



**HAL**  
open science

# Étude expérimentale et calcul des contraintes résiduelles dans des tubes extrudés en polyéthylène

Olivier Parant

► **To cite this version:**

Olivier Parant. Étude expérimentale et calcul des contraintes résiduelles dans des tubes extrudés en polyéthylène. Mécanique [physics.med-ph]. École Nationale Supérieure des Mines de Paris, 2002. Français. NNT : 2002ENMP1122 . tel-00443735

**HAL Id: tel-00443735**

**<https://pastel.hal.science/tel-00443735>**

Submitted on 4 Jan 2010

**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.

ECOLE DES MINES  
DE PARIS  
Collège doctoral

*N° attribué par la bibliothèque*

|\_|\_|\_|\_|\_|\_|\_|\_|\_|\_|\_|\_|\_|\_|\_|\_|\_|\_|

## **T H E S E**

pour obtenir le grade de  
**Docteur de l'Ecole des Mines de Paris**  
Spécialité "Sciences et Génie des Matériaux"

présentée et soutenue publiquement par

**Olivier Parant**

le 3 décembre 2002

<b>ETUDE EXPERIMENTALE ET CALCUL DES CONTRAINTES RESIDUELLES DANS DES TUBES EXTRUDES EN POLYETHYLENE</b>
--

*Directeurs de thèse : Jean-Marc Haudin, Michel Vincent*

### Jury

M.	Jean-Louis Halary	Rapporteur
M.	Gilles Regnier	Rapporteur
M.	Arnaud Poitou	Examinateur
M.	André Luciani	Examinateur
M.	Jean-Marc Haudin	Examinateur
M.	Michel Vincent	Examinateur
M.	Michel Duvalley	Membre invité



<b>INTRODUCTION .....</b>	<b>2</b>
<b>CHAPITRE 1 - FORMATION DES CONTRAINTES RESIDUELLES .....</b>	<b>7</b>
1 INTRODUCTION AUX CONTRAINTES RESIDUELLES .....	8
2 MECANISMES DE FORMATION DES CONTRAINTES RESIDUELLES DANS UNE BARRE .....	11
3 FORMATION DES CONTRAINTES RESIDUELLES LORS DU CALIBRAGE D'UN TUBE.....	32
4 RECAPITULATIF .....	41
<b>CHAPITRE 2 - CARACTERISATIONS EXPERIMENTALES DU PROCEDE....</b>	<b>42</b>
1 BIBLIOGRAPHIE .....	42
2 LES MATERIAUX – ESSAI D'EXTRUSION .....	48
3 RESULTATS OBTENUS .....	50
4 MESURES EN LIGNE .....	64
5 CONCLUSION .....	68
<b>CHAPITRE 3 - CARACTERISATION DES MATERIAUX .....</b>	<b>71</b>
1 CRISTALLINITE .....	72
2 VARIATION DU VOLUME SPECIFIQUE.....	77
3 COMPORTEMENT THERMOMECHANIQUE DES POLYMERES .....	82
<b>CHAPITRE 4 - MODELE THERMO – MECANIQUE – COMPORTEMENT ELASTIQUE.....</b>	<b>116</b>
1 METHODE DE TRANCHES.....	117
2 MODELISATION DU REFROIDISSEMENT .....	118
3 EQUATIONS MECANQUES GENERALES .....	125
4 MODELE THERMO – ELASTIQUE .....	129
5 CONCLUSION .....	155
<b>CHAPITRE 5 - MODELE THERMO–MECANIQUE – COMPORTEMENT VISCOELASTIQUE .....</b>	<b>156</b>
1 FORMULATION DE LA LOI DE COMPORTEMENT.....	157
2 TEMPS VIRTUEL .....	164
3 EXTENSION DU MODELE ELASTIQUE.....	168
4 MODELISATION DES CONTRAINTES AVANT LA CRISTALLISATION.....	173
5 FORMATION DES CONTRAINTES RESIDUELLES.....	176
6 CONCLUSION .....	193



## Introduction

Les contraintes résiduelles sont les contraintes internes qui existent dans un matériau à l'équilibre, c'est-à-dire libre de tout effort extérieur. Suivant leur amplitude et leur profil, ces contraintes peuvent introduire des déformations non désirables du produit si l'équilibre interne est modifié.

Cette thèse porte sur les mécanismes de formation des contraintes résiduelles lors de la fabrication de tubes de faible épaisseur (0.5mm) en polyéthylène. Ces tubes sont produits par les usines Cebal du groupe Pechiney et sont utilisés dans des applications cosmétiques haut de gamme. Un exemple de la fabrication des usines de Cebal est représenté Figure 0.1.



Figure 0.1 : exemples de produits réalisés à partir de tubes extrudés

Les tubes de conditionnement des produits cosmétiques se distinguent par leur faible épaisseur. Le manque de rigidité induit par cette caractéristique peut poser des problèmes de tenue de forme du tube lors des différentes étapes de fabrication et chez le client lors du remplissage.

La ligne de production est schématisée Figure 0.2. Les polymères sont classiquement extrudés. Afin d'éviter toute soudure longitudinale pour des raisons d'aspect, les tubes sont extrudés dans une filière cylindrique et calibrés au diamètre final lors du refroidissement. Les tubes plus courants, pour lesquels une ligne de soudure longitudinale est acceptée, sont extrudés à plat et ensuite roulés-soudés sur une ligne de production séparée.

La géométrie finale du tube est obtenue par le un calibreur (Figure 0.3). Il s'agit d'un bac où une dépression comprise entre 100 et 450 mbar plaque la surface extérieure du tube à l'intérieur d'une chambre de calibrage. La pression à l'intérieur du tube est elle égale à la pression atmosphérique. Une rampe d'eau disposée dans le sens de l'extrusion permet de refroidir le tube.

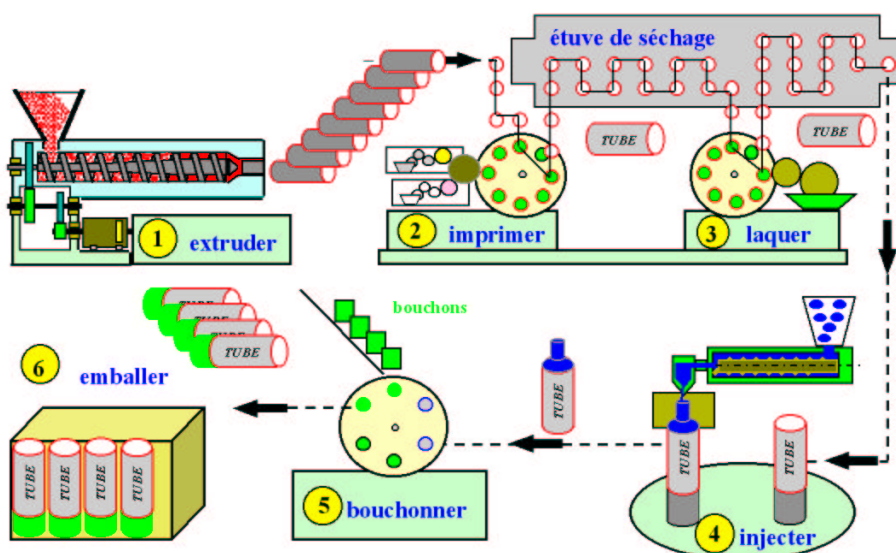


Figure 0.2 : étapes de fabrication des tubes

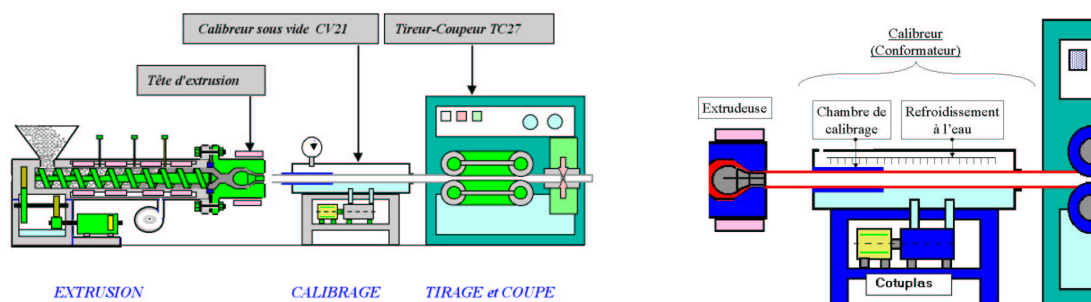


Figure 0.3 : extrusion des tubes et conformateur

A chacune des étapes suivantes le tube est soumis à des réchauffements pouvant modifier l'équilibre des contraintes résiduelles et provoquer une déformation :

- avant l'impression la surface est oxydée au moyen de lampes UV ou d'un coup de flamme pour améliorer la tenue des encres.

- afin de sécher l'encre ou la laque, le tube est passé en étuve à 80°C pendant environ 45 minutes.
- le bouchon est directement injecté sur la jupe ce qui introduit un réchauffement au niveau supérieur du tube.
- chez le client le tube sera à nouveau réchauffé lors de la soudure de l'extrémité.

Afin de pouvoir effectuer toutes les étapes du procédé le tube doit garder sa géométrie cylindrique. Il est important pour ceci de savoir maîtriser les valeurs et la répartition des contraintes résiduelles qui sont principalement induites au moment de la solidification.

En production, le niveau des contraintes résiduelles est obtenu en découpant le tube le long de la génératrice et en mesurant l'angle d'enroulement du tube. Cette méthode permet de régler les paramètres du procédé en recherchant un angle de fermeture de 120°. La dépression est le paramètre d'ordre 1 sur le profil des contraintes, son influence est représentée Figure 0.4 pour un polyéthylène basse densité. L'angle d'enroulement diminue lorsque la dépression augmente et pour ce matériau le tube peut même s'ouvrir si la dépression est supérieure à 200 mbar.

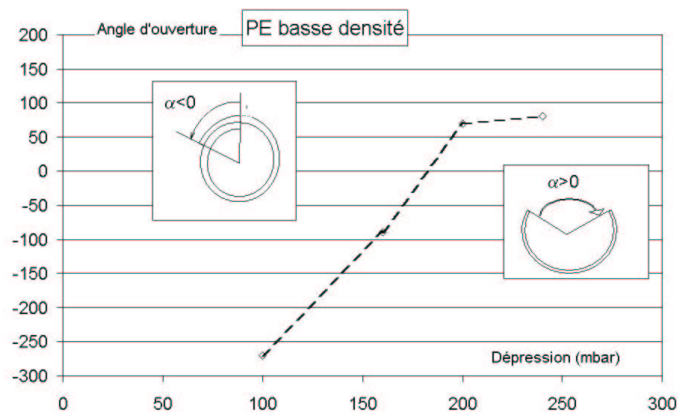


Figure 0.4 : influence de la dépression sur l'ouverture des tubes en polyéthylène haute et basse densité.

Le travail de thèse présenté dans ce manuscrit a consisté à déterminer les mécanismes de formation des contraintes résiduelles permettant d'expliquer ce résultat et à les modéliser en s'appuyant sur un programme de calcul thermique spécifique aux polymères THERM 4.0 (Cotto, 1984, Duffo, 1990). Cette étude sera effectuée principalement sur deux polyéthylènes : un polyéthylène basse densité radicalaire et un haute densité. L'utilisation de polyéthylènes linéaires a permis de mettre en évidence une influence de la vitesse d'extrusion qui n'apparaissait pas pour les deux autres matériaux.

**Le premier chapitre** présente de manière intuitive les mécanismes de formation des contraintes résiduelles. Nous y décrivons deux origines de contraintes résiduelles ayant des effets opposés sur le profil final : les contraintes dues à la rétraction du tube pendant le refroidissement et les contraintes dues aux conditions aux limites mécaniques. La description de ces mécanismes permet déjà de pouvoir comprendre l'effet de la dépression.

