'endommagement par croissance de cavités pour cette géométrie lors des simulations numériques.

Les éprouvettes entaillées permettent, à l'aide d'une machine de traction uniaxiale, de considérer des états de contraintes multiaxiales localement (au niveau de la section minimale de l'éprouvette). En variant la valeur du rayon d'entaille, on peut étudier l'influence du taux de triaxialité des contraintes sur le comportement endommageable du matériau. Dès lors, par l'intermédiaire d'observations microscopiques de coupes d'échantillons faisant suite à des essais interrompus, nous avons pu constater que l'augmentation du taux de triaxialité des contraintes engendrait un endommagement plus conséquent en terme de fraction volumique de cavités. Les cavités, bien qu'initialement présentes dans le matériau, ne débutent leur croissance qu'à l'atteinte du crochet de traction. Il semble que cet accroissement soit dans un premier temps sphérique pendant la phase appelée adoucissement puis, dans un second temps dans une direction privilégiée coïncidant à la direction de la contrainte principale maximale et impliquant l'ovalisation des cavités. Cette seconde étape correspond à la propagation de la striction où s'opère une déformation à contrainte presque stabilisée observable sur les courbes globales contrainte nominale-déformation nominale. D'un point de vue matériau, le rhéodurcissement s'explique par l'étirement des fibrilles et l'orientation de la phase cristalline dans la direction de traction générant ainsi une rigidité supplémentaire.

Les essais de flexion 3 points sur des éprouvettes fissurées ont permis de nous intéresser à la transition ductile-fragile à travers des propagations de fissures stable ou instable. Il est admis que la transition ductile-fragile dépend de la géométrie considérée. Dès lors, pour un rapport a/W égal à 0.25 et une épaisseur de barreau de 10 mm, la propagation stable de la fissure s'opère à 50 mm.min^{-1} mais disparaît pour une vitesse de déflexion de 100 mm.min^{-1} . Cependant à 100 mm.min^{-1} et 200 mm.min^{-1} , si la propagation de la fissure est instable, l'amorçage n'en reste pas moins ductile caractérisé par un émoussement et un blanchiment de la surface en pointe de fissure.

Les simulations numériques du comportement mécanique du matériau ont été effectuées à l'aide d'un modèle bien connu des métallurgistes, le modèle de Gurson, mais qui a également fait ses preuves avec les matériaux polymères. Ce choix s'explique d'une part, par la présence de cavités initialement présentes dans le matériau engendrant un endommagement dit par croissance de cavités et d'autre part, car le modèle de Gurson modifié par Tvergaard et Needleman a donné d'excellents résultats lors d'études antérieures similaires comme par exemple sur l'endommagement et la rupture du PVDF. La prise en compte du comportement endommageable intervient grâce aux paramètres d'endommagement. Dès lors, en se basant sur les résultats expérimentaux obtenus en traction uniaxiale sur les éprouvettes lisses et entaillées, les paramètres décrivant le modèle, qu'il s'agisse de la dépendance à la viscosité décrit par une loi de Norton ou la fonction d'écroutissage, ont pu être identifiés. Le modèle, validé

en simulant numériquement les essais sur éprouvettes fissurées, offre une bonne concordance avec l'expérimental et, de surcroît, a permis d'identifier deux critères de rupture du PA11 issus de l'approche locale : un critère de rupture par élongation des fibrilles opérant préférentiellement à faible taux de triaxialité des contraintes caractérisé numériquement par l'atteinte d'une déformation plastique principale maximale critique notée p_c ; un critère de rupture par coalescence des cavités apparaissant pour des taux de triaxialité plus importants et traduit numériquement par une valeur critique de la porosité f_c . L'approche globale a également mis en lumière un critère d'amorçage en ténacité critique J_{IC} .

De nombreuses études ont été dédiées à l'auto-échauffement des polymères soulignant le fait que celui-ci pouvait s'avérer conséquent et selon les températures d'essais s'approcher de la température de transition vitreuse voire même la franchir. Dès lors, afin d'obtenir des résultats plus en phase avec la réalité, une étude de l'augmentation de la température, sous chargement quasi-statique, a été effectuée en vue de sa prise en compte dans notre modèle numérique. Pour ce faire, une série d'essais traction uniaxiale sur des éprouvettes entaillées NT_4 a été réalisée pour une plage de température de 0°C à 100°C et identifiée numériquement à l'aide du modèle GTN. Cela étant fait, les paramètres du modèle ont pu être décrits comme une fonction de la température. Des simulations adiabatiques sur éprouvettes entaillées en traction uniaxiale et éprouvettes fissurées en flexion 3 points ont alors pu être comparées aux résultats expérimentaux obtenus par suivi par caméra infrarouge.

L'étude portant sur les matériaux vieillis a bien sûr évidemment été basée sur des essais expérimentaux. La multiplication des matériaux nous a amené à réduire le champ d'investigation et, n'ont été entrepris que des essais de traction uniaxiale sur des éprouvettes lisses et entaillées de type NT_4 . Parmi ces trois matériaux plastifiés et vieillis, deux sont renforcés : le "aged P20 EPR", renforcé par des nodules d'EPR et le "aged P20 NBR" renforcé par du NBR, le dernier matériau, le "aged P40" permettant de faire la liaison entre les deux matériaux renforcés et la matrice non vieillie.

Les essais expérimentaux associés aux observations microscopiques des faciès de rupture ou des coupes microtome d'échantillons issus d'essais interrompus ont permis de caractériser l'effet du vieillissement et du plastifiant sur la matrice de PA11. Si l'ajout de plastifiant couplé au vieillissement ne perturbe pas les contraintes admises par le matériau, sa ductilité est quant à elle nettement affectée. Il est montré que dans le cas d'une éprouvette entaillée NT_4 sollicitée en traction, le critère de rupture est différent de celui rencontré pour la matrice de PA11 non plastifiée et non vieillie. En effet, si le PA11 pour cette géométrie rompt par élongation des fibrilles, la rupture du "aged P40" s'opère par coalescence des cavités. Cela consiste en une différence majeure. L'ajout de plastifiant associé au vieillissement accroît sensiblement la rigidité du matériau et réduit considérablement sa capacité à se déformer.

Les études sur les matériaux renforcés ont mis en évidence qu'en dépit

du vieillissement, l'ajout d'une seconde phase de type élastomère permet de conserver la ductilité du matériau. En effet, sous certaines conditions de chargement pour les éprouvettes entaillées, on constate l'apparition du plateau ductile sur les courbes contrainte nominale-déformation nominale du "aged P20 EPR" et du "aged P20 NBR". De plus, l'observation des faciès de rupture ou de coupes microtome atteste l'obtention de la rupture par élongation des fibrilles et non par coalescence de cavités. Cependant, dans le cas du "aged P20 NBR", une transition du mécanisme de rupture s'opère lorsque l'on compare les résultats expérimentaux obtenus en traction uniaxiale sur NT_4 à 0.05 mm.s^{-1} et 3 mm.s^{-1} . En effet, le premier présente comme le PA11 pur une rupture par élongation des cavités ce qui n'est pas le cas du second, qui lui rompt par coalescence des cavités. Il y aurait donc une dépendance des mécanismes de déformation, d'endommagement et de rupture selon la plage de vitesses de déformation considérées.

La largeur du champ à couvrir, au cours de ces travaux, était vaste : plusieurs matériaux ont été étudiés et ont fait intervenir des géométries variées engendrant non seulement, une large plage de taux de triaxialité des contraintes mais également, une grande plage de vitesses de déformation. Des simulations numériques incluant les effets de température ont également été entreprises afin de s'approcher des conditions réelles auxquelles le matériau est confronté sous sollicitations. Ce faisant, l'identification du comportement mécanique devient complexe et nécessite l'intervention de nombreux paramètres. Ainsi, il devient apodictique de trouver un compromis à dessein d'efficacité. De surcroît, nous sommes confrontés à une compétition entre l'endommagement et la rupture, soit en d'autres mots, une problématique volume-surface. Nous avons opté pour l'étape antérieure à la rupture, c'est-à-dire l'endommagement du matériau afin d'obtenir des critères prédictifs d'amorçage de fissures. Cependant, les modèles GTN et Rousselier sont tels, qu'il a tout de même été possible de se procurer quelques informations sur la ruine.

QUELQUES PERSPECTIVES

Les travaux présentés portant sur plusieurs matériaux et menés sur différents axes de recherche (mécanismes de déformation, d'endommagement et de rupture, modélisation numérique du comportement mécanique, simulations adiabatiques, approche micromécanique...) multiplient les perspectives possibles.

Une première salve concerne la matrice de polyamide 11 et la simulation numérique de son comportement mécanique. Si le modèle de Gurson donne de très bons résultats dans sa formulation actuelle, il pourrait être tout de même judicieux de modifier sa formulation afin qu'il rende mieux

compte des matériaux polymères. Cette remarque fait référence à la sensibilité de la limite d'écoulement des polymères à la contrainte hydrostatique.

Quelques difficultés sont apparues lors de la modélisation des essais de flexion 3 points concernant la propagation de la fissure, difficultés apparemment liées à la définition des paramètres liés à l'endommagement. Dès lors, si l'objectif est de garder l'expression ainsi présentée, il serait nécessaire de multiplier les simulations numériques pour affiner la méthode de stratégie d'identification des paramètres. Il serait d'ailleurs très intéressant de coupler, aux observations de faciès d'essais interrompus, des essais in situ en tomographie à rayons X, qui permettrait de suivre, de manière non-destructrice, l'évolution de l'endommagement. Il serait nécessaire également d'étudier l'effet de la taille de mailles dans le ligament, étant donné qu'il est bien connu que les lois adoucissantes y sont très sensibles.

Une autre remarque consiste en la prise en compte des effets visqueux. En effet, il est apparu que la description de ces phénomènes à l'aide d'une unique loi de Norton nous oblige à nous focaliser sur une plage restreinte de vitesses. L'ajout d'un second potentiel visqueux pourrait ainsi permettre d'agrandir le champ de vitesses concernées par exemple en scindant faibles et grandes vitesses. L'inconvénient majeur est que cela engendrerait l'identification de deux nouveaux paramètres.

Une dernière perspective concernant la modélisation du comportement mécanique du PA11 concerne la prise en compte de l'auto-échauffement. Si l'ensemble des paramètres intervenant dans le modèle sont devenus des fonctions de la température, ce n'est pas le cas des paramètres décrivant l'endommagement. En effet, ce travail nécessiterait, comme ce qui a été fait pour la température de 0°C, la réalisation d'essais interrompus pour chaque température associée à l'observation des coupes microtome au microscope électronique à balayage afin de quantifier la fraction volumique de cavités. Ces résultats expérimentaux permettraient, dans un premier temps, de déterminer si la température influe sur l'évolution de l'endommagement et dans un second temps, selon le constat, d'identifier les paramètres d'endommagement pour chaque température et a fortiori, de déterminer leurs expressions en fonction de la température.

Enfin, il serait intéressant de développer le couplage thermo-mécanique qui associe à un modèle de comportement de type Gurson la diffusion de la chaleur. D'une part, concernant les calculs à couplage faible, il serait nécessaire de pouvoir considérer une diffusion de la chaleur autre que 100%. D'autre part, entreprendre un calcul thermo-mécanique à couplage fort pourrait s'avérer intéressant ; cela consiste à la disparition de la succession de pas de temps mécanique et thermique afin de considérer un pas de temps unique regroupant l'ensemble des résultats thermiques et mécaniques par l'implication d'un autre type d'éléments dédié à ce genre de simulations numériques particulières.

Généralement, dans la littérature concernant la ténacité des matériaux améliorée par le renfort au choc, la partie expérimentale repose sur des essais de type Izod ou Charpy. D'une part, les essais Izod ou Charpy sont des essais dynamiques et non quasi-statiques. D'autre part, les éprouvettes Izod ou Charpy consistent en des éprouvettes de flexion. Enfin, en pointe de fissure, les sollicitations mécaniques sont différentes avec un taux de triaxialité des contraintes beaucoup plus important. Une possibilité avancée pourrait être de caractériser la ténacité ou la ductilité, à l'aide d'un essai plus simple comme la traction uniaxiale sur une éprouvette entaillée NT_4 , actrice majeure de nos travaux, par l'intermédiaire de la courbe contrainte nominale-déformation nominale axiale par exemple. Si l'idée peut paraître belle, elle semble tout de même loin de considérer comme il se doit les mécanismes qui officient en pointe d'une fissure. En effet, les essais sur éprouvettes NT_4 sont des essais quasi-statiques sollicitant le ligament en traction et engendrant une triaxialité faible. Ainsi, il se peut que les mécanismes impliqués diffèrent de ceux rencontrés en pointe de fissure et compliquent la comparaison. Cela étant dit, il serait intéressant d'effectuer des essais Izod ou Charpy afin de caractériser la ténacité de nos matériaux tout comme il serait intéressant de s'intéresser, comme pour le PA11, à l'influence du taux de triaxialité des contraintes en multipliant les essais sur éprouvettes entaillées pour différents rayons d'entaille. Le rayon d'entaille d'éprouvettes Izod ou Charpy est généralement de l'ordre de $250 \mu m$ pour les matériaux métalliques. Effectuer un essai de traction uniaxiale sur une éprouvette NT avec un rayon d'entaille équivalent pourrait s'avérer informatif. Des essais de flexion 3 points seraient également révélateurs, pour une géométrie donnée, de la transition ductile-fragile. Dès lors, le panel expérimental s'avère vaste tout comme les réflexions à apporter au décryptage et à l'analyse des résultats expérimentaux.