**Le deuxième chapitre** est relatif aux expériences de caractérisation que nous avons effectuées sur les tubes et sur le procédé. La détermination expérimentale du profil des contraintes est présentée et comparée aux résultats de la bibliographie. Nous y décrivons également les mesures des températures et des forces de frottement qui nous ont permis par la suite de caler ou de vérifier le modèle. Une parenthèse est ouverte sur l'effet de la vitesse d'extrusion pour les polyéthylènes basse densité linéaire ce qui permet



d'introduire l'influence possible de l'orientation, figée lors de la mise en forme du tube, lorsque le tube sera réchauffé à posteriori à des températures de 80°C.

La détermination des caractéristiques des polyéthylènes utilisés est décrite dans **le troisième chapitre**. Nous y avons caractérisé l'évolution du volume spécifique ainsi que du taux de cristallinité des deux polyéthylènes utilisés. Nous avons approfondi la représentation du comportement thermomécanique de ces matériaux dans les états fluides et solides.

Les résultats obtenus dans le troisième chapitre servent de données d'entrée aux modèles élastiques et viscoélastiques décrits respectivement dans les **quatrième et cinquième chapitre**. Le modèle se complexifie progressivement afin de pouvoir finalement représenter un comportement viscoélastique proche de celui du polymère et de considérer des conditions aux limites représentatives du procédé. Finalement les résultats numériques sont comparés aux résultats expérimentaux de la Figure 0.4.

(Cotto, 1984)

D. Cotto, "Etude de la fabrication de films de polypropylène par extrusion et refroidissement sur rouleau thermostaté", thèse de Doctorat, Ecole Nationale Supérieure des Mines de Paris, Sophia - Antipolis (1984).

(Duffo, 1990)

P. Duffo, "Etude théorique et expérimentale du procédé de fabrication de films minces de polypropylène par extrusion - biétirage.", thèse de Doctorat, Ecole Nationale Supérieure des Mines de Paris, Sophia - Antipolis (1990).

<b>CHAPITRE 1 - FORMATION DES CONTRAINTES RESIDUELLES</b> .....	<b>7</b>
1 INTRODUCTION AUX CONTRAINTES RESIDUELLES.....	8
1.1 La notion de contrainte : .....	8
1.2 Les contraintes résiduelles.....	9
1.3 Contraintes résiduelles dans une forme cylindrique : .....	10
2 MECANISMES DE FORMATION DES CONTRAINTES RESIDUELLES DANS UNE BARRE .....	11
2.1 Formation des contraintes dues à la variation du volume spécifique .....	11
2.1.1 Loi de comportement liquide-solide. ....	12
2.1.2 Refroidissement libre d'une barre .....	13
2.1.3 Refroidissement d'une barre encastrée : conditions aux limites en déplacement .....	15
2.1.4 Evolutions des conditions aux limites : force limite de rappel .....	16
a ) Evolution des conditions aux limites à la fin de la solidification .....	17
b ) Evolution des conditions aux limites avant la fin de la solidification. ....	18
2.1.5 Récapitulatif.....	20
2.2 Formations des contraintes dues au chargement extérieur.....	21
2.2.1 Evolution du chargement – Comportement liquide – solide élastique.....	21
2.2.2 Chargement extérieur constant dans une barre – comportement viscoélastique .....	23
a ) Avant la solidification. ....	23
b ) Redistribution des contraintes au cours de la solidification. ....	26
c ) Répartition des contraintes entre les couches solides. ....	27
2.2.3 Récapitulatif.....	28
2.3 Conclusion .....	29
3 FORMATION DES CONTRAINTES RESIDUELLES LORS DU CALIBRAGE D'UN TUBE.....	30
3.1 Formation des contraintes dues à la variation du volume spécifique. ....	31
3.1.1 Refroidissement libre d'un tube.....	31
3.1.2 Tube plaqué contre la chambre de calibrage.....	32
3.1.3 Perte de contact entre le tube et la chambre de calibrage. ....	34
3.2 Formation des contraintes dues au chargement extérieur. ....	35
3.2.1 Le tube est en contact avec la chambre de calibrage : .....	36
a ) Force de frottement. ....	36
b ) Influence de l'élongation axiale sur les contraintes orthoradiales. ....	36
3.2.2 Le tube n'est plus en contact avec la chambre de calibrage. ....	37
4 RECAPITULATIF.....	38



## Chapitre 1 - Formation des contraintes résiduelles

Dans ce chapitre, nous définissons de façon intuitive les mécanismes de formation des contraintes résiduelles rencontrées lors du calibrage des tubes. Dans les exemples que nous allons traiter ci-dessous, la formation des contraintes résiduelles sera due aux deux conditions suivantes :

- Un gradient de température au sein de la pièce lors du refroidissement.
- Une variation de la rhéologie en fonction de la température, soit donc une loi de comportement hétérogène dans l'épaisseur lors du refroidissement.

Lorsque la température diminue, les différentes zones de l'objet se rétractent. Cette rétraction n'étant pas homogène, elle ne peut pas s'effectuer librement : des contraintes internes se forment. Afin de comprendre comment les contraintes résiduelles apparaissent, considérons un corps continu composé de petits éléments cubiques de tailles égales (Figure 1.1).

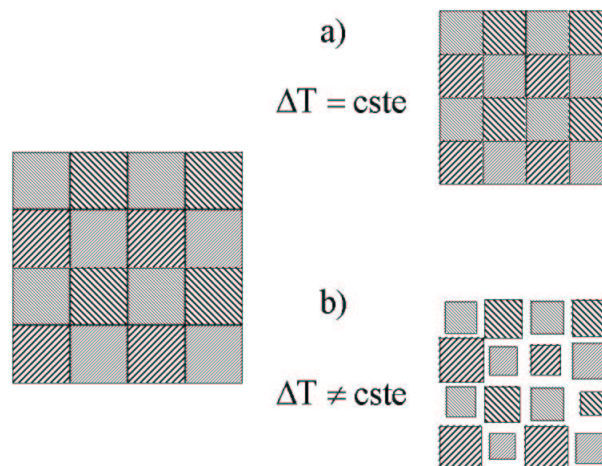


Figure 1.1 : contraction lors du refroidissement

a) - Si la température du corps diminue uniformément et si les surfaces extérieures restent libres, chaque élément va se contracter d'une quantité égale. Les éléments sont toujours des cubes d'égales dimensions, ajustés pour former un corps continu et aucune contrainte ne se développe.

b)- Si au contraire la température diminue de façon non uniforme, chaque élément va se contracter proportionnellement à sa propre variation de température. Si l'ensemble des éléments pouvait ainsi se déformer librement, le corps résultant de cet empilement ne serait plus continu. Afin de satisfaire à la condition de continuité, chaque élément doit restreindre la distorsion des éléments voisins ce qui provoque la formation de contraintes résiduelles.

Comme les températures initiales et finales sont généralement homogènes, il n'y aurait pas de contraintes résiduelles finales si la rhéologie était identique dans tout le matériau lors du refroidissement. La déformation totale en chaque point du corps est constituée de trois parties :

- a) La première correspond à une contraction uniforme proportionnelle à la variation de température. Puisque la contraction est égale dans toutes les directions, les déformations sont normales et il n'y a pas de cisaillement.
- b) La seconde correspond aux déformations nécessaires pour maintenir la continuité du corps. Ces déformations sont liées aux contraintes par la loi de comportement du matériau.
- c) Puis les déformations permettant d'équilibrer les efforts extérieurs. Si la loi de comportement est thermo - dépendante, les différences de propriétés mécaniques dans la pièce entraîneront des concentrations de contraintes dans les parties déjà refroidies (plus rigides).

## 1 Introduction aux contraintes résiduelles

### 1.1 La notion de contrainte :

Les contraintes correspondent aux efforts nécessaires au sein d'une pièce pour maintenir la continuité.

Les efforts à l'intérieur d'un milieu continu peuvent être représentés comme une densité surfacique de forces de cohésion,  $\vec{T}$ , s'appliquant sur une surface élémentaire de normale  $\vec{n}$ .  $\vec{T}$  est appelée vecteur contrainte, il dépend du point considéré, M, du temps t et de la normale  $\vec{n}$  associée à la surface élémentaire. Le tenseur des contraintes,  $\sigma$ , est relié au vecteur contrainte par la relation (1.1). Les composantes de ce tenseur sont représentées schématiquement Figure 1.2 dans un repère orthonormé mais également dans un repère cylindrique qui sera mieux adapté à l'étude mécanique dans un tube. Sur chaque face, le vecteur contrainte se décompose en une contrainte normale et deux contraintes tangentielles appelées contraintes de cisaillement, ce tenseur est symétrique.

$$\vec{T}(M, t, n) = \sigma(M, t) \cdot \vec{n} \quad ; \quad T_i = \sigma_{ij} n_j \quad (1.1)$$

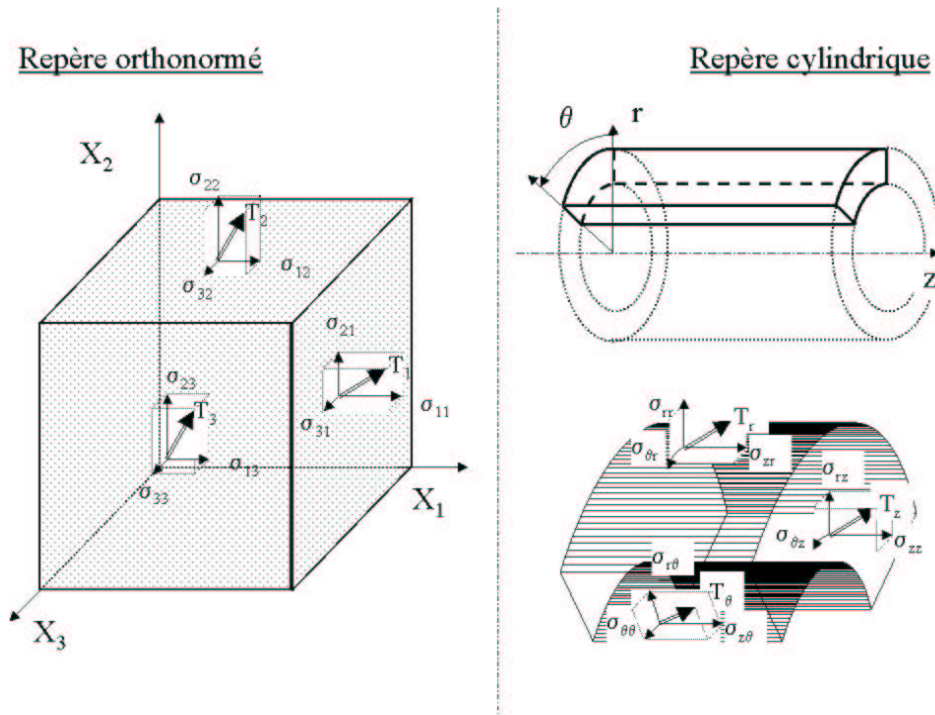


Figure 1.2 : représentation des contraintes

Considérons dans un premier temps les contraintes dues à des efforts extérieurs. Deux exemples intuitifs sont représentés sur la Figure 1.3 :

- La traction simple induit un profil de contrainte homogène dans l'épaisseur.
- Si la longueur de la barre est grande par rapport à ses dimensions transverses, la flexion simple induit un profil linéaire de contrainte. Dans cet exemple, la partie inférieure de la barre est en compression et la partie supérieure en traction.

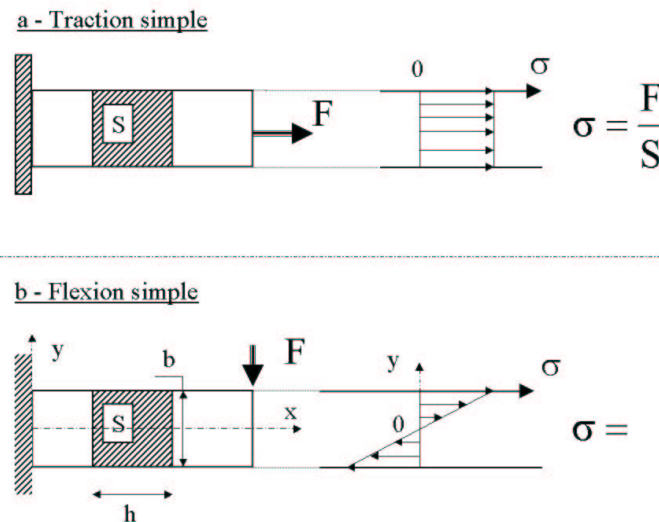


Figure 1.3 : exemples intuitifs de contraintes dues à un chargement extérieur

## 1.2 Les contraintes résiduelles

Il peut également y avoir des contraintes dans un milieu à l'équilibre et libre de tout effort extérieur, on parlera dans ce cas de **contraintes résiduelles**. Le profil de contrainte représenté Figure 1.4 est un exemple de contraintes résiduelles : la résultante et le moment de flexion dus aux contraintes étant nuls dans la barre, ils n'entraînent aucune déformation. Le milieu est à l'équilibre, or il subsiste des contraintes à l'intérieur du matériau.