La modélisation numérique du comportement mécanique des matériaux renforcés s'avère relativement complexe avec le modèle GTN. En effet, la dépendance des mécanismes de déformation, d'endommagement et de rupture à la vitesse de déplacement sont difficilement modélisables. L'ajout d'un second potentiel visqueux ou l'utilisation d'une loi plus complexe pourrait éventuellement permettre de mieux prendre en compte l'influence de la vitesse. Concernant la modélisation de l'endommagement, il pourrait être intéressant de coupler à la loi d'évolution de croissance des cavités (qui sont en l'occurrence des nodules considérés comme cavités), une loi de germination afin de rendre compte de la germination des microcavités aux pôles des nodules cavités, observés microscopiquement à partir des faciès d'échantillons interrompus.

BIBLIOGRAPHIE

- ANDREWS, E. H. (1968). *Fracture in polymers*. Oliver and Boyd.
- ARGON, A. S. (1973). A theory for the low-temperature plastic deformation of glassy polymers. *Philosophical Magazine*, 28:839–865.
- ARGON, A. S. (1975). Plastic deformation in glassy polymer. *Polymeric Materials*, pages 411–486.
- ARGON, A. S. et COHEN, R. E. (2003). Toughenability of polymers. *Polymer*, 44.
- ARGON, A. S., COHEN, R. E., GEBIZLIOGLU, O. S., BROWN, H. R. et KRAMER, E. J. (1990). A new mechanism of toughening glassy polymers. part 2. theoretical approach. *Macromolecules*, 23:3975–3982.
- ARGON, A. S. et SALAMA, M. M. (1977). Growth of crazes in glassy polymers. *Philosophical Magazine*, 36:1217–1234.
- ARRUDA, E. M. et BOYCE, M. C. (1993). Evolution of plastic anisotropy in amorphous polymer during finite straining. *International Journal of Plasticity*, 9:697–720.
- ATOFINA (2002). Technical polymer : Ato-api version 3.0. Rapport technique, ATOFINA.
- BAGHERI, R. et PEARSON, R. A. (2000). Role of particle cavitation in rubber-toughened epoxies : II. inter-particle distance. *Polymer*, 41:269–276.
- BALJON, A. R. C. et ROBBINS, M. O. (2001). Simulations of crazing in polymer glasses : Effect of chain length and surface tension. *Macromolecules*, 34:4200.
- BALL, J. M. (1982). Discontinuous equilibrium solutions and cavitation in nonlinear elasticity. *Proceedings Royal Society of London*, A306:557–611.
- BARENBLATT, G. I. (1962). The mathematical theory of equilibrium cracks in brittle fracture. *Advances in applied mechanics*, 7:55–129.
- BARTCZAK, Z., ARGON, A. S. et COHEN, R. E. (1992). Deformation mechanisms and plastic resistance in single crystal-textured high-density polyethylene. *Macromolecules*, 25:5036.
- BARTCZAK, Z., ARGON, A. S., COHEN, R. E. et KOWALEWSKI, T. (1999a). The morphology and orientation of polyethylene in films of submicron thickness crystallized in contact with calcite and rubber substrates. *Polymer*, 40:2367–2380.

- BARTCZAK, Z., ARGON, A. S., COHEN, R. E. et WEINBERG, M. (1999b). Toughness mechanism in semi-crystalline polymer blends : I. high-density polyethylene toughened with rubbers. *Polymer*, 40:2331–2346.
- BARTCZAK, Z., ARGON, A. S., COHEN, R. E. et WEINBERG, M. (1999c). Toughness mechanism in semicrystalline polymer blends : II. high density polyethylene toughened with calcium carbonate filler particles. *Polymer*, 40:2347–2365.
- BASU, S., MAHAJANA, D. K. et der GIESSEN, E. V. (2005). Micromechanics of the growth of a craze fibril in glassy polymers. *Polymer*, 46:7504–7518.
- BASU, S. et van der GIESSEN, E. (2002). A thermo-mechanical study of mode I, small-scale yielding crack-tip fields in glassy polymers. *International Journal of Plasticity*, 18:1395–1423.
- BAUMANN, U. D. (1998). *The role of particle cavitation in the toughening of polymers*. Thèse de doctorat, Massachusetts Institute of Technology, Cambridge, CA.
- BECKER, R. (1987). The effect of porosity distribution on ductile failure. *Journal of the Mechanics and Physics of Solids*, 35:577–599.
- BECKER, R. et NEEDLEMAN, A. (1986). Effect of yield surface curvature on necking and failure in porous plastic solids. *Journal of Applied Mechanics*, 53:491–499.
- BECKER, R., NEEDLEMAN, A., RICHMOND, O. et TVERGAARD, V. (1988). Void growth and failure in notched bars. *Journal of Mechanical Physics and Solids*, 36:317–351.
- BERG, C. A. (1970). *Inelastic behaviour of solids*. McGraw-Hill New York.
- BERGER, L. L. (1990). On the mechanism of craze fibril breakdown in glassy polymer. *Macromolecules*, 23:2926–2934.
- BESSON, J. et FOERCH, R. (1997). Large scale object-oriented finite element code design. *Computer Methods in Applied Mechanics and Engineering*, 142.
- BESSON, J. et GUILLEMER-NEEL, C. (2003). An extension of the Green and Gurson model to kinematic hardening. *Mechanics of Material*, 35:1–18.
- BESSON, J., STEGLICH, D. et BROCKS, W. (2001). Modeling of crack growth in round bars and plane strain specimens. *International journal of solids and structures*, 38.
- BONDIL, O. (2006). *Etude de l'Endommagement en Sommet de Fissure dans les Polymères Amorphes Renforcés Choc par Nodules d'Elastomère*. Thèse de doctorat, Institut Charles Sadron.
- BONORA, N., GENTILE, D., PIRONDI, A. et NEWAZC, G. (2005). Ductile damage evolution under triaxial state of stress : theory and experiments. *International Journal of Plasticity*, 21:981–1007.

- BORGGREVE, R. J. M., GAYMANS, R. J. et EICHENWALD, H. M. (1989a). Brittle-tough transition in nylon-rubber blends : effect of rubber concentration and particle size. *Polymer*, 30:78–83.
- BORGGREVE, R. J. M., GAYMANS, R. J. et SCHUIJER, J. (1989b). Impact behaviour of nylon-rubber blends : 5. influence of the mechanical properties of the elastomer. *Polymer*, 30:71–77.
- BORGGREVE, R. J. M., GAYMANS, R. J., SCHUIJER, J. et HOUSZ, J. F. I. (1987). Brittle-tough transition in nylon-rubber blends : effect of rubber concentration and particle size. *Polymer*, 28:1489–1496.
- BOWDEN, P. et JUKES, J. A. (1972). The plastic flow of isotropic polymers. *Journal of Materials Science*, 7:52–63.
- BOWDEN, P. B. (1973). The yield behaviour of glassy polymers. *Applied Sciences Publisher*, pages 279–295. In : The physics of glassy polymers (ed. R.N. Haward).
- BOYCE, M. C. et ARRUDA, E. M. (1990). An experimental and analytical investigation of the large strain compressive and tensile response of glassy polymers. *Polymer Engineering and Science*, 30:1288–1298.
- BOYCE, M. C., MONTAGUT, E. L. et ARGON, A. S. (1992). The effects of thermomechanical coupling on the cold drawing process of glassy polymers. *Polymer Engineering and Science*, 32:1073–1085.
- BOYCE, M. C., PARKS, D. M. et ARGON, A. S. (1988). Large inelastic deformation of glassy polymers, part I : rate dependant constitutive model. *Mechanics of Materials*, 7:15–33.
- BREEDON, J. E., JACKSON, J. F., MARCINKOWSKI, M. J. et TAYLOR, M. E. (1973). Scanning electron microscopy observations of polyethylene spherulites. *Journal of Materials Science*, 8:143–145.
- BRIDGMAN, P. W. (1944). The stress distribution at the neck of a tension specimen. *Transaction ASM*, 32:553–574.
- BROCKS, W., KLINGBEIL, D., KUNECKE, G. et SUN, D. Z. (1995). *Constraint effects in fracture theory and applications*, volume 2, chapitre Application of the Gurson model to ductile tearing resistance, pages 232–252. M. Kirk.
- BROWN, H. R. (1991). A molecular interpretation of the toughness of glassy polymers. *Macromolecules*, 24:2752–2756.
- BROWN, N. (1986). *Yield behaviour of polymers*. W. Brostow and R. D. Corneliussen, Hanser, Munich.
- BROWN, N. et WARD, I. M. (1983). The influence of morphology and molecular weight on ductile-brittle transitions in linear polyethylene. *Journal of Materials Science*, 18.
- BUCKNALL, C. B. (1977). Toughened plastics. *Applied Sciences*.

- BUCKNALL, C. B., HEATHER, P. S. et LAZZERI, A. (1989). Rubber toughening of plastics. part 12 : Deformation mechanisms in toughened nylon 6,6. *Journal of Materials Science*, 16:2255–2261.
- BUCKNALL, C. B., KARPODINIS, A. et ZHANG, X. C. (1994). A model for particle cavitation in rubber-toughened plastics. *Journal of Materials Science*, 29:3377–3383.
- CANGEMI, L., ELKOUN, S., G'SELL, C. et MEIMON, Y. (2004). Volume strain changes of plasticized poly(vinylidene fluoride) during tensile and creep tests. *Journal of Applied Polymer Science*, 91:1784–1791.
- CASTAGNET, S. (1998). *Comportement mécanique du PVDF : compétition entre cavitation et écoulement visqueux*. Thèse de doctorat, Université de Poitiers.
- CASTAGNET, S., GIRAULT, S., GACOUGNOLLE, J. L. et DANG, P. (2000). Cavitation in strained polyvinylidene fluoride : mechanical and X-ray experimental studies. *Polymer*, 41:7523–7530.
- CHALLIER, M., BESSON, J., LAIARINANDRASANA, L. et PIQUES, R. (2006). Damage and fracture of polyvinylidene fluoride (pvdf) at 20°C : Experiments and modelling. *Engineering Fracture Mechanics*, 73:79–90.
- CHARPY, G. (1904). *Mémoires et compte rendu de la société des ingénieurs civils de France*, chapitre Sur l'essai des métaux par flexion de barreaux entaillés, pages 468–482. Société des ingénieurs civils de France.
- CHEN, W. F. et SALEEB, A. F. (1982). *Constitutive Equations for Engineering Materials*. Wiley.
- CHU, C. C. et NEEDLEMAN, A. (1980). Void nucleation effects in biaxially stretched sheets. *Journal of Engineering Materials and Technology*, 102:249–256.
- COHEN, A. S. et ARGON, R. E. (2003). Toughenability of polymers. *Polymer*, 44:6013–6032.
- CORTÉ, L. (2006). *Renforcement des polymères semi-cristallins*. Thèse de doctorat, Université Pierre et Marie Curie, Paris.
- CORTÉ, L., BEAUME, F. et LEIBLER, L. (2005). Crystalline organization and toughening : example of polyamide-12. *Polymer*, 46:2748–2757.
- CORTÉ, L. et LEIBLER, L. (2007). A model for toughening of semicrystalline polymers. *Macromolecules*, 40:5606–5611.
- DAHOUN, A., G'SELL, G., MOLINARI, A. et CANOVA, G. (1993). Plastic behavior and deformation textures of poly(ether ether ketone) under uniaxial tension and simple shear. *Use of plastics and plastic composites : materials and mechanical issues*, ASME New York:57–76.
- de LORENZI, H. G. (1985). Energy release rate calculations by the finite element methods. *Engineering Fracture Mechanics*, 21.