Ces contraintes se forment par exemple durant le refroidissement libre d'une barre (Figure 1.4). Supposons afin de décrire simplement la formation des contraintes résiduelles que le polymère suit une loi de comportement liquide – solide élastique. Au dessus d'une température, dite température de solidification,  $T_S$ , le polymère se comporte comme un liquide incompressible. En dessous, il se comporte comme un solide élastique, avec un module  $E$  et un coefficient de Poisson,  $\nu$ , indépendants de la température.

- **Figure 1.4-a** : les premières couches se solidifiant en surface sont libres d'effectuer leur retrait thermique, puisque les autres couches sont encore à l'état liquide. La déformation associée est égale à  $\alpha_T(T_S - T_f)$ , où  $\alpha_T$  est le coefficient de dilatation linéaire et  $T_f$  la température finale.
- **Figure 1.4-b** : les couches à l'intérieur, qui vont se solidifier plus tard, seront soumises à la même déformation  $\alpha_T(T_S - T_f)$ , mais elles verront leur retrait bloqué par les couches extérieures (déjà solidifiées). Elles se retrouveront donc en traction, et mettront les couches extérieures en compression.

Ce type d'analyse conduit avec une discrétisation plus fine des couches à un profil de contrainte de type parabolique, représenté Figure 1.4-c.

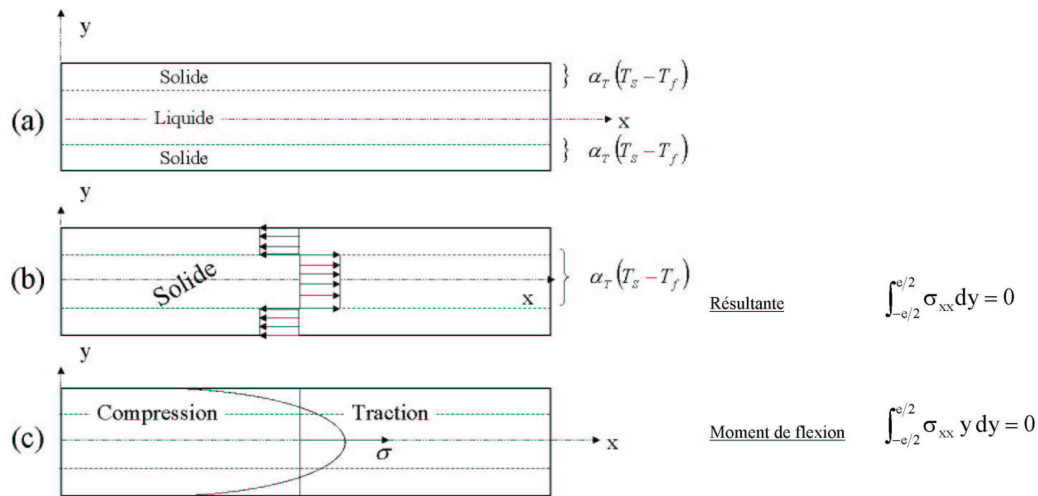


Figure 1.4 : exemple de contraintes résiduelles dans une barre

Les contraintes résiduelles sont dues dans cet exemple au gradient thermique dans l'épaisseur lors du refroidissement **et** à la modification de comportement lors de la solidification. Si ces deux conditions n'étaient pas rassemblées simultanément, il n'y aurait pas formation de contrainte résiduelles.

### 1.3 Contraintes résiduelles dans une forme cylindrique :

Nous reprenons Figure 1.5 le même profil de contrainte dans les directions orthoradiale ( $\theta\theta$ ) et longitudinale ( $zz$ ) d'un tube, que dans la barre après flexion (Figure 1.3 b.). Les couches situées à l'intérieur sont en traction et les couches extérieures en compression.

- Dans le cas de la barre, il est intuitif que si on annule la force  $F$ , définie Figure 1.3 b., celle-ci se courbera vers le haut soit donc du côté où les couches sont en traction.
- Dans le tube, le moment de flexion suivant  $z$ , induit par les contraintes  $\sigma_{\theta\theta}$ , a également tendance à enrayer le tube sur lui-même. Or la surface du tube étant fermée, ces déplacements sont bloqués et le moment de flexion ne s'annule pas. Pour que le tube puisse se déformer, il serait nécessaire de le sectionner suivant une de ses génératrices afin de libérer les déplacements dans la direction  $\theta\theta$ . Le profil de contrainte représenté Figure 1.5 ferait alors s'enrayer le tube sur lui-même.
- La forme cylindrique du tube rigidifie la structure et empêche également les déformations dues aux contraintes axiales,  $\sigma_{zz}$ . Afin d'autoriser les déplacements, on pourrait découper une fine bande parallèlement à la génératrice. Le profil de contrainte représenté Figure 1.5 ferait s'enrayer la bande vers le haut. Cependant il subsiste toujours une courbure dans la direction orthoradiale qui perturbe la mesure et fausse l'interprétation quantitative de l'enroulement de la bande en terme de contraintes résiduelles.

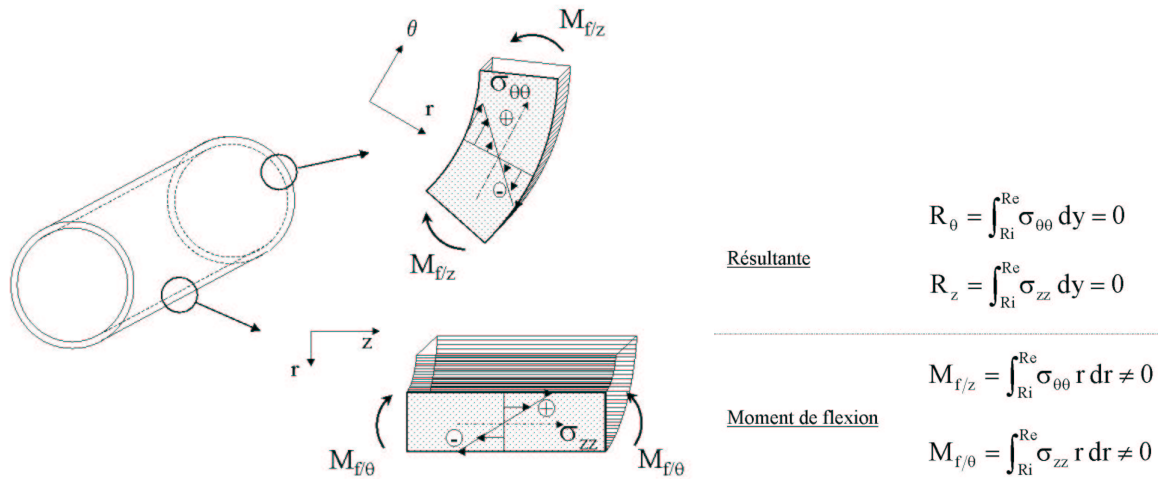


Figure 1.5 : exemples de contraintes résiduelles dans un tube

Les contraintes résiduelles dans les tubes peuvent ainsi induire des moments de flexion non nul dans l'épaisseur alors que le milieu est à l'équilibre. Seule la résultante des contraintes est nulle. Afin de mettre en évidence les moments de flexion, il est nécessaire de découper le tube afin d'autoriser les déplacements.

## 2 Mécanismes de formation des contraintes résiduelles dans une barre

Afin d'expliquer la formation des contraintes résiduelles, nous décrirons déjà les mécanismes dans le cas d'une barre refroidie par sa surface inférieure, dont nous n'autorisons que les déformations longitudinales. Les résultats seront ensuite appliqués au calibrage des tubes.

### 2.1 Formation des contraintes dues à la variation du volume spécifique

Ce sont les contraintes dues à la rétraction du matériau. Les contraintes résiduelles sont dues aux différences de retrait thermique qu'il y aurait entre les couches si celles-ci étaient indépendantes. La variation du volume spécifique caractérisé par le coefficient de dilatation,  $\alpha_T$ , sera donc le paramètre moteur de la formation de ce type de contraintes résiduelles.  $\alpha_T$  est considéré constant dans les exemples ci-dessous, et est relié aux variations du volume spécifique par l'équation (1.2) :

$$V = l^3$$

$$\beta_T = \frac{1}{V} \frac{\partial V}{\partial T} = \frac{1}{l^3} 3l^2 \frac{\partial l}{\partial T} = 3 \frac{1}{l} \frac{\partial l}{\partial T}$$

$$\alpha_T = \frac{1}{l} \frac{\partial l}{\partial T} = \frac{1}{3} \beta_T \quad (1.2)$$

Les déformations sont calculées dans le cas où les couches seraient indépendantes l'une de l'autre puis comparées à la déformation moyenne qui est déterminée en résolvant l'équilibre mécanique de la barre ( $\Sigma \sigma = 0$ ). La différence permet d'obtenir le profil des contraintes résiduelles.



Nous comparerons la formation des contraintes résiduelles dans deux cas extrêmes. Nous considérons d'abord la formation des contraintes résiduelles lors du refroidissement libre : la barre est libre de se rétracter longitudinalement en refroidissant. Puis nous encastrons ses extrémités afin de bloquer toutes déformations longitudinales et nous comparerons les profils finaux des contraintes résiduelles.

### 2.1.1 Loi de comportement liquide-solide.

Pour calculer les contraintes résiduelles dans un milieu en cours de solidification, l'approche la plus simple est de faire l'hypothèse que le matériau a un comportement liquide – solide.

- liquide au dessus d'une température, dite température de solidification. Le matériau est incompressible et son module d'Young,  $E$ , est nul. Il peut se déformer sans apparition de contrainte interne sauf dans le cas d'une compression isotrope.

Comportement liquide  $E=0, \nu=0,5$  (incompressible).

- Solide en dessous de cette température. Le matériau suit un comportement élastique indépendant de la température.

Comportement solide  $E$  et  $\nu$  sont indépendants de la température.

Avec une loi de comportement de type liquide - solide élastique, les déformations d'un point matériel doivent être prises en compte à partir de sa solidification. Les couches à l'état liquide pourront avoir une influence lors de la construction des contraintes résiduelles si une compression isotrope y apparaît mais les déformations de ce point à l'état liquide n'interviendront pas.

Par exemple dans le cas d'une sphère se refroidissant (Figure 1.6), les couches externes se solidifient en premier et veulent se contracter (en pointillé Figure 1.6). Cependant l'intérieur de la sphère étant encore à l'état liquide est incompressible et empêche les couches extérieures de se rétracter librement. Une pression hydrostatique, donc dans ce cas des contraintes de compression, vont se former dans la partie liquide et des contraintes de traction vont apparaître dans les couches extérieures. Dans le cas du tube, nous aurons cette situation si les couches internes et externes du tube sont solidifiées et la partie centrale est encore à l'état liquide. Ainsi il faut considérer la pression pouvant apparaître dans la partie liquide, mais uniquement pour calculer les contraintes dans les couches déjà solidifiées.

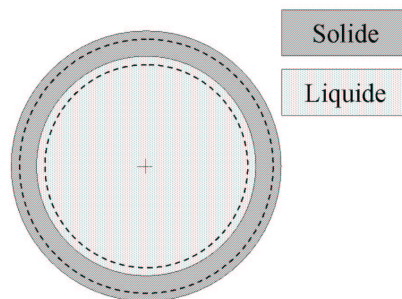


Figure 1.6 : refroidissement d'une sphère

### 2.1.2 Refroidissement libre d'une barre

La barre est divisée en deux couches d'égalles épaisseurs dans lesquelles la température est considérée homogène. Le matériau étant continu, les déformations sont égales dans l'épaisseur.