- den OUTER, P. N. et LAGENDDIJK, A. (1993). Influence of the refractive index contrast on coherent backscattering. *Optics Commun*, 103:169–173.
- D'ESCATHA, Y. et DEVAUX, J. C. (1979). *Elastic-Plastic Fracture*, chapitre Numerical study of initiation, stable crack growth and maximum load with a ductile fracture criterion based on the growth of holes, pages 229–248. J. D. Landes.
- DIJKSTRA, K. et BOLSCHER, G. H. T. (1994). Nylon-6/rubber blends. *Journal of Materials Science*, 29:4286.
- DIJKSTRA, K., van der WAL, A. et GAYMANS, R. J. (1994). Nylon-6-rubber blends : IV cavitation and yield in nylon-rubber blends. *Journal of Materials Science*, 29:3489–2496.
- DIMAGGIO, F. L. et SANDLER, I. S. (1971). Material model for granular soils. *Journal of the Engineering Mechanics Division*, 97:935–950.
- DÖLL, W. (1983). Optical interference measurements and fracture mechanics analysis of crack tip craze zones. *Advanced Polymer Science*, 52:105–168.
- DOH, T. E. (2004). Comportement et endommagement du pvdv vieilli : application sur la mise en forme des gaines de pression. DEA Systèmes complexes et Phénomènes Hors équilibre, EGIM.
- DOMPAS, D., GROENINCKS, G., ISOGAWA, M., HASEGAWA, T. et KADOKURA, M. (1995). Cavitation versus debonding during deformation of rubber modified poly(vinyl chloride). *Polymer*, 36:437–441.
- DOMPAS, D. et GROENINCKX, G. (1994). Toughening behaviour of rubber-modified thermoplastics polymer involving very small rubber particles : 1. a criterion for internal rubber cavitation. *Polymer*, 35:4743–4749.
- DRUCKER, D. C. et PRAGER, W. (1952). Soil mechanics and plastic analysis on limit design. *Quarterly of Applied Mathematics*, 10:157–165.
- DUGDALE, D. S. (1960). Yielding of steel sheets containing slit. *Journal of the Mechanics and Physics of Solids*, 8:100–108.
- ECHALIER, B. (1989). *Transition ductile-fragile d'un polyamide 11 plastifié*. Thèse de doctorat, UTC Compiègne.
- ESCAIG, B. et LEFEBVRE, J. M. (1978). Thermodynamic and kinetic analysis of non-elastic deformation in polymeric glasses. *Revue de Physique Appliquée*, 13:285–292.
- ESHELBY, J. D. (1957). The determination of the elastic field of an ellipsoidal inclusion and related problem. *Proceedings of the Royal Society of London*, A241:376–396.
- ESTEVEZ, R., TIJSSENS, M. G. A. et van der GIESSEN, E. (2000). Modeling of the competition between shear yielding and crazing in glassy polymers. *Journal of the Mechanics and Physics of Solids*, 48:2585–2617.

- FALESKOG, J., GAO, X. et SHIH, C. F. (1998). Cell model for nonlinear fracture analysis. i. micromechanics calibration. *International Journal of Fracture*, 89:355–373.
- FISCHER, E. W. (1957). Stufen-und spiralförmiges kristallwachstum bei hochpolymeren. *Z. Naturforsch*, 12:753–754.
- FOND, C., GÉHANT, S. et SCHIRRER, R. (2002). Effects of mechanical interactions on the hydrostatic stress in randomly distributed rubber particles in an amorphous polymer matrix. *Polymer*, 43:909–919.
- FOND, C., LOBBRECHT, A. et SCHIRRER, R. (1996). Polymers toughened with rubber microspheres : an analytical solution for stresses and strains in the rubber particles at equilibrium and rupture. *International Journal of Fracture*, 77:141–159.
- FRANÇOIS, D., PINEAU, A. et ZAOUL, A. (1993). *Comportement mécanique des matériaux*. Hermès.
- FRIEDRICH, K. (1983). *Crazing in Polymers*, chapitre Crazes and shear bands in semi-crystalline thermoplastics, pages 226–271. ed. H.H. Kausch, Springer-Verlag.
- FUKUI, T., KIKUCHI, Y. et INOUE, T. (1991). Elastic-plastic analysis of the toughening mechanism in rubber-modified nylon : matrix yielding and cavitation. *Polymer*, 32:2367.
- GALESKI, A. (2003). Strength and toughness of crystalline polymer systems. *Progress in Polymer Science*, 28:1643–1699.
- GALESKI, A., ARGON, A. S. et COHEN, R. E. (1989a). Changes in the morphology of bulk spherulitic nylon 6 due to plastic deformation. *Macromolecules*, 21:2761–2770.
- GALESKI, A., ARGON, A. S. et COHEN, R. E. (1989b). Morphology of nylon 6 spherulites in bulk. *Makromol Chem*, 188:1195–1204.
- GAO, X., FALESKOG, J. et SHIH, C. F. (1998). Cell model for nonlinear fracture analysis. II. fracture process calibration and verification. *International Journal of Fracture*, 89:375–398.
- GENT, A. N. et LINDLEY, P. B. (1959). Internal rupture of bonded rubber cylinders in tension. *Proceedings of the Royal Society of London*, A249:195–205.
- GÉHANT, S., FOND, C. et SCHIRRER, R. (2003). Criteria for cavitation of rubber particles : Influence of plastic yielding in the matrix. *International Journal of Fracture*, 122:161–175.
- GÉHANT, S. et SCHIRRER, R. (1999). Multiple light scattering and cavitation in two phase tough polymers. *Journal of Polymer Science : Part B : Polymer Physics*, 37:113–126.
- GOLOGANU, M. (1997). *Etude de quelques problèmes de rupture ductile des métaux*. Thèse de doctorat, Université Paris VI.

- GOLOGANU, M., LEBLOND, J. B. et DEVAUX, J. (1993). Approximate models for ductile metals containing nonspherical voids - case of axisymmetric prolate ellipsoidal cavities. *Journal of the Mechanics and Physics of Solids*, 41:1723–1754.
- GOLOGANU, M., LEBLOND, J. B. et DEVAUX, J. (1994). Approximate models for ductile metals containing nonspherical voids - case of axisymmetric oblate ellipsoidal cavities. *Journal of Engineering Materials and Technology*, 116:290–297.
- GOLOGANU, M., LEBLOND, J. B., PERRIN, G. et DEVAUX, J. (1995). *Continuum Micromechanics*, chapitre Recent extensions of Gurson's model for porous ductile metals in Continuum Micromechanics. P. Suquet.
- GOODIER, J. N. (1933). Concentration of stress around spherical and cylindrical inclusions and flaws. *Journal of Applied Mechanics*, APM-55-7:39–44.
- GRANGE, M., BESSON, J. et ANDRIEU, E. (2000). An anisotropic gurson type model to represent the ductile rupture of hydrided zircaloy-4 sheets. *International Journal of Fracture*, 105.
- GREEN, A. E. et ZERNA, W. (1954). *Theoretical elasticity*. University Press Oxford.
- GRIFFITH, A. A. (1920). The phenomena of rupture and flow in solids. *Philosophical Transactions of the Royal Society*, 221:163–198.
- G'SELL, C. (1988). Instabilités de déformation pendant l'étirage des polymères solides. *Revue de Physique Appliquée*, 23:1085–1101.
- G'SELL, C. (1995). *Introduction à la mécanique des polymères*, chapitre Loi de comportement mécanique des polymères solides, pages 141–168. C. G'Sell et J.M. Haudin, INPL.
- G'SELL, C., ALY-HELAL, N. A. et JONAS, J. J. (1983). Effects of stress triaxiality on neck propagation during the tensile stretching of solid polymers. *Journal of Materials Science*, 18:1731–1742.
- G'SELL, C., HIVER, J. M. et DAHOUN, A. (2002). Experimental characterization of deformation damage in solid polymers under tension and its interrelation with necking. *International Journal of Solids and Structure*, 39:3857–3872.
- G'SELL, C., HIVER, J. M., DAHOUN, A. et SOUAHI, A. (1992). Video-controlled tensile testing of polymers and metals beyond the necking point. *Journal of Materials Science*, 27:5031–5039.
- G'SELL, C. et JONAS, J. J. (1979). Determination of the plastic behavior of solid polymers at constant true strain rate. *Journal of Materials Science*, 14:583–591.
- GUO, T. F., FALESKOG, J. et SHIHA, C. F. (2008). Continuum modeling of a porous solid with pressure-sensitive dilatant matrix. *Journal of the Mechanics and Physics of Solids*, pages 2188–2212.

- GURSON, A. L. (1975). *Plastic flow and fracture behavior of ductile materials incorporation void nucleation, growth, and interaction*. Thèse de doctorat, Brown University.
- GURSON, A. L. (1977). Continuum theory of ductile rupture by void nucleation and growth : Part 1 : Yield criteria and flow rules for porous ductile media. *Journal of Engineering Materials and Technology*.
- HAMOUDA, H. B. H. (2000). *Endommagement et Fissuration en Fluage de Polyéthylènes Extrudés : Approche Locale - Approche Globale*. Thèse de doctorat, Ecole Nationale Supérieure des Mines de Paris.
- HAN, H. Z. Y., MCLEISH, T. C. B., DUCKETT, R. A., WARD, N. J., JOHNSON, A. F., DONALD, A. M. et BUTLER, M. (1988). Experimental and theoretical studies of the molecular motions in polymer crazing. *Macromolecules*, 31:1348–1357.
- HAO, S. et BROCKS, W. (1997). The Gurson-Tvergaard-Needleman model for rate and temperature dependent materials with isotropic and kinematic hardening. *Computational Mechanics*, 20:34–40.
- HAUDIN, J. M. (1995). *Introduction à la mécanique des polymères*, chapitre Mécanismes microscopiques de déformation des polymères semi-cristallins, pages 251–273. C. G'Sell et J.M. Haudin, INPL.
- HAUDIN, J. M. (2006). *Matériaux pour l'ingénieur*, chapitre Solidification. Mise en forme des polymères, pages 125–136. Ecole des Mines de Paris.
- HAUDIN, J. M. et G'SELL, C. (1995). *Introduction à la mécanique des polymères*, chapitre Structures et morphologies des polymères semi-cristallins, pages 97–115. C. G'Sell et J.M. Haudin, INPL.
- HILL, R. (1947). A theory of the yielding and plastic flow of anisotropic metals. *Proceedings of the Royal Society of London*, 183:281–297.
- HILL, R. (1950). *The mathematical theory of plasticity*. Oxford University Press.
- H.ROSCOE, K., N.SCHOFIELD, A. et P.WROTH, C. (1958). On the yielding of soils. *Géotechnique*, 9:71–83.
- HUTCHINSON, J. (1968). Singular behaviour at the end of a tensile crack in a hardening material. *Journal of the Mechanics and Physics of Solids*, 16:13–31.
- IISRP (2005). Ethylene-propylene rubbers & elastomers. Rapport technique, International Insitute of Synthetic Rubber Producers. <http://www.iisrp.com/WebPolymers/10EPDMSep11.pdf>.
- IRANI, R. R. et CALLIS, C. F. (1963). *Particle size : measurement, interpretation and application*. Wiley, New York.
- IRWIN, G. R. (1958). *Handbook der Physik* 6. Springer.
- ISHIKAWA, M., NARISAWA, I. et OGAWA, H. (1977). Criterion for craze nucleation in pc. *Journal of Polymer Science*, 15.

- IVANKOVIC, A., PANDYA, K. C. et WILLIAMS, J. G. (2004). Crack growth predictions in polyethylene using measured traction separation curves. *Engineering Fracture Mechanics*, 71:657–668.
- JACKSON, J. D. (1962). *Classical Electrodynamics*. John Wiley & Sons, New York.
- JEAN, A. (2009). *Etude d'un élastomère chargé : de sa nanostructure à son macro-comportement*. Thèse de doctorat, Ecole Nationale Supérieure des Mines de Paris.
- JIANG, W., LIANG, H. et JIANG, B. (1998). Interparticle distance-temperature-strain rate equivalence for the brittle tough transition in polymer blends. *Polymer*, 39:4437–4442.
- JIANG, W., YUANG, Q., AN, L. et JIANG, B. (2002). Effect of cavitations on brittle-ductile transition of particle toughened thermoplastics. *Polymer*, 43:1555–1558.
- JOLLY, L., TIDU, A., HEIZMANN, J. J. et BOLLE, B. (2002). Microstructure evolution in polyamide PA11 under small uniaxial extension. *Polymer*, 43:6839–6851.
- KANIT, T. (2005). *Notion of representative volume element for heterogeneous materials : statistical and numerical approach*. Thèse de doctorat, Ecole Nationale Supérieure des Mines de Paris.
- KAUSCH, H. H. (1976). Energy considerations relating to crack propagations in thermoplastics. *Kunststoffe*, 66:538–544.
- KELLER, A. (1957). A note on single crystals in polymers : Evidence for a folded chain configuration. *Philosophical Magazine*, 2:1171–1175.
- KELLER, A. (1959). Electron microscope-electron diffraction investigations of the crystalline texture of polyamides. *Journal of Polymer Science*, 35:361.
- KIM, J., GAO, X. et SRIVATSAN, T. S. (2004). Modelling of void growth in ductile solids : effects of stress triaxiality and initial porosity. *Engineering Fracture Mechanics*, 71:379–400.
- KINOSHITA, M. (1959). An investigation of the structures of polyamide series. *Makromolekulare Chemie*, 33:1–20.
- KOHAN, M. I. (1973). *Nylon Plastics*, page 295. Wiley Interscience.
- KOPLIK, J. et NEEDLEMAN, A. (1988). Void growth and coalescence in porous plastic solids. *International Journal of Solids and Structures*, 24:835–853.
- KRAMER, H. H. (1983). Microscopic and molecular fundamentals of crazing. *Advanced Polymer Science*, 52:1–56.
- KRAMER, H. H. et BERGER, L. L. (1990). Craze growth and fracture. *Advances in Polymer Science*, 91:1–68.

- KUKSENKO, V. S. et TAMUZS, V. P. (1981). *Fracture micromechanics of polymer materials*, pages 61–163. Martinus Nijhoff Publishers : Boston.
- LAFARGE, M. (2004). *Modélisation couplée comportement endommagement et critères de rupture dans le domaine de transition du PVDF*. Thèse de doctorat, Ecole Nationale Supérieure des Mines de Paris.
- LAGENDDIJK, A., VREEKER, R. et DEVRIES, P. (1989). Influence of internal reflection on diffusive transport in strongly scattering media. *Physical Letter A*, 136:81–88.
- LAI, J. et van der GIESSEN, E. (1997). A numerical study of crack-tip plasticity in glassy polymer. *Mechanics of Materials*, 25:183–197.
- LAIARINANDRASANA, L., BESSON, J., LAFARGE, M. et HOCHSTETTER, G. (2009). Temperature dependent mechanical behaviour of pvdf : Experiments and numerical modelling. *International Journal of Plasticity*, 25:1301–1324.
- LAZZERI, A. et BUCKNALL, C. B. (1993). Dilatational bands in rubber-toughened polymers. *Journal of Materials Science*, 28:6799–6808.
- LAZZERI, A. et BUCKNALL, C. B. (1995). Applications of a dilatational yielding model to rubber-toughened polymers. *Polymer*, 36:2895–2902.
- LEBLOND, J. B. et PERRIN, G. (1996). *Introduction à la mécanique de la rupture ductile des métaux*. Ecole Polytechnique.
- LEBLOND, J. B., PERRIN, G. et DEVAUX, J. (1995). An improved Gurson-type model for hardenable ductile details. *European Journal of Mechanics A/Solids*, 14:499–527.
- LEE, B. J., ARGON, A. S., PARKS, D. M., AHZI, D. M. et BARCTZAK, Z. (1993). Simulation of large plastic deformation and texture evolution in high-density polyethylene. *Polymer*, 34:3555–3575.
- LEEVERS, P. S. (1995a). Impact and dynamic fracture of tough polymers by thermal decohesion in a dugdale zone. *International Journal of Fracture*, 73:109–127.
- LEEVERS, P. S. (1995b). Impact fracture of polyethylene : A non-linear-elastic thermal decohesion model. *Engineering Fracture Mechanics*, 52: 999–1014.
- LEEVERS, P. S. (1996). Impact and dynamic fracture resistance of crystalline thermoplastics : Prediction from bulk properties. *Polymer engineering and science*, 36:2296–2305.
- LEFEBVRE, X. (2002). *Fissuration Fragile Lente du Polyamide 11 : Mécanismes et Durées de Vie en Fluage*. Thèse de doctorat, Ecole Nationale Supérieure des Mines de Paris.
- LEMAÎTRE, J. et CHABOCHE, J. (1985). *Mécanique des matériaux Solides*. Dunod.

- LIN, B. J. et ARGON, A. S. (1992). Deformation resistance in oriented nylon-6. *Macromolecules*, 25:4011.
- LIU, Y., MURAKAMI, S. et KANAGAWA, Y. (1994). Mesh-dependence and stress singularity in finite element analysis of creep crack growth by continuum damage mechanics approach. *European Journal of Mechanics, A/Solids*, 13:395-417.
- MAGILL, J. H. (1969). Formation of spherulities in polyamides. iv. even-odd polyamides and poly(ω aminocarboxylic acids). *Journal of Polymer Science*, 7:123-142.
- MARGOLINA, A. et WU, S. (1988). Percolation model for brittle tough transition in nylon rubber blends. *Polymer*, 29:2710-2173.
- MARINI, B., MUDRY, F. et PINEAU, A. (1985). Experimental study of cavity growth in ductile rupture. *Engineering Fracture Mechanics*, 6:989-996.
- MARQUEZ-LUCERO, A., G'SELL, C. et NEALE, K. W. (1989). Experimental investigation of neck propagation in polymers. *Polymer*, 30:636-642.
- MAUZAC, O. et SCHIRRER, R. (1992). Crack-tip damaged zones in rubber-toughened amorphous polymers : a micromechanical model. *Journal of Materials Science*, 25:5125-5133.
- MCCLINTOCK, F. A. (1968a). A criterion for ductile fracture by the growth of holes. *Journal of Applied Mechanics*.
- MCCLINTOCK, F. A. (1968b). Local criteria for ductile fracture. *International Journal of Fracture*, 4:103-130.
- MEAR, M. et HUTCHINSON, J. (1985). Influence of yield surface curvature on flow localization in dilatant plasticity. *Mechanics of Material*, 4:395-407.
- MEN, Y. F., RIEGER, J. et HOMEYER, J. (2004). Synchrotron ultrasmall-angle x-ray scattering studies on tensile deformation of poly(1-butene). *Macromolecules*, 37:9481-9488.
- MOLINARI, A., CANOVA, G. et AHZI, S. (1987). A self-consistent approach of the large deformation polycrystal viscoplasticity. *Acta Metallurgica*, 35:2283-2994.
- MURATOĞLU, O. K., ARGON, A. S. et COHEN, R. E. (1995a). Crystalline morphology of polyamide-6 near planar surfaces. *Polymer*, 36:2143-2152.
- MURATOĞLU, O. K., ARGON, A. S., COHEN, R. E. et WEINBERG, M. (1995b). Microstructural fracture processes accompanying growing crack growth in tough rubber-modified polyamides. *Polymer*, 36:4787-4795.
- MURATOĞLU, O. K., ARGON, A. S., COHEN, R. E. et WEINBERG, M. (1995c). Toughening mechanisms of rubber-modified polyamides. *Polymer*, 36:921-930.
- NAHSHON, K. et HUTCHINSON, J. (2007). Modification of the Gurson model for shear failure. *European Journal of Mechanics A/Solids*, 27:1-17.

- NEEDLEMAN, A. (1987). A continuum model for void nucleation by inclusion debonding. *Journal of Applied Mechanics*, 57:525–531.
- NEEDLEMAN, A. et TVERGAARD, V. (1987). An analysis of ductile rupture modes at a crack tip. *Journal of the Mechanics and Physics of Solids*, 35:151–183.
- NIMMER, R. P. et WOODS, J. T. (1992). An investigation of brittle failure in ductile, notch-sensitive thermoplastics. *Polymer Engineering and Science*, 16.
- OOSTENBRINK, A. J., MOLENAAR, L. J. et GAYMANS, R. J. (1990). Polymer processing society. In *6th Annual Meeting, Nice*.
- OSHINSKI, A. J., KESKKULA, H. et PAUL, D. R. (1996). The effect of polyamide end-group configuration on morphology and toughness of blends with maleated elastomers. *Journal of Applied Polymer Science*, 61:623–640.
- PARDOEN, T., DOGHRI, I. et DELANNAY, F. (1998). Experimental and numerical comparison of void growth models and void coalescence criteria for the prediction of ductile fracture in copper bars. *Acta Materialia*, 46:541–552.
- PARDOEN, T. et HUTCHINSON, J. W. (2000). An extended model for void growth and coalescence. *Journal of the Mechanics and Physics of Solids*, 48:2467–2512.
- PAWLAK, A. et PIORKOWSKA, E. (1999). Effect of negative pressure on melting behaviour of spherulites in thin films of several crystalline polymers. *Journal of Applied Polymer Science*, 74:1380–1385.
- PEARSON, R. A. et YEE, A. F. (1986). Toughening mechanisms in elastomer-modified epoxies, part 2. microscopy studies. *Journal of Materials Science*, 21:2457–1488.
- PEARSON, R. A. et YEE, A. F. (1991). Influence of particle size and particle size distribution on toughening mechanisms in rubber-modified epoxies. *Journal of Materials Science*, 26:3828–3844.
- PEREZ, J. (2001). *Matériaux non cristallins et science du désordre*. PPUR.
- PERRIN, G. et LEBLOND, J. B. (1990). Analytical study of a hollow sphere made of plastic porous material and subjected to hydrostatic tension - application to some problems in ductile fracture of metals. *International Journal of Plasticity*, 6:677–699.
- PETERLIN, A. (1971). Molecular model of drawing polyethylene and polypropylene. *Journal of Materials Science*, 6:490–508.
- PETERLIN, A. (1972). *Plastic deformation of unoriented polymer under tensile load*. New York : Plenum Press.
- PETERLIN, A. (1975). Plastic deformation of polymers with fibrous structure. *Colloid and Polymer Science*, 253:809–823.

- PINEAU, A. (1992). *Topics in Fracture and Fatigue*, chapitre Global and local approaches of fracture - transferability of laboratory test results to components, pages 197–234. Argon, A.S. (Ed.).
- RABINOWITZ, S. et BREADMORE, P. (1974). Cyclic deformation and fracture of polymers. *Journal of Materials Science*, 9.
- RABINOWITZ, S., WARD, I. M. et PARRY, J. S. C. (1970). The effect of hydrostatic pressure on the shear yield behaviour of polymers. *Journal of Materials Science*, 5.
- RICE, J. et ROSENGREN, G. F. (1968). Plane strain deformation near a crack tip in a power-law hardening material. *Journal of the Mechanics and Physics of Solids*, 16:1–12.
- RICE, J. R. et TRACEY, D. M. (1969). On the ductile enlargement of voids in triaxial stress fields. *Journal of the Mechanics and Physics of Solids*, 17:201–217.
- RITTEL, D. (2000). An investigation of the heat generated during cyclic loading of two glassy polymers. part I : Experimental. *Mechanics of Materials*, 32:131–147.
- ROSCOE, K. H. et BURLAND, J. B. (1968). *Engineering Plasticity*, chapitre On the generalized stress-strain behaviour of wet clay, pages 535–609. Cambridge University Press.
- ROTTLER, J. et ROBBINS, M. O. (2003). Growth, microstructure, and failure of crazes in glassy polymers. *Physical Review*.
- ROUSSELIER, G. (1987). Ductile fracture models and their potential in local approach of fracture. *Nuclear Engineering and Design*, 105:97–111.
- ROUSSELIER, G. (2001). *HANDBOOK Materials behavior models*, chapitre The Rousselier model for porous metal plasticity and ductile fracture. Academic press.
- RRP (2005). Rubber material selection guide. Rapport technique, Robinson Rubber Products. <http://www.robinsonrubber.com>.
- SAJE, M., PAN, J. et NEEDLEMAN, A. (1982). Void nucleation effects on shear localization in porous plastic solids. *International Journal of Fracture*, 19:163–182.
- SCHIRRER, R. (1995). *Introduction à la mécanique des polymères*, chapitre Les craquelures dans les polymères, pages 395–411. C. G'Sell et J.M. Haudin, INPL.
- SCHNELL, B. (2006). *Etude par simulation numérique de la transition vitreuse et de l'état vitreux de polymères denses amorphes : propriétés mécaniques et phénomène de cavitation*. Thèse de doctorat, Université de Strasbourg.
- SCHULTZ, J. M. (1984). Microstructural aspects of failure in semi-crystalline polymers. *Polymer engineering and science*, 35:770–785.

- SCODELLARO, L. (1998). *Endommagement par cavitation du polypropylène renforcé au choc par des particules d'élastomère*. Thèse de doctorat, Université Louis Pasteur at Strasbourg.
- SCOTT, R. (1959). Structure of spherulites as revealed by selected-area electron diffraction and electron microscopy. *Journal of Applied Physics*, 28:1089.
- SEIDELMANN, W. D. U. et KÖNCZÖL, L. (1980). On the validity of the ductile model for craze zones at crack tips in pmma. *Journal of Materials Science*, 15:2389–2394.
- SHA, Y., HUI, C. Y., A. RUINA, A. et KRAMER, E. J. (1997). Detailed simulation of craze fibril failure at a crack tip in a glassy polymer. *Acta Materialia*, 45:3555–3563.
- SHENG, P. (1995). *Introduction to Wave Scattering, Localization, and Mesoscopic Phenomena*. Academic Press.
- SLICHTER, W. P. (1959). Crystal structures in polyamides made from w-amino acids. *Journal of Polymer Science*, 36:259–266.
- SMIT, R. J. M., BREKELMANS, W. A. M. et MEIJER, H. E. H. (1999). Prediction of the mechanical behavior of non-linear heterogeneous systems by multi-level finite element modeling. *Computer Methods in Applied Mechanics and Engineering*, 155:181–192.
- SOCRATE, S. et BOYCE, M. C. (2000). Micromechanics of toughened polycarbonate. *Journal of the Mechanics and Physics of Solids*, 48:233–273.
- STEENBRINK, A. C., van der GIESSEN, E. et WU, P. D. (1997). Void growth in glassy polymers. *Journal of the Mechanics and Physics of Solids*, 45.
- STERNSTEIN, S. S. (1975). Yielding in glassy polymers. *Polymeric Materials*, pages 369–410.
- STERNSTEIN, S. S. et ONGCHIN, L. (1969). Yield criteria for plastic deformation of glassy high polymer in general stress fields. *Polymer*, 10:1117–1124.
- STOER, J. (1985). *Computational Mathematical Programming*, chapitre Principles of sequential quadratic programming methods for solving nonlinear programs. Springer.
- STROBL, G. (1997). *The physics of polymers*, chapitre Microscopic Dynamics, pages 313–356. Springer, Berlin Heidelberg.
- SUE, H. J., HUANG, J. et YEE, A. F. (1992). Interfacial adhesion and toughening mechanisms in an alloy of polycarbonate/polyethylene. *Polymer*, 33:4868.
- SUN, D. Z., KIENZLER, R., VOSS, B. et SCHMITT, W. (1992). Fracture mechanics : Twenty-second symposium (volume ii). In *ASTM STP 1131*, pages 368–378.