Le refroidissement est décomposé en deux étapes indiquées Figure 1.7. Cette cinétique de refroidissement sera reprise dans chaque exemple.

- A l'instant initial, la température est égale dans l'épaisseur et supérieure à la température de solidification. Les contraintes sont nulles.
- La 1<sup>ère</sup> étape correspond au moment où la couche supérieure (couche a) atteint la température de solidification. La barre s'est refroidie, mais uniquement la couche inférieure (couche b) est solidifiée. Puisque la couche a est encore à l'état liquide, la couche b a pu se rétracter librement et la couche a « a accompagné » le retrait de la couche b. Les contraintes résiduelles sont nulles dans l'épaisseur.
- 2<sup>ème</sup> Etape: : La barre est complètement refroidie. Les variations de température depuis l'étape précédente, et donc les retraits ( $\Delta_1, \Delta_2$ ), sont différents dans les deux couches. Dans cet exemple la couche inférieure empêche la couche supérieure de se rétracter. On en déduit que la couche inférieure, refroidie en premier, est en compression et que la couche supérieure est en traction. Par analogie à l'essai de flexion simple vu au chapitre précédent, la barre se courberait vers le haut, si elle était libre de fléchir.

Dans la situation où les couches sont indépendantes l'une de l'autre, la différence de retrait entre les deux couches serait égale à  $\Delta_3$ . Les deux couches ayant la même section, la déformation moyenne assurant l'équilibre des contraintes ( $\sigma_a + \sigma_b = 0$ ) au sein de la barre correspond à  $\Delta_3/2$ . Les contraintes dans les deux couches ont la même valeur absolue mais sont de signes opposés.

$$\begin{aligned}
 \Delta_1 &= \alpha (T_{sol} - T_{final}) \\
 \Delta_2 &= \alpha (T_b^{(1)} - T_{final}) \\
 \Delta_3 &= \Delta_1 - \Delta_2 = \alpha (T_{sol} - T_b^{(1)})
 \end{aligned}$$

$$\sigma_a = -\sigma_b = E \frac{\Delta_3}{2} = \frac{\alpha E}{2} (T_{sol} - T_b^{(1)}) \quad (1.3)$$

Le profil des contraintes résiduelles (Equation (1.3)) est dépendant du coefficient de dilatation, du module d'Young du matériau solide et de la différence de température entre les couches au moment de la solidification de la couche supérieure (1<sup>ère</sup> étape). Ainsi plus le refroidissement est rapide, plus la différence de retrait entre les couches est importante, et plus les contraintes sont importantes.

#### Remarque 1.1

Une autre méthode permettant d'expliquer la formation des contraintes résiduelles est de comparer les déformations respectives des couches avant leur solidification. En effet, les couches effectuent toutes le même retrait une fois solidifiées. C'est donc la différence de déformation effectuée alors que les couches sont encore à l'état liquide qui induit les différences de déformation constatées à la fin du refroidissement. Ce raisonnement est équivalent au précédent, mais peut être plus adapté pour expliquer les mécanismes de formation des contraintes résiduelles avec d'autres conditions aux limites.

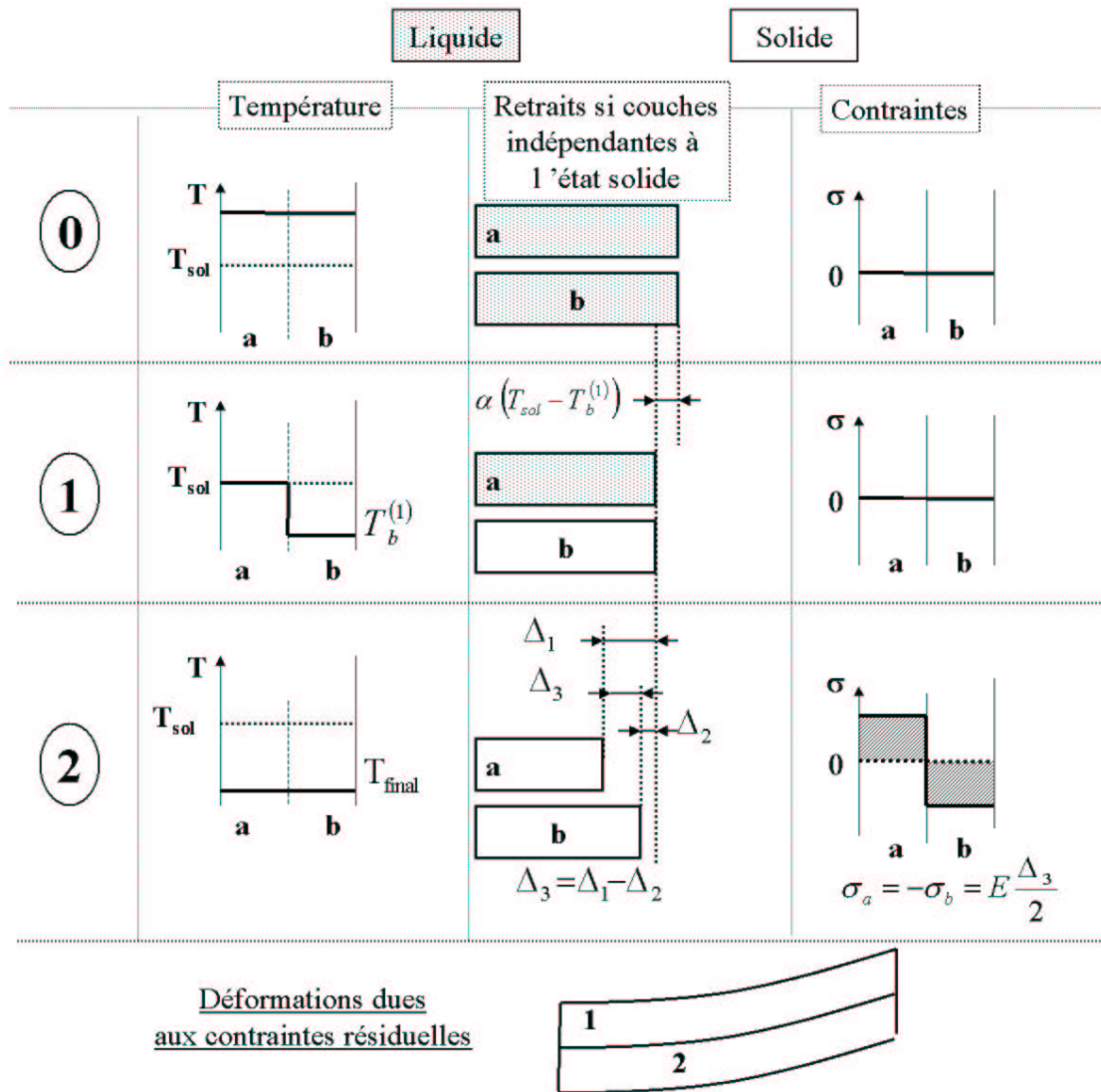


Figure 1.7 : formation des contraintes résiduelles – refroidissement libre

## 2.1.3 Refroidissement d'une barre encastrée : conditions aux limites en déplacement

Les extrémités de la barre sont maintenant encastrées, ce qui équivaut à une condition aux limites en déplacement nulle. Nous reprenons les mêmes étapes de refroidissement que précédemment, la formation des contraintes est représentée Figure 1.8.

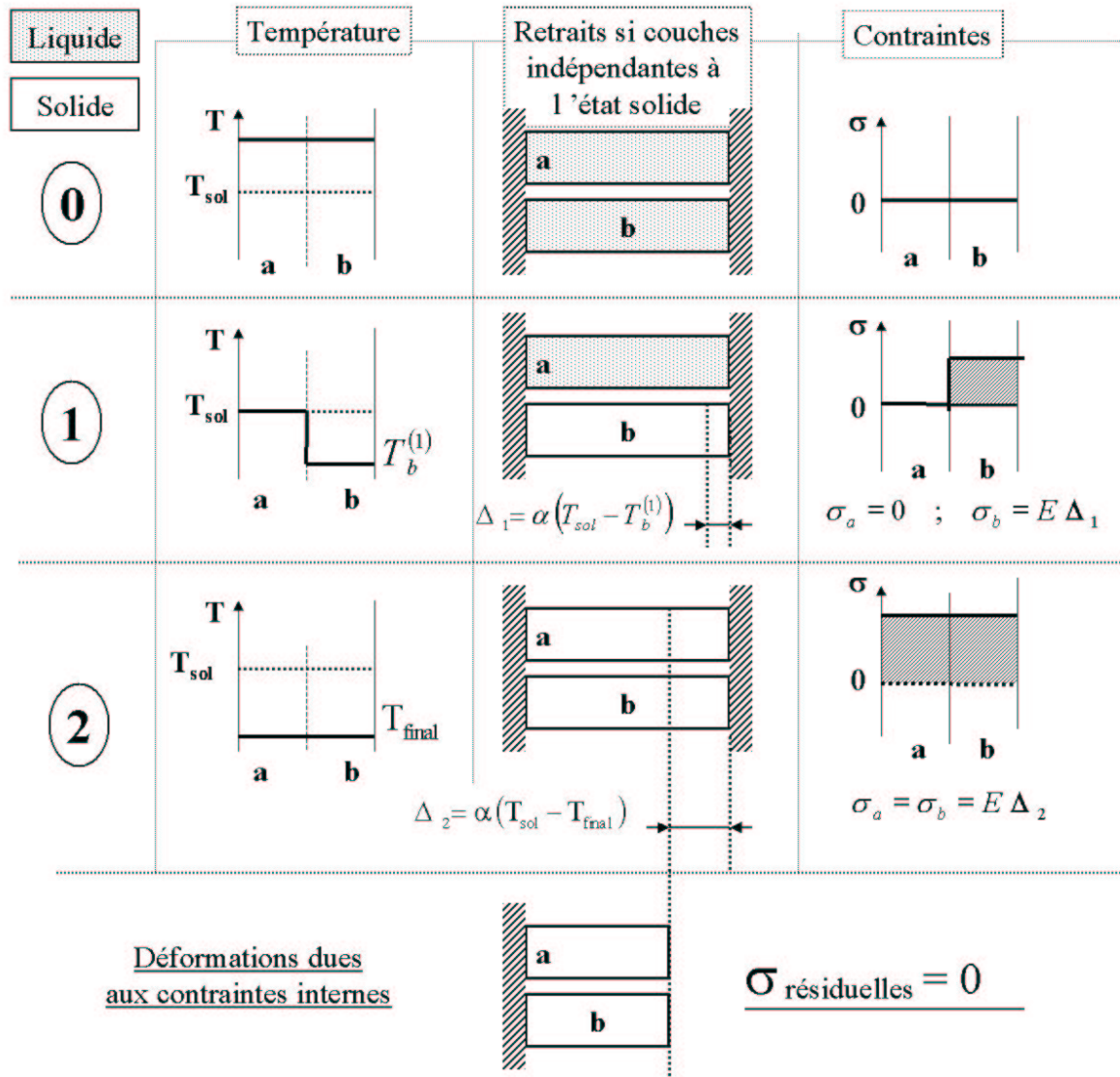


Figure 1.8 : formation des contraintes résiduelles - Bords encastrés

- A l'instant initial, la température est égale dans l'épaisseur et supérieure à la température de solidification. Les contraintes sont nulles.
- 1<sup>ère</sup> étape : La couche inférieure s'est solidifiée, mais ne peut se rétracter librement. Il y a alors formation de contraintes de traction dans cette couche liées à la déformation  $\Delta_1$  que celle-ci aurait effectué si elle était libre de se rétracter.
- 2<sup>ème</sup> étape : A la fin du refroidissement, il n'y a pas de différences de retrait entre les couches puisqu'il n'y a pas eu de différence de déformation. Les contraintes sont liées

à la déformation  $\Delta_2 = \alpha(T_{\text{sol}} - T_{\text{final}})$  que les couches auraient effectuées si elles avaient été libres de se rétracter. Le profil de contrainte n'est pas nul mais il est constant dans l'épaisseur ( $\sigma_a = \sigma_b = E \cdot \Delta_2$ ). Lorsque l'on relâche la barre à la fin du refroidissement, celle-ci va se contracter de manière homogène et le profil de contraintes résiduelles sera nul.