- TANGUY, B. (2001). *Modélisation de l'essai Charpy par l'approche locale de la rupture. Application au cas de l'acier 16MND5 dans le domaine de la transition*. Thèse de doctorat, Ecole Nationale Supérieure des Mines de Paris.
- TANGUY, B. et BESSON, J. (2002). An extension of the rousselier model to viscoplastic temperature dependent materials. *International Journal of Fracture*, 116:81–101.
- TANGUY, B., BESSON, J., PIQUES, R. et PINEAU, A. (2005). Ductile to brittle transition of an a508 steel characterized by charpy impact test part I : experimental results. *Engineering Fracture Mechanics*, 72:49–72.
- THOMASON, P. F. (1985a). A three-dimensional model for ductile fracture by the growth and coalescence of microvoids. *Acta Metallurgica*, 33:1087–1095.
- THOMASON, P. F. (1985b). Three-dimensional models for the plastic limit-load at incipient failure of the intervoid matrix in ductile porous solids. *Acta Metallurgica*, 33:1079–1085.
- THOMASON, P. F. (1990). *Ductile Fracture of Metals*. Pergamon Press.
- THOMASON, P. F. (1993). Ductile fracture by the growth and coalescence of microvoids of non-uniform size and spacing. *Acta Metallurgica et Materialia*, 41:2127–2134.
- THYO, Y. S., ARGON, A. S., COHEN, R. E. et WEINBERG, M. (2002). Toughening of isotactic polypropylène with CaCO_3 particles. *Polymer*, 43:3661–3674.
- TIJSSENS, M. G. A., van der GIESSEN, E. et SLUYS, L. J. (2000). Modeling of crazing using a cohesive surface methodology. *Mechanics of Materials*, 21:19–35.
- TILL, P. H. (1957). The growth of single crystals of linear polyethylene. *Journal of Polymer Science*, 24:301–306.
- TVERGAARD, V. (1981). Influence of voids on shear band instabilities under plain strain conditions. *International Journal of Fracture*, 17:389–407.
- TVERGAARD, V. (1982). On localization in ductile materials containing spherical voids. *International Journal of Fracture*, 18:237–252.
- TVERGAARD, V. (1990). Material failure by void growth. *Advances in Applied Mechanics*, 27:83–151.
- TVERGAARD, V. (1996). Effect of void size difference on growth and cavitation instabilities. *Journal of the Mechanics and Physics of Solids*, 44:1237–1253.
- TVERGAARD, V. (1998). Interaction of very small voids with larger voids. *International Journal of Solids and Structures*, 30:3989–4000.
- TVERGAARD, V., HUANG, Y. et HUTCHINSON, J. W. (1992). Cavitation instabilities in a power hardening elastic-plastic solid. *European Journal of Mechanics, A/Solids*, 11:215–231.

- TVERGAARD, V. et HUTCHINSON, J. W. (1992). The relation between crack growth resistance and fracture process parameters in elastic-plastic solids. *Journal of the Mechanics and Physics of Solids*, 40:1377–1397.
- TVERGAARD, V. et NEEDLEMAN, A. (1984). Analysis of the cup-cone fracture in a round tensile bar. *Acta metallurgica et materialia*, 32:157–169.
- TZIKA, P. A., BOYCE, M. C. et PARKS, D. M. (2000). Micromechanics of deformation in particle toughened polyamides. *Journal of the Mechanics and Physics of Solids*, 48:1893–1929.
- van de HULST, H. C. (1957). *Light scattering by Small Particles*. Dover Publications, New York.
- van der SANDEN, M. C. M., de KOK, J. M. M. et MEIJER, H. E. H. (1994). Deformation and toughness of polymeric systems : 7. influence of dispersed rubbery phase. *Polymer*, 35:2995–3003.
- van DOMMELEN, J. A. W., BREKELMANS, W. A. M. et BAAIJENS, F. P. T. (2003). Micromechanical modeling of particle-toughening of polymers by locally induced anisotropy. *Mechanics of Materials*, 35:845–863.
- VERDU, J. (1985). *Traité des plastiques : action de l'eau*, volume A3165. Techniques de l'ingénieur.
- VERDU, J. (1990). *Traité des plastiques : vieillissement chimique*, volume A3150. Techniques de l'ingénieur.
- VINCENT, P. I. (1972). A correlation between critical tensile strength and polymer cross-sectional area. *Polymer*, 13.
- WARD, I. M. (1971). Review : The yield behaviour of polymers. *Journal of Materials Science*, 6:1397–1417.
- WARD, I. M. et HADLEY, D. W. (1993). *Mechanical Properties of Solid Polymers*. Wiley Editor.
- WILBRINK, M. W. L., ARGON, A. S., COHEN, R. E. et WEINBERG, M. (2001). Toughenability of nylon-6 with CaCO_3 filler particles : new findings and general principles. *Polymer*, 42:10155–10180.
- WILLIAMS, J. G. (1984). *Fracture mechanics of polymers*. Ellis Horwood.
- WU, P. et van der GIESSEN, E. (1994). Analysis of shear band propagation in amorphous glassy polymers. *International Journal of Solids and Structures*, 31:1493–1517.
- WU, P. D. et van der GIESSEN, E. (1995a). Computational aspects of localized deformations in amorphous glassy polymers. LTM Report 1068, Delft Univ. of Techn.
- WU, P. D. et van der GIESSEN, E. (1995b). On neck propagation in amorphous glassy polymers under plane strain tension. *International Journal of Plasticity*, 11:211–235.

- WU, S. (1985). Phase structure and adhesion in polymer blends : A criterion for rubber toughening. *Polymer*, 26:1855–1863.
- WU, S. (1988). A generalized criterion for rubber cavitation toughening : the critical matrix ligament thickness. *Journal of Applied Polymer Science*, 35:549–561.
- XIA, L. et SHIH, C. F. (1995a). Ductile crack growth - I. a numerical study using computational cells with microstructurally-based length scales. *Journal of the Mechanics and Physics of Solids*, 43:233–259.
- XIA, L. et SHIH, C. F. (1995b). Ductile crack growth - II. void nucleation and geometry effects on macroscopic fracture behavior. *Journal of the Mechanics and Physics of Solids*, 43:1953–1981.
- XIA, L., SHIH, C. F. et HUTCHINSON, J. W. (1995). A computational approach to ductile crack growth under large scale yielding conditions. *Journal of the Mechanics and Physics of Solids*, 43:389–413.
- XIAO, F. et CURTIN, W. A. (1995). Numerical investigation of polymer craze growth and fracture. *Macromolecules*, 28:1654–1660.
- YEE, A. F. (1977). The yield and deformation behaviour of some polycarbonate blends. *Journal of Applied Polymer Science*, 12:757.
- YEE, A. F. et PEARSON, R. A. (1986). Toughening mechanisms in elastomer-modified epoxies. part 1 : Mechanical studies. *Journal of Materials Science*, 29:2462–2474.
- ZHANG, X. C., BUTLER, M. F. et CAMERON, R. E. (2000). The ductile brittle transition of irradiated isotactic polypropylene studied using simultaneous small angle Xray scattering and tensile deformation. *Polymer*, 41:3797–3807.
- ZHANG, Z. et HAUGE, H. (1999). *Fatigue and Fracture mechanics*, chapitre On the Gurson micro-mechanical parameters, pages 364–383. T. Panotin et S. Shepard.
- ZHU, J. X., PINE, D. J. et WEITZ, D. A. (1991). Multiple light scattering and cavitation in two phase tough polymers. *Physical Review A*, 44:3948.

Annexes

LA THÉORIE DE LA DIFFUSION MULTIPLE DE LA LUMIÈRE

A

La théorie de la propagation de la lumière dans les matériaux opaques n'est détaillée ici. Pour obtenir de plus amples informations, il faut se reporter aux travaux de [Jackson \(1962\)](#), [van de Hulst \(1957\)](#), [Sheng \(1995\)](#). L'essentiel est de savoir que les paramètres pertinents sont :

- la dérivée de la section diffusante $\frac{ds_d(\Omega)}{d\Omega}$ des diffuseurs avec Ω l'angle solide,
- le libre parcours moyen de diffusion L_m
- le libre parcours moyen de transport L_m^* .

A.1 DIFFUSION SIMPLE

L'index de variation peut varier aléatoirement dans le matériau. Dans ce cas, le faisceau cohérent de lumière I_0 est atténué en fonction de la distance d qu'il aura parcouru.

$$I(d) / I_0 = e^{-d/L_m} \quad (\text{A.1})$$

avec $I(d)$ l'intensité du faisceau transmis.

Lorsque l'épaisseur de l'échantillon est inférieure au libre parcours moyen L_m , alors le faisceau est en général diffusé une seule fois dans l'échantillon. Ainsi on emploie le terme de diffusion simple. Un diffuseur est défini par sa section de diffusion notée s_d , sa forme et son index optique. Soit ρ le nombre de diffuseurs par unité de volume, alors le libre parcours moyen L_m est déterminé comme suit :

$$L_m = \frac{1}{\rho\sigma} \quad (\text{A.2})$$

Dans le cas des échantillons épais (jusqu'à $d < 10L$), l'intensité de la lumière transmise permet toujours de déterminer L_m mais les informations concernant la position des diffuseurs sont perdues car de la diffusion multiple se produit.

Les diffuseurs de Rayleigh sont des diffuseurs dont la taille est petite en comparaison à la longueur d'onde λ . Leur section est alors définie comme suit :

$$\sigma = \frac{8\pi}{3} \left(\frac{2\pi n_0}{\lambda_0} \right)^4 \left(\frac{n^2}{n_0^2} - 1 \right)^2 \left(\frac{n^2}{n_0^2} + 2 \right)^{-2r^6} \quad (\text{A.3})$$

avec r le rayon des diffuseurs, n l'indice des diffuseurs, n_0 l'indice du matériau et λ_0 la longueur d'onde dans le vide.

L'intensité diffusée par les diffuseurs de Rayleigh est isotrope. Cependant, si la taille des diffuseurs devient comparable ou plus grande que la longueur d'onde alors l'intensité diffusée perd son caractère isotrope mais la forme des diffuseurs le reste. Dans ce cas, la théorie de Mie permet de décrire l'intensité de la lumière diffusée.

A.2 DIFFUSION MULTIPLE DE LA LUMIÈRE

Dans les échantillons épais, le faisceau lumineux est en général diffusé plusieurs fois à l'intérieur de l'échantillon avant d'émerger de nouveau comme le montre la figure A.1.

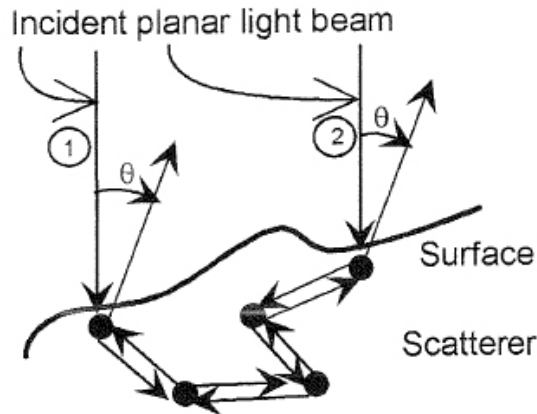


FIGURE A.1 – Propagation aléatoire du faisceau lumineux à travers les diffuseurs du matériau (Géhan et Schirrer 1999)

Au cours de cette propagation aléatoire, non seulement l'amplitude de la lumière évolue mais également sa phase. Le libre parcours moyen de transport L^* est la longueur moyenne caractéristique de cette propagation aléatoire. Dans les cas des diffuseurs de Rayleigh, L^* est égal à L_m mais pour de plus gros diffuseurs, L^* se définit comme cela :

$$L^* = L_m (1 - \langle \cos(\theta) \rangle)^{-1} \quad (\text{A.4})$$

avec

$$\langle \cos(\theta) \rangle = \frac{1}{\sigma} \int \left[\frac{d\sigma(\Omega)}{d\Omega} \cos(\theta) \right] d\Omega \quad (\text{A.5})$$

où θ est l'angle formé par les faisceaux incident et diffusé.

A.3 RÉTRODIFFUSION COHÉRENTE DE LA LUMIÈRE

Comme le montre la figure A.1, dans les matériaux très opaques, le chemin suivi par un premier faisceau de son point d'entrée à son point de sortie est équivalent au chemin suivi par un second faisceau mais en sens inverse, cette fois. Ainsi si le faisceau est à la fois plan et cohérent,

l'intensité dans la direction incidente ($\theta = 0$) est alors le double de l'intensité incohérente diffusée. Le cône de rétro-diffusion $I(\theta)$ correspond à la transformée de Fourier de la distribution de l'intensité $I(x)$; la distance moyenne entre l'entrée et la sortie du faisceau dans l'échantillon est strictement L^* et la largeur du cône θ_0 est proportionnelle à $\lambda/2\pi L^*$. L^* est de l'ordre de $10 \mu\text{m}$ pour les matériaux opaques et 1 mm pour les matériaux opalescents. Le cône est donc plutôt étroit, de l'ordre de quelques degrés pour la lumière visible. Grâce à la théorie de la diffusion, la manière la plus simple d'exprimer l'équation du cône de rétro-diffusion est la suivante :

$$I(q)/I_{incoh} = 1 + \frac{1 - e^{-2(1+z_0)L^*q}}{2(1+z_0)L^*q} \quad (\text{A.6})$$

avec $q = 2\pi\theta/\lambda$ et $z_0 \approx 0.7104$ qui correspond au plan utilisé dans le modèle de diffusion.

Lorsque les faisceaux incident et détecté ont le même état polarisé, le pic de la rétro-diffusion enregistré doit atteindre la valeur théorique du double de la valeur de la diffusion incohérente (figure A.2).

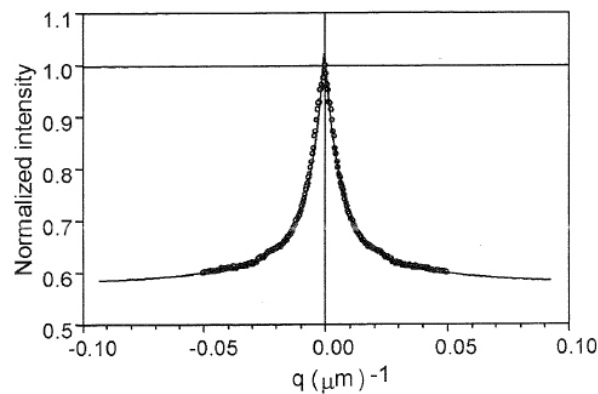


FIGURE A.2 – Courbe typique $I(q)$ pour un matériau opaque (Géhant et Schirrer 1999)

Une équation plus précise pour exprimer ce pic est donnée par :

$$I(q)/I_{incoh} = 1 + \frac{1}{(1+2z_0)(L^*q+1)^2} \left(1 + \frac{1 - e^{-2z_0L^*q}}{L^*q} \right) \quad (\text{A.7})$$

Il est également possible d'utiliser deux facteurs correctifs. L'un d'eux concerne l'interface optique entre les diffuseurs et l'air (Lagenddijk *et al.* 1989, den Outer et Lagenddijk 1993). De par la non correspondance des indices optiques, une légère partie de la lumière diffusée est réfléchiée par l'interface au sein du matériau ce qui engendre l'accroissement du chemin optique. Cela a pour conséquence de rendre plus étroit le cône de rétro-diffusion et ainsi la valeur de L^* calculée par les deux précédentes équations (A.6, A.7) est maximisée. L'équation prenant en compte cet effet est la suivante :

$$I(q)/I_{incoh} = 1 + \frac{1}{[1 + 2(\epsilon_R + z_0)](L^*q + 1)^2} \left(1 + \frac{1}{L^*q} \left[1 + \frac{\epsilon_R L^*q - 1}{\epsilon_R L^*q + 1} e^{-2z_0 L^*q} \right] \right) \quad (\text{A.8})$$

avec $\epsilon_R = R/(1 - R)$, où R est la surface de réflexion calculée grâce à la loi de Fresnel (Zhu *et al.* 1991).

La seconde correction concerne la densité ρ des diffuseurs. En effet l'équation A.2 n'est vraie que si ρ est inférieur à 10%. Au dessus de cette densité, les interactions entre les particules augmentent et nécessitent une correction de l'équation.

ANALYSES DMA SUR DES BANDES EXTRUDÉES DE PA11

Des analyses de spectroscopie mécanique sont réalisées sur deux types de bandes extrudées de PA11 : l'une sans colorant donc transparente et une seconde avec colorant, colorant qui diffère de celui utilisé pour les tubes extrudés. Les résultats obtenus en terme d'évolution du coefficient de Poisson, du module de Young et du coefficient $\tan(\delta)$ sont comparés à ceux obtenus dans le cas d'un tube extrudé qui a fait l'objet de cette étude et sont présentés sur la figure B.1.

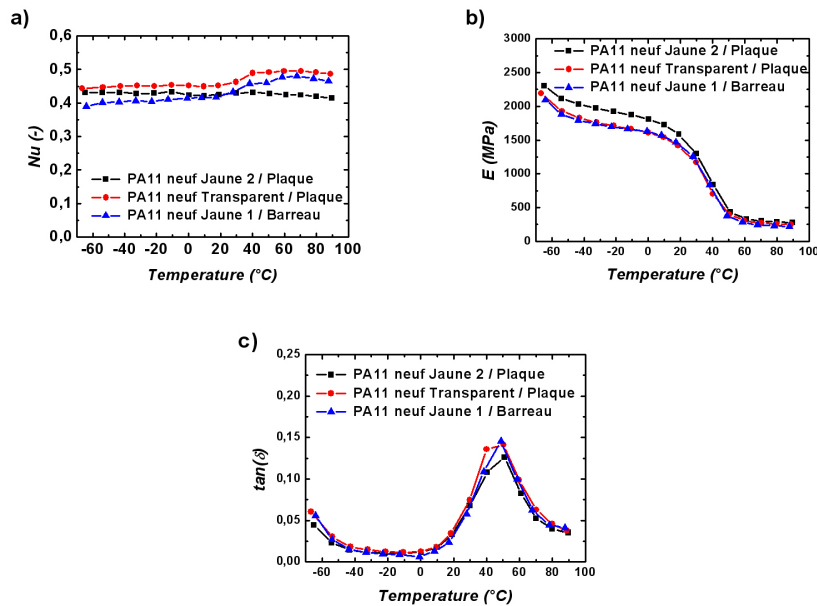


FIGURE B.1 – Spectroscopie sur des bandes extrudées et tube extrudé de PA11 : a) évolution de du coefficient de Poisson; b) évolution du module de Young; c) évolution de $\tan(\delta)$

La figure B.1 permet de mettre en évidence que l'ajout de colorant n'influe pas sur les caractéristiques principales du matériau, les résultats étant très proches les uns des autres et les variations trop faibles pour en extraire quelques conclusions.

MONTAGE EXPÉRIMENTAL DES ESSAIS DE TRACTION SUR ÉPROUVETTES ENTAILLÉES

Le système de serrage de l'éprouvette est schématisé sur la figure C.1. Le diamètre de l'éprouvette au niveau des têtes est de 10 mm. Sur celles-ci viennent se positionner des demi-coquilles, dont le rebord s'ajuste à la zone de congés de l'éprouvette. Au moment de la traction, les demi-coquilles viennent tirer sur l'éprouvette. L'ensemble tête+coquilles se positionne avant essai dans le mors de la ligne d'amarrage. L'ensemble est ensuite fixé par une vis de serrage sur le mors, ce qui empêche alors tout déplacement de la tête de l'éprouvette.

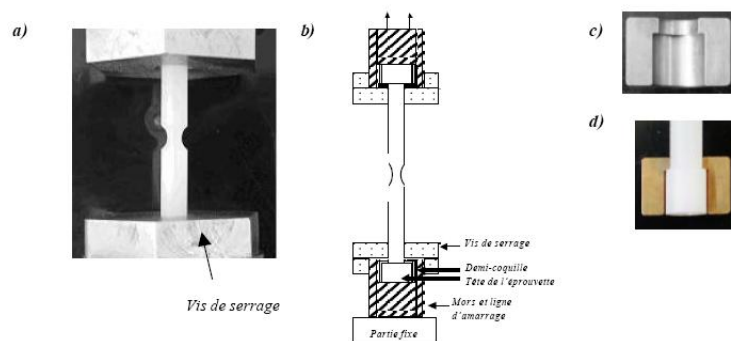


FIGURE C.1 – Schéma des têtes de l'éprouvettes avec une demi-coquille Lafarge (2004)

Dans la pratique, le montage d'une éprouvette nécessite d'abord le serrage de sa tête la plus haute. Ensuite on descend progressivement l'éprouvette pour que l'ensemble tête-goupilles vienne s'insérer dans le mors du bas. La vis du bas est ensuite serrée pour que l'éprouvette soit complètement fixée. A 20 °C, cela est assez simple, mais à plus basses températures, cette manipulation est beaucoup plus délicate due à l'encombrement dans l'enceinte climatique. La vis de serrage occupe une place non négligeable (13 mm environ de hauteur). Ainsi, l'ensemble serrage et extensomètre justifie la nécessité d'une longueur de fût assez élevée (environ 65 mm).

TRACTION UNIAXIALE SUR DES MATÉRIAUX VIEILLIS À -10°C

D

Cette annexe s'intéresse aux résultats de traction uniaxiale à -10°C sur éprouvettes NT_4 pour les trois matériaux vieillis : "aged P40", "aged P20 EPR" et "aged P20 NBR". Comme il a été écrit au cours du chapitre 7, les courbes obtenues, qu'elles soient en terme d'évolution de la contrainte en fonction de la réduction du diamètre de la section minimale ou de la déformation axiale, présentent des tendances équivalentes à celles obtenues à 0°C . Aucun changement de mécanismes, engendrés par la diminution de 10°C , ne semble opérer. Les résultats sont présentés sur les figures D.1 et D.2.

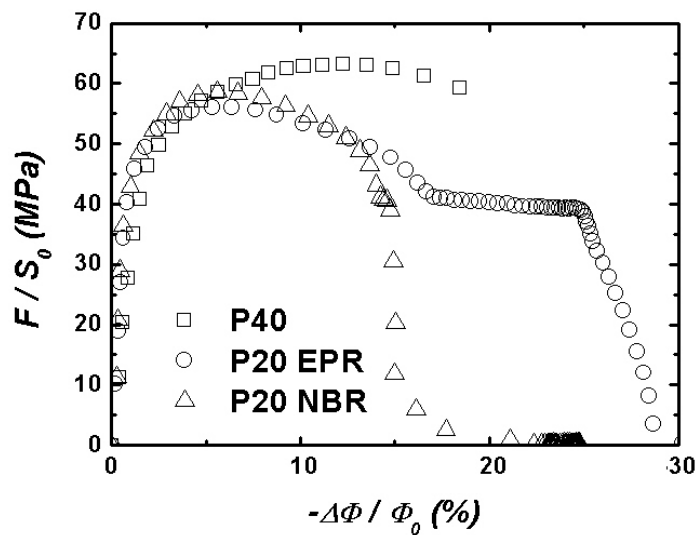


FIGURE D.1 – Courbes contrainte nominale-réduction diamétrale à -10°C après TU sur des éprouvettes NT_4 .

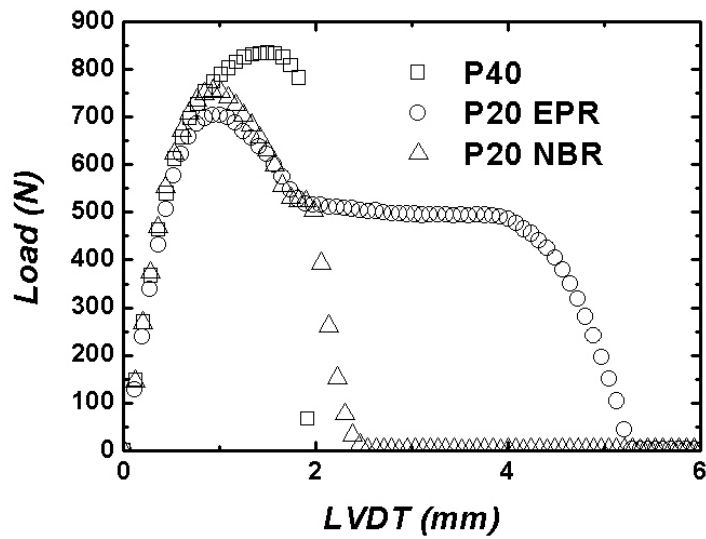


FIGURE D.2 – Courbes contrainte nominale-déformation axiale à -10°C après TU sur des éprouvettes NT₄.

ANISOTROPIE ET FISSURATION DES ÉPROUVETTES DE FLEXION 3 POINTS

Après extraction du tube et usinage des échantillons, sont obtenus des barreaux courbés avec une courbure qui opère dans le sens extérieur-intérieur du tube. Les tubes de PA11 sont obtenus par extrusion puis refroidis en étant plongés dans un bac d'eau. Ainsi est obtenu un effet cœur-peau avec l'apparition de contraintes résiduelles de l'ordre de $1 - 2 \text{ MPa}$ donnant une forme courbée aux échantillons.

Plusieurs échantillons non fissurés ont été usinés et sont sollicités en flexion 3 points dans des conditions équivalentes en faisant varier la direction de sollicitation. Les essais sont réalisés à 0°C et pour une vitesse de déflexion de 50 mm.min^{-1} . La figure E.1 présente l'échantillon de flexion utilisé et la manière dont sont référencées les faces.

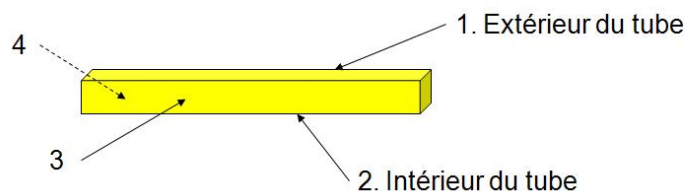


FIGURE E.1 – Schéma des échantillons de flexion 3 points.