Remarque 1.2

Nous avons constaté au paragraphe précédent que l'origine des contraintes pouvait être ramené à la différence des retraits à l'état liquide entre les couches. Dans le cas de la barre encastree, les retraits à l'état liquide sont tous nuls et on obtient ainsi un profil de contraintes homogène à la fin du refroidissement (Figure 1.8- étape 2). Ce profil s'annule lorsque l'on relâche la barre.

Les mécanismes que nous venons de décrire permettent d'expliquer les deux cas extrêmes de la formation des contraintes résiduelles dues à la variation du volume spécifique. Le paragraphe suivant propose d'étudier la formation des contraintes dans une situation intermédiaire. La transition sera due à une modification des conditions aux limites lors du refroidissement.

2.1.4 Evolutions des conditions aux limites : force limite de rappel

En se contractant lors du refroidissement, la barre va exercer une force de rappel de plus en plus importante sur les deux encastremets. Nous reprenons la formation des contraintes résiduelles dans une barre encastree aux extrémités, mais nous considérons maintenant qu'au dessus d'une force limite,  $F_{\text{lim}}$ , la barre pourra se rétracter. Nous passerons ainsi d'une condition aux limites en déplacement à une condition aux limites en effort. L'évolution de la force de rappel au cours du refroidissement est représentée schématiquement Figure 1.9. Elle est égale à la somme des contraintes sur l'épaisseur et dépend donc des caractéristiques du matériau intervenant précédemment dans la formation des contraintes.

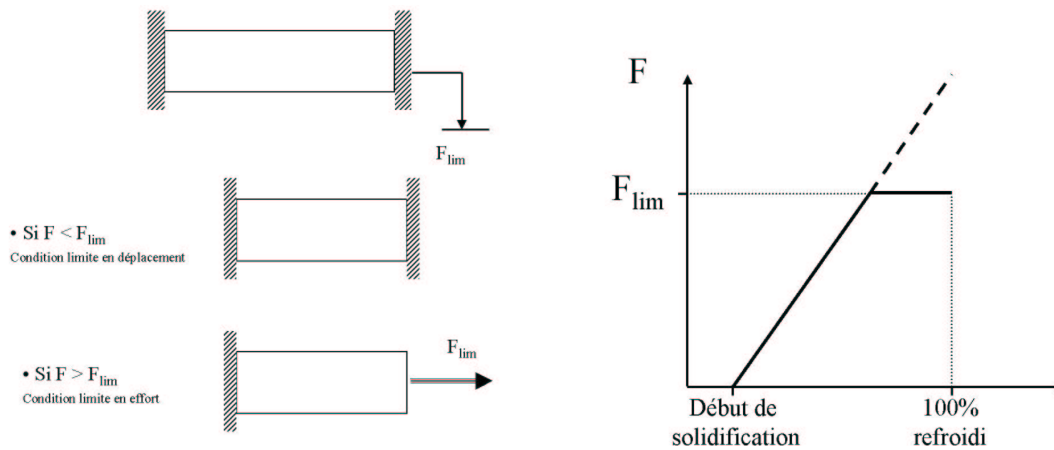


Figure 1.9 : évolution schématique de la force de rappel

La cinétique de refroidissement est identique aux cas précédents. La formation des contraintes internes est décrite pour deux forces limites différentes : la force sera atteinte soit à la fin soit au cours de la solidification.

## a) Evolution des conditions aux limites à la fin de la solidification

La force limite est égale à la force de rappel à la fin de la solidification, donc à la fin de la première étape.

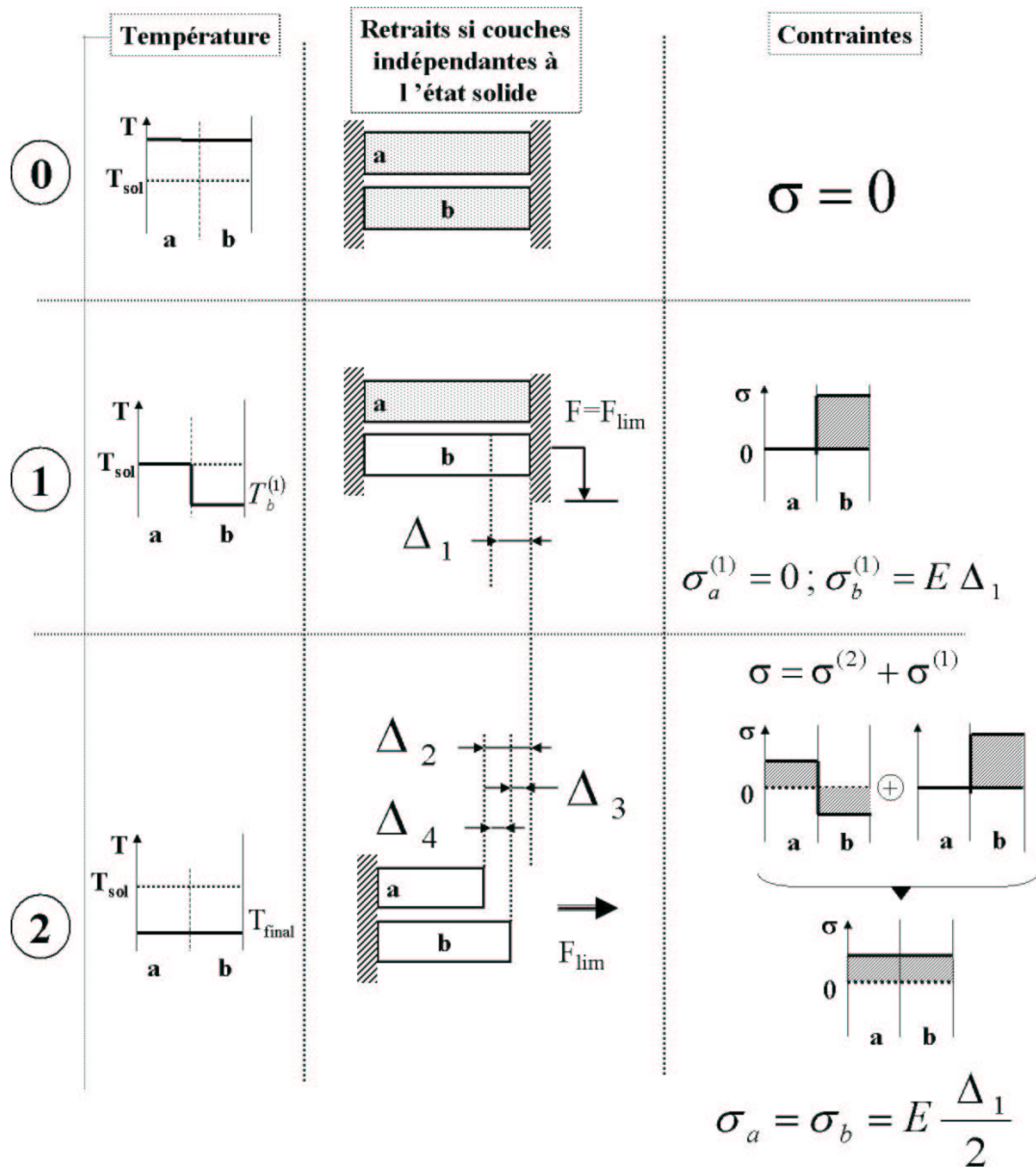


Figure 1.10 : changement de condition aux limites à la fin de la solidification

- 1<sup>ère</sup> étape : La couche inférieure se rétracte. La force de rappel étant inférieure ou égale à la force limite, cette couche n'a pu effectuer son retrait ( $\Delta_1$ ) et des contraintes de traction s'y forment (équation (1.4)).

$$\begin{aligned} \sigma_a^{(1)} &= 0 \\ \sigma_b^{(1)} &= E \Delta_1 = \alpha E (T_{sol} - T_b^{(1)}) \Leftrightarrow F_{lim} \end{aligned} \quad (1.4)$$

- 2<sup>ème</sup> étape : Les contraintes déjà présentes dans la barre à la fin de l'étape précédente équilibrent la force limite. Les nouvelles contraintes vont alors se former dans les mêmes conditions que lors du refroidissement libre. Si les couches étaient indépendantes lors de cette 2<sup>ème</sup> étape, elles se rétracteraient chacune des quantités  $\Delta_2$  et  $\Delta_3$ . La différence de retrait entre les deux couches est égale à  $\Delta_4$ . L'incrément de contrainte correspondant est décrit par l'équation (1.5).

$$\begin{aligned} \Delta_2 &= \alpha (T_{sol} - T_{final}) \\ \Delta_3 &= \alpha (T_b^{(1)} - T_{final}) \end{aligned} \quad \left. \begin{array}{l} \\ \\ \end{array} \right\} \Delta_4 = \Delta_2 - \Delta_3 = \alpha (T_{sol} - T_b^{(1)}) \quad (1.5)$$

$$\sigma_a^{(2)} = -\sigma_b^{(2)} = E \frac{\Delta_4}{2} = \frac{\alpha E}{2} (T_{sol} - T_b^{(1)})$$

A la fin du refroidissement, les contraintes seront égales à la somme des incréments de contraintes des deux étapes (1.6).

$$\begin{aligned} \sigma_a &= \sigma_a^{(1)} + \sigma_a^{(2)} = 0 + \frac{\alpha E}{2} (T_{sol} - T_b^{(1)}) = \frac{\alpha E}{2} (T_{sol} - T_b^{(1)}) \\ \sigma_b &= \sigma_b^{(1)} + \sigma_b^{(2)} = \alpha E (T_{sol} - T_b^{(1)}) - \frac{\alpha E}{2} (T_{sol} - T_b^{(1)}) = \frac{\alpha E}{2} (T_{sol} - T_b^{(1)}) \end{aligned}$$

soit  $\sigma_a = \sigma_b$  (1.6)

Nous obtenons finalement que si le changement de condition aux limites s'effectue après la fin de la solidification, le profil de contraintes est homogène à l'intérieur du matériau. Si l'on relâche l'effort de traction à la fin du refroidissement, la barre se rétractera de façon homogène et les contraintes s'annuleront dans toute l'épaisseur.

Si le changement de condition aux limites s'effectue alors que la couche supérieure s'est déjà solidifiée et refroidie, les contraintes dans le matériau seront plus importantes mais toujours homogènes dans l'épaisseur.

### Remarque 1.3

Ce résultat est retrouvé de manière intuitive en raisonnant sur les déformation à l'état liquide. En effet si la force limite est atteinte après la fin de la solidification, les couches n'auront pas subi de déformation à l'état liquide. Il n'y aura pas de différence de retrait entre les couches, le profil de contrainte sera donc constant dans l'épaisseur. Les contraintes résiduelles s'annuleront complètement lorsque la barre sera relâchée. Ceci n'est valable que si les couches effectuent le même retrait une fois solidifiées.

### b) Evolution des conditions aux limites avant la fin de la solidification.

Nous considérons une étape intermédiaire (int) avant la fin de la solidification. La force limite est égale à la force de rappel à cet instant.

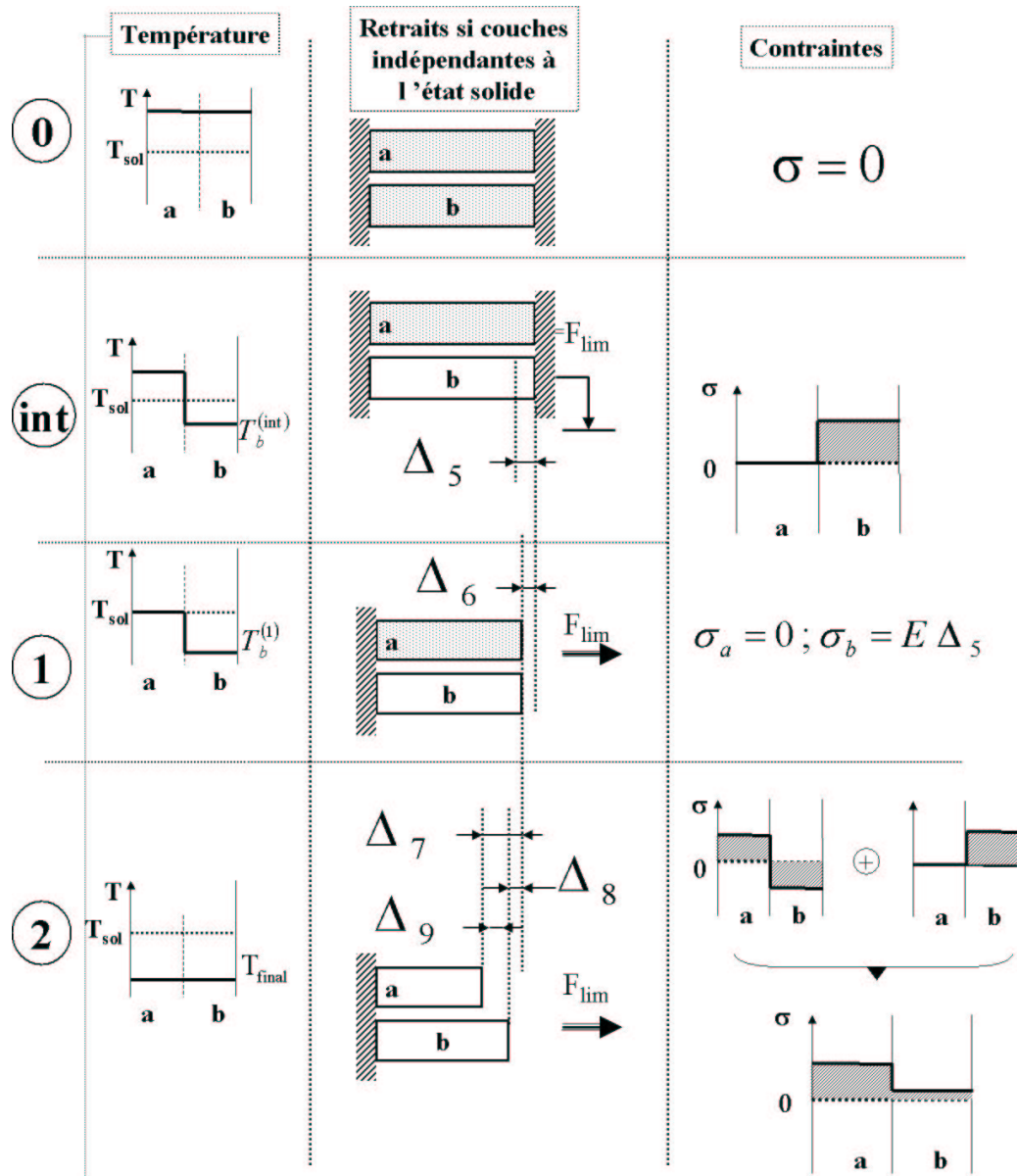


Figure 1.11 : changement de condition aux limites avant la fin de la solidification

- Etape intermédiaire : Seule la couche inférieure est solidifiée. La force de rappel étant encore inférieure ou égale à la force limite, des contraintes de traction s'y forment proportionnellement à la déformation  $\Delta_5$  qu'aurait effectuée la couche si elle n'était pas encastrée (1.7).

$$\sigma_a^{(int)} = 0 \quad (1.7)$$

$$\sigma_b^{(int)} = E \Delta_5 = \alpha E (T_{sol} - T_b^{(int)})$$

- Etape 1 : La couche supérieure atteint la température de solidification. La force limite ayant été atteinte à la fin de l'étape intermédiaire, la couche inférieure a pu effectuer son retrait librement. Il n'y a pas formation de nouvelles contraintes (1.8). On note que la couche supérieure a subi une déformation à l'état liquide.

$$\sigma_a^{(1)} = 0 ; \sigma_b^{(1)} = 0 \quad (1.8)$$



- **Étape 2** : Les deux couches sont à l'état solide et n'ont pas les mêmes retraits entre les étapes 1 et 2. Les contraintes présentes dans la barre à la fin de la 1<sup>ère</sup> étape équilibrant la force limite, la barre est désormais libre de se rétracter. L'incrément de contrainte entre les étapes 1 et 2 va se former dans les mêmes conditions que lors du refroidissement libre.

$$\begin{aligned}\Delta_7 &= \alpha(T_{sol} - T_{final}) \\ \Delta_8 &= \alpha(T_b^{(1)} - T_{final}) \\ \Delta_9 &= \Delta_7 - \Delta_8 = \alpha(T_{sol} - T_b^{(1)}) \\ \sigma_a^{(2)} = -\sigma_b^{(2)} &= E \frac{\Delta_9}{2} = \frac{\alpha E}{2}(T_{sol} - T_b^{(1)})\end{aligned}\quad (1.9)$$

A la fin du refroidissement, les contraintes sont égales à la somme des incréments de contraintes des trois étapes

$$\begin{aligned}\sigma_a &= \sigma_a^{(int)} + \sigma_a^{(2)} = \frac{\alpha E}{2}(T_{sol} - T_b^{(1)}) \\ \sigma_b &= \sigma_b^{(int)} + \sigma_b^{(2)} = \alpha E(T_{sol} - T_b^{(int)}) - \frac{\alpha E}{2}(T_{sol} - T_b^{(1)})\end{aligned}$$

donc  $\sigma_a > \sigma_b > -\sigma_a$  (1.10)

Si l'on relâche l'effort de traction à la fin du refroidissement, la barre se rétractera afin que la somme des contraintes soit nulle, mais le profil des contraintes ne s'annulera pas. Le moment de flexion induit par le profil final est du même signe mais plus faible que le moment de flexion obtenu dans le cas du refroidissement libre.

### 2.1.5 Récapitulatif

Dans les exemples ci-dessus, l'évolution du volume spécifique en fonction de la température, est le « moteur » des contraintes résiduelles (Figure 1.12) :

- Dans le cas du refroidissement libre, le profil de contrainte obtenu est dû au décalage dans le temps des retraits à l'état solide de chaque couche.
- Dans le cas de la barre encadrée, nous bloquons ces retrait au cours du refroidissement, donc nous annulons l'origine des contraintes résiduelles.

Si les déformations ne sont pas bloquées jusqu'à la fin de la solidification, on obtient un profil de contrainte intermédiaire. Les contraintes venant des différences de déformation à l'état liquide, l'évolution des conditions aux limites doit intervenir avant la fin de la solidification pour avoir un effet sur le profil des contraintes résiduelles.

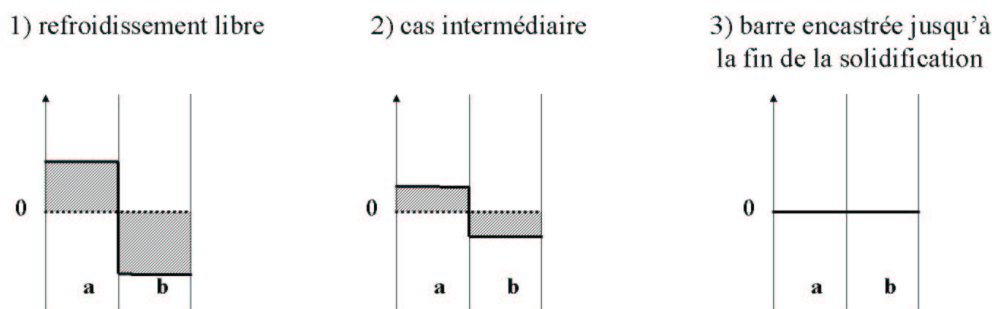


Figure 1.12 : évolution du profil des contraintes (barre relâchée à l'équilibre)

## 2.2 Formations des contraintes dues au chargement extérieur.

Les mécanismes de formation des contraintes résiduelles ont précédemment été étudiés pour des conditions aux limites en déplacement ou en effort de valeurs nulles. En effet, lorsque la force de rappel était inférieure à la force limite, la barre était encastée donc les déplacements étaient nuls. Puis après l'évolution des conditions aux limites, ce sont les contraintes déjà formées lors des incréments précédents qui équilibraient le chargement extérieur ( $F_{lim}$ ), donc pour les incréments de contraintes suivants, on est dans la situation du refroidissement libre, c'est-à-dire effort extérieur nul.

Nous allons maintenant considérer l'influence de conditions aux limites en effort de valeur non nulle et pouvant évoluer au cours du refroidissement. Nous montrerons comment les efforts extérieurs peuvent également introduire des contraintes résiduelles au cours du refroidissement. Nous étudierons dans un premier temps les mécanismes de formation des contraintes résiduelles dans une barre suivant une loi de comportement liquide-solide élastique et soumise à un chargement extérieur variable dans le temps. Les mécanismes seront proches de ceux que nous avons vus aux paragraphes précédents.

Ensuite, afin de prendre en compte le comportement mécanique réel des polyéthylènes et d'imposer un chargement extérieur dès le début du refroidissement, nous introduirons des lois de comportement viscoélastiques. A travers un exemple de fluage unidirectionnel, nous montrerons comment ces lois autorisent une redistribution dans l'épaisseur du profil des contraintes, entraînant à la fin du refroidissement un profil de contraintes résiduelles.

La formation des contraintes résiduelles dues au chargement extérieur proviendra également du gradient de température, qui induit des différences de propriétés mécaniques dans l'épaisseur.

### Remarques 1.4

- § Dans les exemples suivants, les contraintes devant équilibrer un chargement extérieur, leur somme ne sera pas nulle. Afin de pouvoir comparer les profils des contraintes résiduelles avec les exemples précédents, nous relâcherons les efforts extérieurs à la fin du refroidissement et les contraintes résiduelles s'auto-équilibreront. La déformation étant en première approximation homogène dans l'épaisseur, le profil des contraintes sera inchangé et simplement translaté vers le bas ( $\Sigma\sigma > 0$ ) afin de satisfaire la condition  $\Sigma\sigma = 0$ .
- § La formation des contraintes dues au chargement est indépendante de la variation du volume spécifique. Afin de bien les différencier des contraintes résiduelles que nous avons vues au paragraphes précédents, nous considérons ci-dessous que le volume spécifique du matériau est constant.

### 2.2.1 Evolution du chargement – Comportement liquide – solide élastique.

Nous allons détailler la formation des contraintes résiduelles dans une barre soumise à un chargement extérieur évoluant lors du refroidissement. Celui-ci correspondra par exemple dans le procédé aux forces de frottement entre le tube et la chambre de calibrage.

Nous considérons que le matériau suit encore une loi de comportement liquide – solide élastique. Le matériau suivant à l'état fondu une loi de comportement liquide, il ne peut pas s'y former des contraintes permettant d'équilibrer le chargement extérieur. Nous

n'imposerons donc pour l'instant le chargement qu'après le début de la solidification. L'évolution du chargement, limité pour cet exemple à deux événements, est corrélé Figure 1.13 à l'avancée du front de solidification et à la formation des contraintes :

- 1 . Le chargement extérieur  $F_1$  est imposé lorsque la moitié inférieure de la barre se solidifie. La moitié supérieure étant encore à l'état liquide, toutes les contraintes équilibrant le chargement extérieur sont concentrées dans la couche solidifiée.
- 2 . La seconde évolution des efforts (incrément  $F_2$ ) se produit après la fin de la solidification. Les propriétés élastiques de l'état solide étant indépendantes de la température, l'incrément de contrainte est homogène dans l'épaisseur.
- Relâchement . Lorsque les efforts extérieurs sont relâchés, les contraintes à l'intérieur du matériau s'équilibrent si bien que  $\Sigma\sigma=0$ .

A la fin du refroidissement et après suppression du chargement extérieur, les contraintes résiduelles dans les couches inférieures (refroidies en premier), sont des contraintes de traction. Les variations du chargement extérieur se produisant après la fin de la solidification (incrément  $F_2$  dans l'exemple précédent) n'ont pas d'effet sur le profil des contraintes résiduelles, puisqu'elles introduisent une distribution de contraintes homogène dans l'épaisseur.