Les résultats obtenus pour les quatre directions de sollicitation sont exposés sur la figure E.2. Circonférentiellement (sens $3 \rightarrow 4$ et $4 \rightarrow 3$), aucune différence n'est constatée. Par contre, les sollicitations dans les sens $1 \rightarrow 2$ et $2 \rightarrow 1$ encadrent les courbes obtenus citées précédemment.

La présence de cette courbure accroît la difficulté lors de la pré-fissuration de l'éprouvette. Le montage de fissuration se compose d'un micromètre fixé sur une vis sans fin permettant de faire avancer l'éprouvette sur une distance souhaitée (cf figure E.3). L'entaille se faisant à mi-hauteur de l'éprouvette, celle-ci est bloquée par deux cales suivant sa hauteur, afin d'obtenir deux fissures alignées l'une par rapport à l'autre. L'éprouvette est calée sur le côté opposé à la face fissurée. De cette façon, le front de fissuration sera parallèle au côté fissuré. La fissuration se fait très progressivement à raison d'environ 0.3 mm toutes les quinze minutes, pour permettre une certaine relaxation des contraintes au niveau du front de fissure.

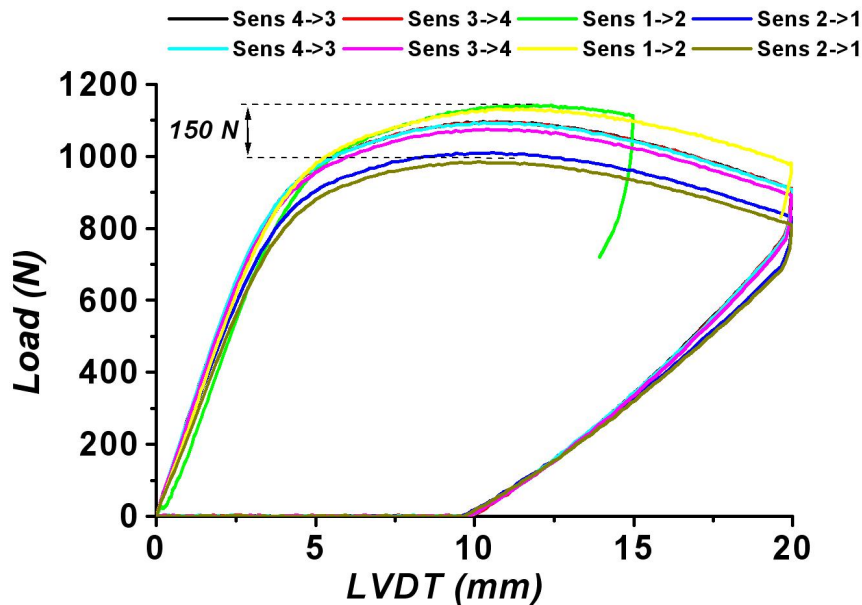


FIGURE E.2 – Courbes Force-LVDT obtenues en Flexion 3 points après sollicitation dans les 4 directions de l'échantillon.

La courbure des éprouvettes plus ou moins prononcée suivant les cas a induit parfois des difficultés pour garantir la même profondeur de fissuration. Le schéma présenté sur la figure E.4 explique le problème rencontré, en exagérant la situation afin de mieux visualiser les difficultés. Le cas de gauche a priori est celui qui pose le moins de problème puisque la profondeur souhaitée sera obtenue. En revanche, le cas de droite est plus préjudiciable car vu la courbure de l'éprouvette, la profondeur sera certainement plus importante que celle indiquée par le micromètre. Expérimentalement, la longueur de pré-fissuration suivant le cas a donc été plus faible pour obtenir au final la même profondeur de fissure. Enfin signalons, que le moindre défaut de parallélisme entre les deux côtés fissurés peut entraîner un front de fissuration incliné, préjudiciable surtout dans le cas des très petites longueurs de fissure.

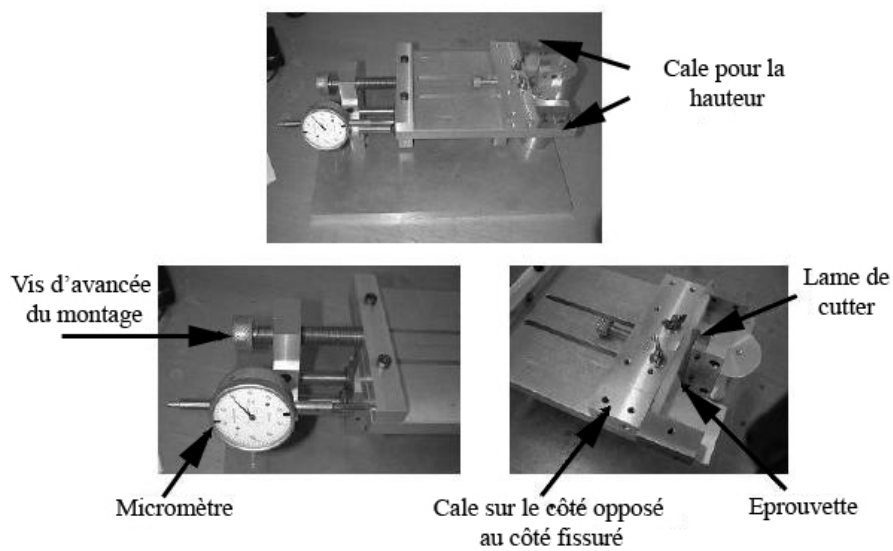


FIGURE E.3 – Montage de préfissuration (Lafarge 2004)

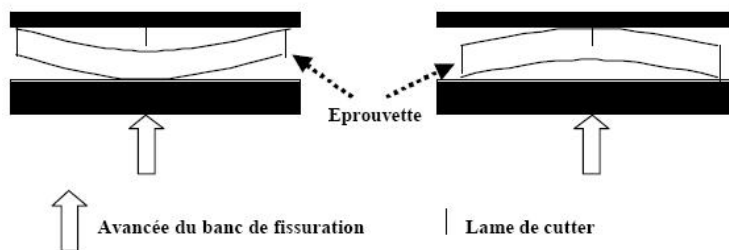


FIGURE E.4 – Schéma de la préfissuration d'éprouvettes courbées Lafarge (2004)

MICROMÉCANIQUE, COMPLÉMENTS...

F

F.1 EN VISCO-ÉLASTO-PLASTICITÉ

Lorsque $r_c = 0.1 \mu m$, la majorité des calculs ne sont pas allés jusqu'à leur terme, cela étant engendré par une réduction trop importante du volume de la cavité. Dès lors, les valeurs de ces calculs avant divergence ne sont pas reportées dans le tableau car extrêmement difficile à analyser. A cela s'ajoute le fait que la cavité est rarement sphérique en fin de calcul et donc, la simplification de la dépression appliquée en γ/r n'a plus de sens. Le tableau **F.1** répertorie les variations de volume de la cavité et la figure **F.1** présente les isovaleurs de σ_{eq} dans le cas RT-PA11.

TABLEAU F.1 – Variations de volume de la cavité dans les deux cas pour $r_c = 0.11 nm$.

$R_n \backslash r_c$	PA11			RT-PA11		
	$\Lambda/4$	$\Lambda/6$	$\Lambda/10$	$\Lambda/4$	$\Lambda/6$	$\Lambda/10$
$\Lambda/2$	DIV	DIV	-57.51%	DIV	DIV	-56.55%
Λ	DIV	DIV	-55.12%	DIV	DIV	-51.30%
2Λ	DIV	-50.34%	–	DIV	-50.34%	–

F.2 EN VISCO-ÉLASTO-PLASTICITÉ AVEC RHÉODURCISSEMENT

Toujours pour $r_c = 0.1 \mu m$, le tableau **F.2** répertorie les variations de volume de la cavité lorsque la matrice adopte un comporte evp avec rhéodurcissement. Le nodule n'est pas considéré comme cavité. La figure **F.2** présente les isovaleurs de σ_{eq} dans le cas RT-PA11.

TABLEAU F.2 – Variations de volume de la cavité dans les cas PA11 et RT-PA11 en visco-élasto-plasticité avec prise en compte du rhéodurcissement.

$R_n \backslash r_c$	PA11			RT-PA11		
	$\Lambda/4$	$\Lambda/6$	$\Lambda/10$	$\Lambda/4$	$\Lambda/6$	$\Lambda/10$
$\Lambda/2$	-49.87%	-51.78%	-51.78%	DIV	-52.25%	-50.82%
Λ	DIV	-51.78%	-47.48%	DIV	-51.78%	-45.57%
2Λ	-48.43	-45.09%	–	DIV	-45.09%	–

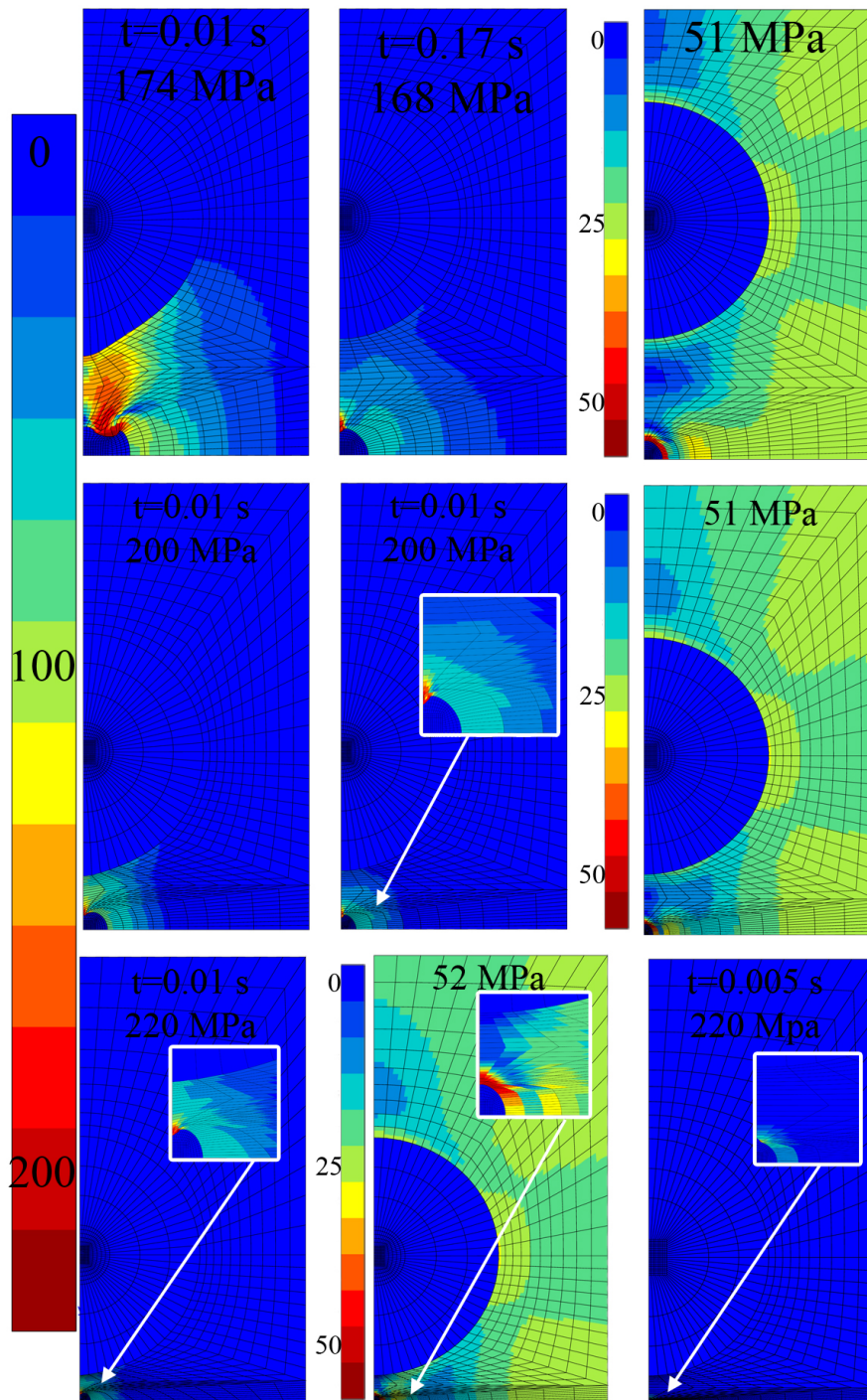


FIGURE F.1 – Isovaleurs de la contrainte équivalente de von Mises pour chaque maillage en élasto-visco-plasticité sans rhéodurcissement dans le cas RT-PA11 pour $r_c = 0.1\text{ nm}$ (cavité et nodule en bleu).