Si le chargement extérieur croît lors de la solidification, **le profil des contraintes résiduelles dû à la variation du chargement extérieur pendant la solidification est opposé à celui dû à la variation du volume spécifique.** Ce mécanisme est le point clé de la formation des contraintes résiduelles.

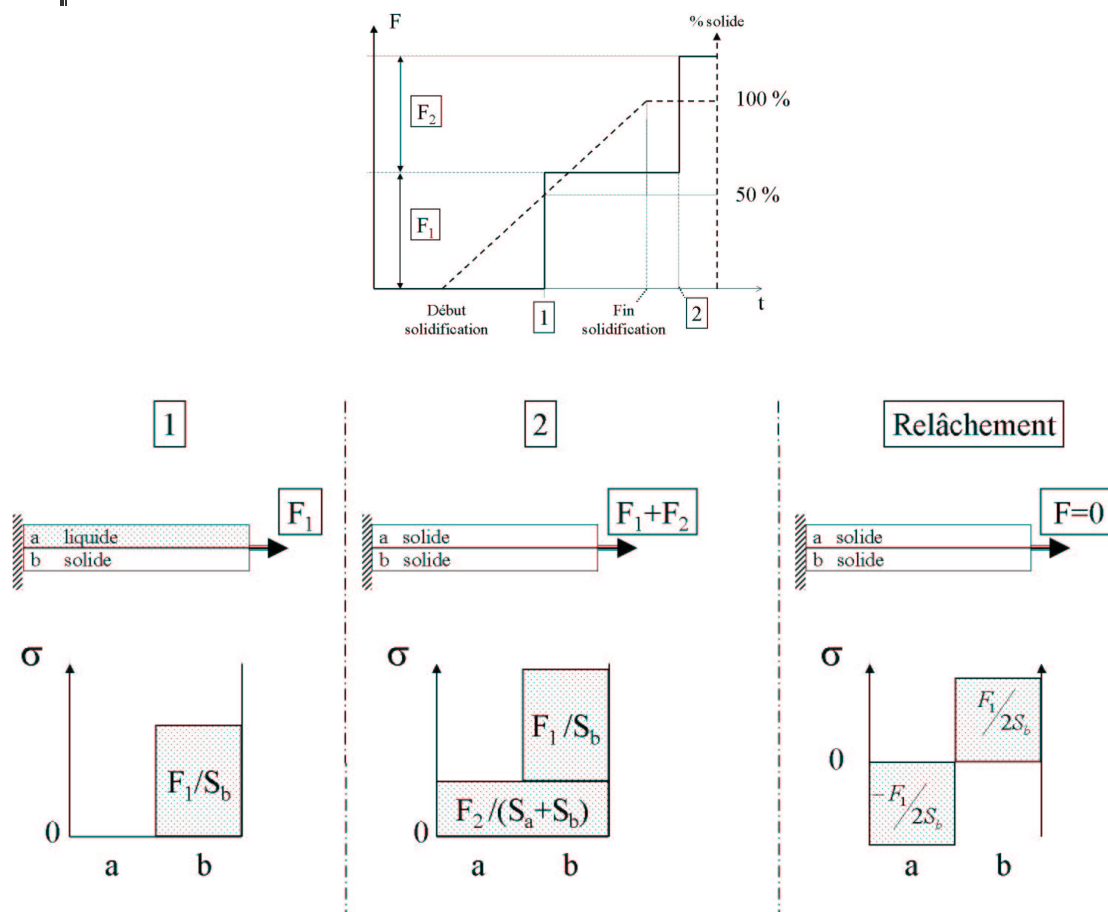


Figure 1.13 : évolution du chargement extérieur et formation des contraintes résiduelles

### 2.2.2 Chargement extérieur constant dans une barre – comportement viscoélastique

Nous allons décrire l'évolution du profil des contraintes dans une barre soumise à un effort de traction constant dès le début du refroidissement (et non plus seulement à partir du début de la solidification). Ceci nous obligera à faire évoluer les lois de comportement liquide et solide que nous avons utilisées jusqu'à présent et modifiera la distribution dans l'épaisseur des contraintes équilibrant le chargement extérieur. Les mécanismes de formation dépendront de l'avancement de la solidification.

#### a) Avant la solidification.

Au début, le matériau est entièrement à l'état fondu, or à ce moment il existe déjà une force d'étrépage que les contraintes internes doivent équilibrer. Il est donc nécessaire de considérer le comportement du matériau à l'état fondu. Deux types de loi peuvent être envisagées :

- Une loi de comportement purement visqueuse (Guo et Isayev, 2000). Son utilisation permet de ne pas tenir compte de l'histoire mécanique du matériau. Les contraintes sont fonction de la vitesse de déformation instantanée.
- La loi de comportement réelle du matériau, c'est à dire viscoélastique, qui permet de prendre en compte l'histoire mécanique et la relaxation des contraintes.

Le comportement viscoélastique des polymères sera explicité en détail au 3<sup>ème</sup> chapitre. Pour les exemples que nous allons voir ci-dessous, il suffit d'avoir à l'esprit deux expériences caractéristiques de la viscoélasticité (Figure 1.14) :

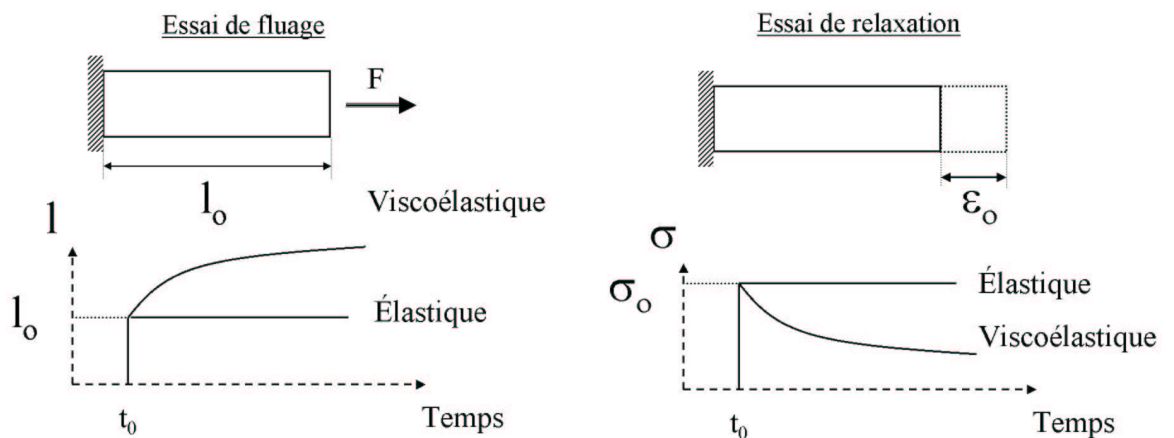


Figure 1.14 : essai de fluage et de relaxation

- L'essai de fluage : L'éprouvette est soumise à une contrainte constante (en pratique, une force de traction constante  $F$ ) et l'on étudie comment varie la déformation  $\varepsilon = l/l_0$  en fonction du temps  $t$ . Après une déformation élastique instantanée, l'éprouvette continue de s'allonger si le comportement est viscoélastique.
- L'essai de relaxation : c'est l'essai dual du précédent. Les contraintes provoquées par une déformation  $\varepsilon_0$  (instantanée ou non) au temps  $t_0$  ne sont pas constantes comme en élasticité mais vont décroître avec le temps : les contraintes se relaxent (1.11). Le comportement visqueux est un cas extrême de la viscoélasticité pour lequel les contraintes s'annulent instantanément.

$$\sigma(t) = E(t - t_0) \varepsilon_0 \quad (1.11)$$

Les lois de comportement viscoélastique linéaire reposent sur le principe de superposition de Boltzmann. Ce principe indique que lorsqu'un corps est soumis à une suite de déformations élémentaires, la contrainte résultant de la sollicitation globale est la somme des contraintes associées à chaque déformation élémentaire prise isolément (cf. chapitre suivant). Ainsi la relation (1.12) et la Figure 1.15 décrivent l'évolution des contraintes dans le temps si une barre est soumise à deux déformations  $\varepsilon_0$  et  $\varepsilon_1$  respectivement aux temps  $t_0$  et  $t_1$ .

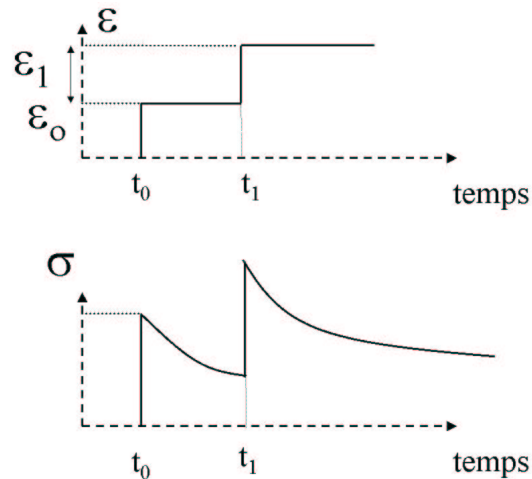


Figure 1.15 : principe de superposition

$$\sigma(t) = E(t - t_0)\varepsilon_0 + E(t - t_1)\varepsilon_1 \quad (1.12)$$

La relaxation des contraintes et le fluage sont thermiquement activés, c'est-à-dire que plus la température est élevée, plus l'éprouvette s'allonge rapidement ou plus les contraintes disparaissent rapidement.

Les hypothèses suivantes sur le comportement du matériau permettent de simplifier le problème réel afin de mieux cibler la répartition des contraintes dans l'épaisseur. Certaines seront remises en cause au cours des exemples suivants.

- hypothèse 1 : La transition fluide – solide se produit instantanément à une température fixe.
- hypothèse 2 : Les propriétés mécaniques du matériau à l'état fluide et solide ne dépendent pas de la température.
- hypothèse 3 : Le matériau à l'état solide a un module  $E(0)$  100 fois supérieure à celui de l'état fondu ( $E_f(0)$ ).
- hypothèse 4 : Le comportement à l'état solide est élastique.
- hypothèse 5 : La déformation est homogène dans la section.

Les essais de fluage et de relaxation ont la même origine et peuvent être reliés entre eux. Discrétisons le temps en plusieurs incréments  $t_i, t_{i+1}$ , et reprenons l'essai de fluage avec un raisonnement en relaxation des contraintes (Figure 1.16).

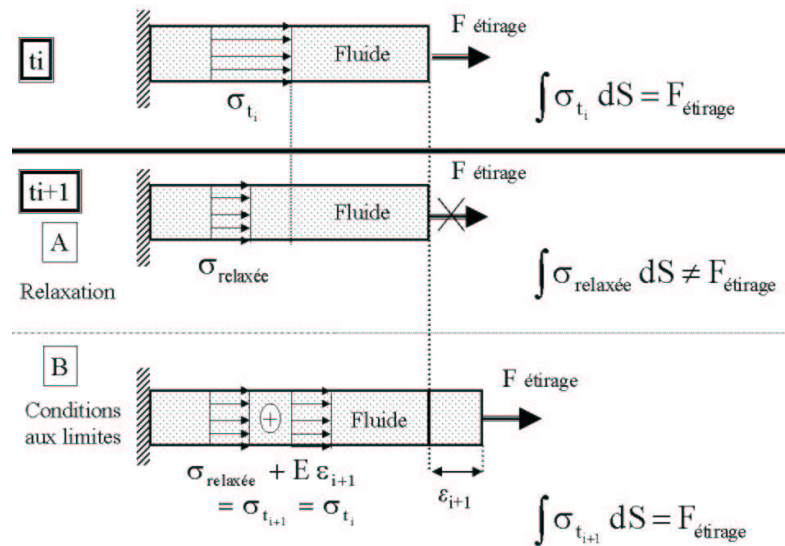


Figure 1.16 : évolution des contraintes lors d'un essai de fluage

Nous imposons une force de traction constante à une éprouvette dont la température est supérieure à la température de solidification. Au cours d'un incrément de temps, les contraintes se construisent de la façon suivante :

- Au temps  $t_i$  : Nous considérons que les contraintes sont homogènes dans l'épaisseur.
- Entre les instants  $t_i$  et  $t_{i+1}$  :

A - Les contraintes présentes dans l'éprouvette vont se relaxer si le comportement du fluide est viscoélastique ou s'annuler si le comportement est visqueux. La condition aux limites n'est plus satisfaite.