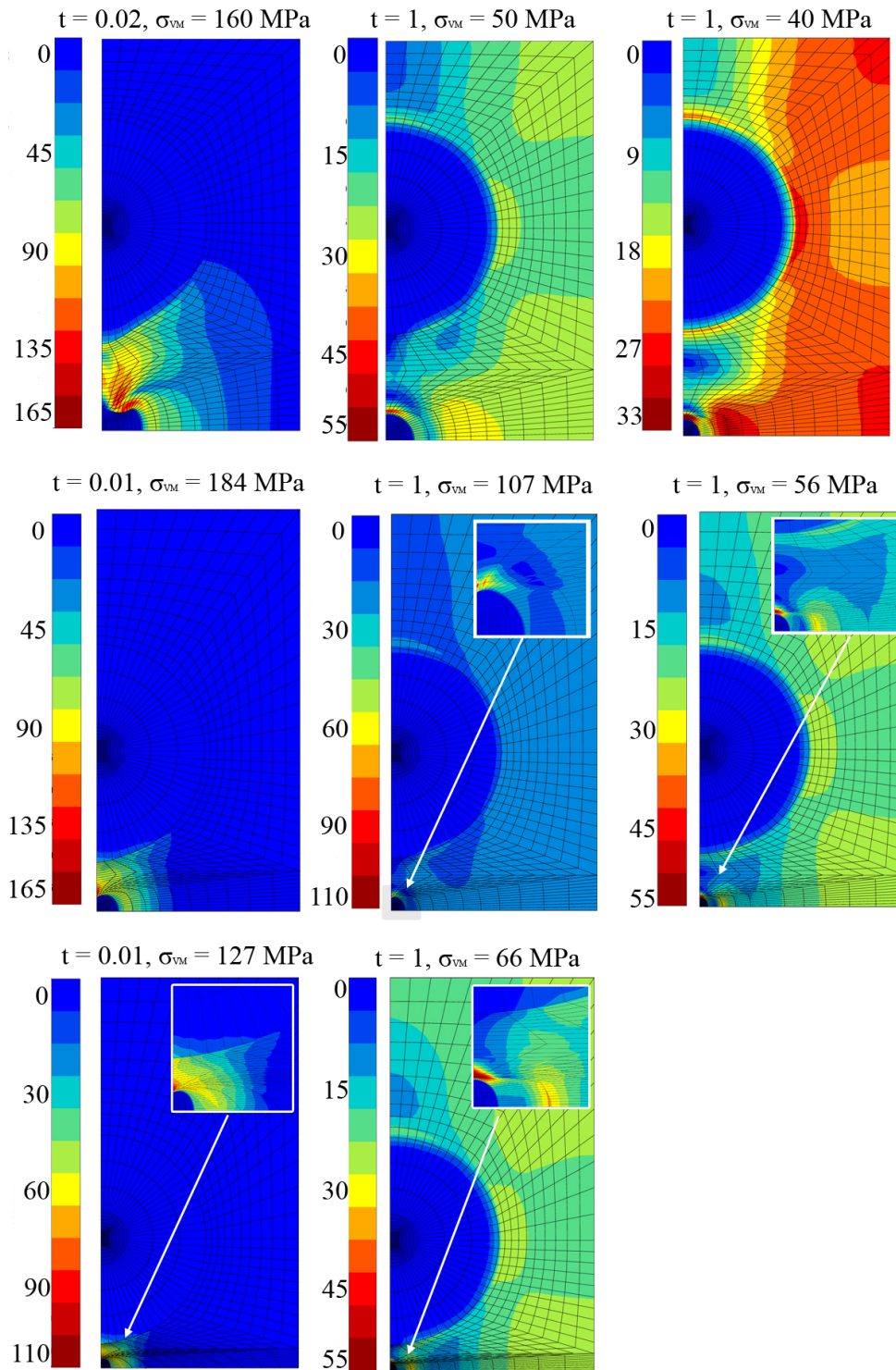


FIGURE F.2 – Isovaleurs de la contrainte équivalente de von Mises pour chaque maillage en élasto-visco-plasticité avec rhéodurcissement dans le cas RT-PA11 pour $r_c = 0.1 \text{ nm}$ (cavité et nodule en bleu).

RÉSUMÉ

ARKEMA s'intéresse à la conception de matériaux thermoplastiques renforcés au choc en incorporant des particules dans le polymère pur au moment de la mise en forme et à l'effet du vieillissement hydrolitique sur ces mêmes matériaux. L'ajout d'une seconde phase de type élastomère est une technique souvent utilisée dans le but d'améliorer la résilience d'un polymère, celle-ci étant testée par essais Charpy. La présence de particules modifie les mécanismes d'endommagement par germination, croissance et coalescence de cavités soit en cœur des particules de renfort, soit à l'interface matrice-particule.

La matrice des polymères renforcés de l'étude consiste en du Poly-Amide 11 (PA11), un thermoplastique semi-cristallin. Ce matériau, qui possède une porosité initiale mesurée de l'ordre de 1% blanchit sous charge. Ce blanchiment est dû à une augmentation de la porosité par croissance de cavités, qui engendre une variation de volume. On s'intéresse donc aux phénomènes d'endommagement par cavitation dans les matériaux polymères, ceux-ci pouvant conduire jusqu'à la rupture finale.

Dans la thèse, la compréhension des mécanismes d'endommagement est analysée aussi bien pour la matrice de PA11 neuf, pour la matrice de PA11 plastifiée et vieillie que pour deux matériaux renforcés. En effet, l'étude se focalise sur plusieurs grades de PA11 :

- **PA11**, le matériau de base de l'étude ;
- "**aged P40**", un polyamide 11 plastifié et vieilli ;
- "**aged P20 EPR**", un polyamide 11 plastifié et vieilli contenant une seconde phase de particules d'EPR ;
- "**aged P20 NBR**", un polyamide 11 plastifié et vieilli contenant une seconde phase de particules de NBR.

Les matériaux "Aged P40", "Aged P20 EPR" et "Aged P20 NBR" ont donc été vieillis dans des conditions similaires pour le contexte de l'étude. Des essais sur différents types d'éprouvettes, à différentes températures et vitesses de traction ont été menés. L'observation au Microscope Electronique à Balayage (MEB) de coupes au microtome d'échantillons obtenus suite à des essais interrompus permet de quantifier la porosité et d'en évaluer sa cinétique de croissance en fonction du taux de triaxialité des contraintes. La température de transition vitreuse, T_g , du PA11 est de l'ordre de 50°C. Pour des essais à température ambiante, un auto-échauffement local du polymère pourrait engendrer un franchissement de T_g et de ce fait, modifier les mécanismes de déformation et d'endommagement du matériau. Certains essais ont donc été instrumentés par une caméra thermique afin de mesurer l'élévation de la température dans les endroits critiques. Concernant les matériaux renforcés, des mesures de densité par pycnométrie ont été entreprises afin de déterminer la variation de volume avant et

après essai. Cette information est une donnée clé pour obtenir, par l'intermédiaire de la rétro-diffusion cohérente, la densité et la fraction de vide des nodules endommagés.

Les lois de comportement élasto-visco-plastiques classiques ne suffisent pas à rendre compte du phénomène de croissance de cavités. Cette étude poursuit les travaux antérieurs réalisés au Centre des Matériaux qui ont montré l'intérêt de modéliser par éléments finis le comportement de différents polymères thermoplastiques via une loi de comportement issue de la mécanique des milieux poreux : le modèle de Gurson-Tvergaard-Needleman (GTN). Les coefficients de ce modèle sont identifiés à partir des courbes globales et des informations locales telles que les taux de porosité mesurés au cours des essais interrompus par analyse d'images. Les essais suivis par caméra thermique, couplés à une identification des paramètres intervenant dans le modèle de Gurson-Tvergaard-Needleman (GTN) en fonction de la température, ont permis d'effectuer des calculs thermo-mécaniques à couplage faible et par conséquent de prendre en compte l'auto-échauffement du matériau. Dès lors, il est possible d'accéder aux champs de contrainte et déformation en pointe de fissure, données indispensables pour effectuer des calculs micromécaniques dans le cas des matériaux renforcés. Le champ de contrainte ainsi obtenu est appliqué à des cellules élémentaires. Des simulations numériques à l'échelle de la micromécanique ont été effectuées pour investiguer l'influence de la taille des nodules ou de la distance interparticulaire sur la naissance et croissance d'une cavité entre deux nodules.

Cette thèse montre qu'une nouvelle fois le modèle de Gurson-Tvergaard-Needleman, modèle initialement développé pour l'étude de la rupture ductile des matériaux métalliques, s'applique dans le cas d'un matériau polymère semi-cristallin. Le modèle s'avère pertinent pour décrire le comportement endommageable du matériau. Tout comme dans le PVDF, deux critères d'amorçage apparaissent : un critère en coalescence de cavités et un critère d'élongation des fibrilles. Les polymères se déformant rarement dans des conditions d'isothermie, l'auto-échauffement du matériau a été pris en compte en rendant les paramètres intervenant dans le modèle dépendant de la température ; les résultats s'avèrent intéressants et concordent bien avec ceux obtenus expérimentalement. La thèse met également en lumière la préservation de la ductilité par l'ajout d'une seconde phase de caoutchouc en dépit du vieillissement hydrolitique, dans une zone de température inférieure à la zone de température de transition vitreuse. Cependant nous montrons que, selon les caractéristiques de cette seconde phase, les mécanismes d'endommagement peuvent varier et ainsi le critère d'amorçage changer.

Mots clés : Polymères, polyamide 11, polyamide 11 renforcé choc, mécanique de l'endommagement, mécanique de la rupture, analyses éléments finis, modèle GTN.

ABSTRACT

Arkema is interested in the manufacturing of toughened thermoplastic materials by incorporating rubber particles in the matrix during the processing. The addition of a second phase of elastomeric particles is a common technique used to improve the toughness of a polymer. The presence of rubber particles induces a modification of the damage mechanisms by voids nucleation, growth and coalescence either within the rubber particles or at the interface rubber-matrix.

The studied toughened polymers have a PolyAmide 11 (PA11) matrix which is a semi-crystalline thermoplastic. This material which has an initial amount of porosity of 1% whitens when loaded. Whitening is related to cavitation occurring within the material by voids growth which generates a volume change. Thus we investigate the damage by cavitation which may be transformed into craze which, in turn, may provoke the failure.

The understanding of the damage mechanisms are analysed for the neat PA11, a plasticized and aged PA11 as well as two rubber toughened PA11. Indeed, the present study deals with four grades of PA11 :

- the **PA11**, the core material ;
- the "**aged P40**", a plasticized and aged PA11 ;
- the "**aged P20 EPR**", a plasticized and aged PA11 toughened with EPR ;
- the "**aged P20 NBR**", a plasticized and aged PA11 toughened with NBR.

The materials named "aged P40", "aged P20 EPR" and "aged P20 NBR" have been aged in similar conditions for the context of the study. Experimental investigations on various specimens, at various temperatures and crosshead displacements have been performed. The observation of microtome-cut samples, obtained by running interrupted tests, by scanning electron microscopy (SEM), enables us to quantify the amount of porosity and to highlight the growth kinetics as a function of the stress triaxiality ratio. The glass transition, T_g , of the neat PA11 is close to 50°C. Therefore during experimental investigations at room temperature, a local self-heating of the polymer may rise the temperature over T_g and thus, modify the deformation and damage mechanisms of the material. To measure the temperature rise in the critical area, an infrared camera has been used. Regarding the rubber-toughened material, density measurements by pycnometry enable to reach the volume variation of a specimen before and after the investigation. This information is a key data to get, through light backscattering experiments, the damaged particle density as well as the void fraction in the particles.

Standard elasto-visco-plastic constitutive equations aren't sufficient to describe the void growth phenomenon. Previous works have shown the interest of modelling by finite elements analysis the mechanical behaviour of a couple thermoplastic polymers by continuum mechanics for porous media : the Gurson-Tvergaard-Needleman (GTN) model. The GTN coefficients are identified through global curves as well as local data such as the amounts of porosity from the interrupted test, measured by image analysis. Through the investigations with the IR camera and the identification of the GTN coefficients for various temperatures, thermo-mechanical simulations have been performed to take into account the self-heating of the material. From then on, it is possible to derive the strain and stress fields at the crack tip, which are key data to test micromechanical simulations in the case of the toughened materials. Indeed, this stress field is then applied to representative elementary cells in order to perform micromechanical simulations and thus investigate the influence of the particle size and the interparticular distance on the nucleation and void growth of a cavity localized between two rubber particles.

This PhD work highlights the fact that once again, the GTN model, initially developed to study the ductile failure of metallic materials, can be used in the case of semi-cristalline polymer. The model turns out to be relevant to describe the mechanical behaviour of the PA11 as well as its damage. As the PVDF, craze initiation may occur through two criteria : at high stress triaxiality ratio, the coalescence of voids may induce the initiation of a crack whereas at low stress triaxiality ratio, it should be explained by the reach of a critical maximum principal plastic strain. Results from the numerical simulations taking into account the self heating of the polymer seem promising and agree well with the experimental results. Regarding the rubber-toughened PA11, this work also shows that rubber toughening may preserve the ductility of the materials despite the ageing and the range of accounted temperature below the glass transition. Therefore, we highlight that depending on the second phase characteristics, damage mechanisms may change and thus the crack initiation criterion may also change as well.

Keywords : Polymers, polyamide 11, rubber-toughened polyamide 11, damage mechanics, fracture mechanics, Finite Elements simulations, GTN model.