B - Il est nécessaire d'introduire une déformation  $\epsilon_{i+1}$  créant un incrément de contrainte  $\sigma = E_f(0) \epsilon_{i+1}$  à l'instant  $t_{i+1}$  afin de rétablir l'équilibre avec le chargement extérieur. La déformation correspond à l'allongement de l'éprouvette entre les instants  $t_i$  et  $t_{i+1}$  lors de l'essai de fluage représenté Figure 1.14. Si les propriétés mécaniques du matériau sont homogènes dans l'épaisseur (hypothèse 2), la déformation  $\epsilon_{i+1}$  n'introduit pas de gradient de contrainte au sein de la pièce.

- Au temps  $t_{i+1}$  : Les contraintes sont égales à la somme des contraintes relaxées de l'instant  $t_i$  et des contraintes dues à la déformation  $\epsilon_{i+1}$ . Le profil de contrainte est identique à celui de l'instant  $t_i$ .

La prise en compte d'une loi de comportement viscoélastique permet à chaque incrément une redistribution dans l'épaisseur des contraintes qui se sont relaxées depuis l'instant précédent.

#### Remarques 1.5

Dans l'exemple ci-dessus, nous imposons une déformation instantanée à chaque pas de temps. Afin de prendre en compte la relaxation des contraintes, le module d'Young sera dans les calculs dépendant du pas de temps ( $t_{i+1}-t_i$ ), d'où des contraintes dues à la déformation  $\epsilon_{i+1}$  égales à  $E(t_{i+1}-t_i)\epsilon_{i+1}$ . Pour le même raisonnement avec une loi de

comportement visqueuse, il est plus adapté de prendre en compte une vitesse de déformation constante entre les temps  $t_i$  et  $t_{i+1}$ .

L'exemple de la barre est simplifié et étudié en une dimension : nous ne prenons pas en compte la diminution d'épaisseur de l'échantillon due à l'incrément de déformation.

b) Redistribution des contraintes au cours de la solidification.

Au début de la solidification, une différence importante de propriétés mécaniques va apparaître dans l'épaisseur de l'éprouvette. La Figure 1.17 représente la redistribution des contraintes internes lors de la solidification de la 1<sup>ère</sup> couche.

- Au temps  $t_i$ , l'éprouvette est encore à l'état fondu, le profil de contrainte est homogène, puisque les propriétés mécaniques à l'état fluide ne dépendent pas de la température.
- Entre les instants  $t_i$  et  $t_{i+1}$ , les contraintes se relaxent et une couche inférieure de la barre se solidifie. Comme précédemment il est nécessaire de rééquilibrer les efforts extérieurs. Cependant les propriétés mécaniques de la couche solidifiée étant différentes du reste du matériau, l'incrément de contrainte n'est plus homogène dans l'épaisseur. D'après les hypothèses 3 et 5, l'incrément de contrainte (équation (1.13)) est 100 fois plus important dans la partie solide.

$$\begin{aligned} \sigma_{\text{Solide}} &= E_{\text{solide}} \varepsilon_{i+1} \\ \sigma_{\text{Fluide}} &= E_{\text{Fluide}} \varepsilon_{i+1} \end{aligned} \quad \left. \begin{array}{l} \\ \\ \end{array} \right\} E_{\text{solide}} = 100 E_{\text{Fluide}} \text{ (hyp.3)} \Rightarrow \sigma_{\text{Solide}} = 100 \sigma_{\text{Fluide}} \quad (1.13)$$

- Au temps  $t_{i+1}$  : Les contraintes sont égales à la somme des contraintes relaxées de l'instant  $t_i$  et des contraintes dues à la déformation,  $\varepsilon_{i+1}$ . Le profil de contrainte final n'est plus homogène dans l'épaisseur.

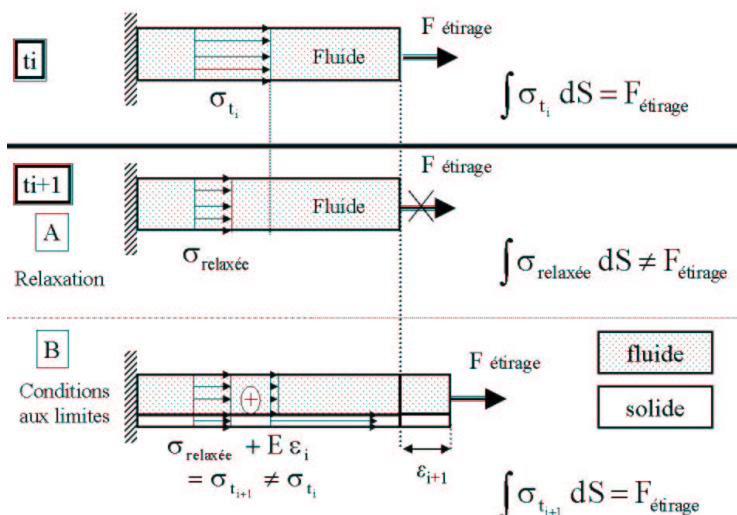


Figure 1.17 : solidification de la 1<sup>ère</sup> couche

A chaque incrément, les contraintes relaxées depuis l'instant précédent vont être principalement redistribuées dans les couches solidifiées. Celles-ci étant très fines au début de la solidification, les contraintes vont y être très importantes.

Ce processus va se poursuivre au cours de la solidification. Les couches solides ayant un comportement élastique (hypothèse 4) ou des temps de relaxation plus longs que les couches à l'état fluide, les contraintes vont se relaxer essentiellement dans les couches à l'état fondu. Ceci accentue la concentration des contraintes dans les premières couches solidifiées.

La répartition des contraintes entre les couches dépendra fortement de la loi de comportement du matériau à l'état fondu. L'utilisation d'une loi de comportement visqueuse n'est pas adaptée pour décrire la formation des contraintes résiduelles dans une pièce soumise à un effort extérieur lors de la solidification.

- Comportement visqueux : Les contraintes se relaxent complètement et se reconstruisent à chaque incrément. Les contraintes nécessaires pour équilibrer le chargement extérieur vont ainsi se concentrer presque exclusivement en un incrément dans la première couche solidifiée. L'utilisation d'une loi de comportement visqueuse pour le matériau à l'état fondu ne permet pas de prendre en compte le transfert progressif des contraintes entre les couches. Ceci entraînera une concentration importante de toutes les contraintes équilibrant le chargement extérieur dans les premières couches solidifiées.
- Comportement viscoélastique : Les contraintes présentes dans la partie fluide au temps  $t_i$  se sont relaxées mais ne se sont pas annulées au temps  $t_{i+1}$ . Les contraintes présentes dans les couches à l'état fluide sont transférées progressivement dans les couches à l'état solide.

Ainsi, plus les contraintes de la partie fluide se relaxent rapidement plus les contraintes se concentreront dans les premières couches solidifiées. Nous verrons par la suite que lorsque 0,1mm de l'épaisseur du tube s'est solidifié, 60% de la force d'étirage est encore équilibrée par les contraintes présentes dans la partie fluide pour un polyéthylène basse densité radicalaire (temps de relaxation longs) contre 5% pour un polyéthylène basse densité linéaire (temps de relaxation courts).

Le transfert des contraintes des couches fluides aux couches solides peut être terminé avant la fin de la solidification. Si la phase solide a un comportement élastique, les contraintes seront nulles dans les couches se solidifiant en dernier.

### c) Répartition des contraintes entre les couches solides.

Nous remettons en cause l'hypothèse 4 et considérons maintenant que le comportement du matériau à l'état solide suit une loi de comportement viscoélastique thermo-dépendante. Lorsque la température augmente, le module,  $E(0)$  du matériau décroît, et les contraintes se relaxent plus rapidement. Les contraintes vont se répartir entre couches solides suivant le même processus que précédemment (Figure 1.18) :

- Les contraintes vont se relaxer plus rapidement dans les couches plus chaudes.
- La déformation nécessaire pour retrouver le niveau de contrainte équilibrant le chargement extérieur va redistribuer davantage les contraintes dans les couches plus froides (car plus rigides).

Les contraintes dues au chargement extérieur vont se concentrer progressivement dans les couches refroidies en premier.

#### Remarque 1.6

Dans l'exemple ci-dessous le matériau à la température  $T_2$  peut être considéré comme un fluide par rapport au matériau à la température inférieure  $T_1$ . L'utilisation d'une loi de comportement viscoélastique thermo-dépendante permet de ne plus devoir tenir compte



de la distinction entre les états solides et liquides. Si la variation des temps de relaxation est continue entre les états fondu et solide, l'évolution des propriétés mécaniques est progressive. Le comportement mécanique du matériau peut être défini par une loi unique pendant tout le refroidissement et il n'est plus nécessaire de définir une température de solidification.

Pour les polyéthylènes, nous verrons cependant que la solidification est associée à une évolution importante de la matière, la cristallisation, qui ne permet pas d'utiliser une seule loi de comportement.

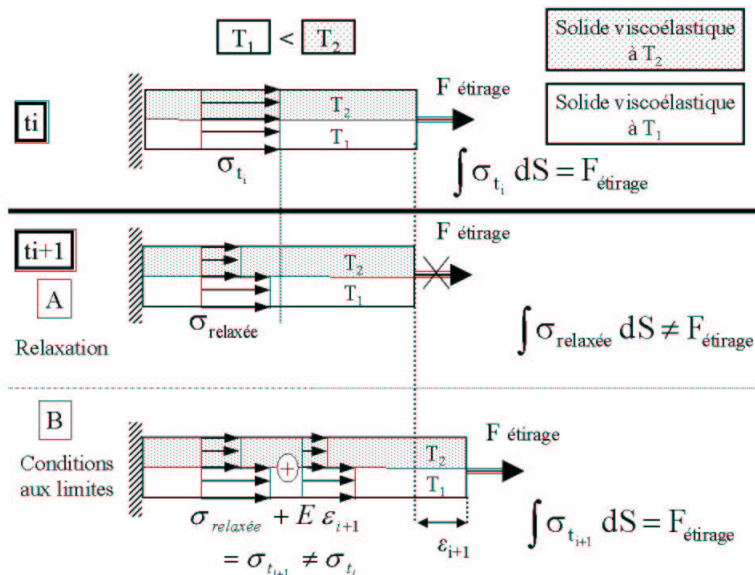


Figure 1.18 : redistribution des contraintes à l'état solide

### Remarque 1.7

Nous avons choisi pour les exemples ci-dessus un chargement extérieur constant. Si celui-ci évolue au cours du refroidissement, la répartition des contraintes dans l'épaisseur suivra les mêmes mécanismes que dans les exemples précédents. L'augmentation des efforts sera compensée par une déformation supplémentaire et les contraintes se fixeront directement dans les couches les plus froides.

### 2.2.3 Récapitulatif

Dans les exemples de ce paragraphe, les déformations dans le matériau doivent compenser à chaque pas de temps un incrément de contrainte. Celui-ci est dû soit à l'évolution du chargement extérieur soit à la relaxation d'une partie des contraintes.

L'étude de la redistribution des contraintes dans une barre en traction montre que les contraintes équilibrant le chargement extérieur se re-concentrent progressivement dans les couches les plus froides (donc les premières couches solidifiées) quel que soit le moment du refroidissement considéré.

La redistribution des contraintes due au comportement viscoélastique entraîne des contraintes résiduelles de traction dans les couches inférieures de la barre (refroidies en premier) et donc un profil de contrainte opposé à celui dû à la variation du volume spécifique.

Nous avons également montré l'importance du comportement viscoélastique du matériau à l'état fondu. Si les contraintes se relaxent rapidement dans les couches à l'état

fondu, ceci entraînera une importante concentration des contraintes dans les premières couches solidifiées et pourra entraîner une orientation figée de celles-ci. L'orientation figée des couches n'engendre pas de contrainte à température ambiante, mais si le matériau est réchauffé à une température suffisante, ces couches voudront reprendre leur état initial et provoqueront une déformation du matériau. Nous reviendrons sur ce point au chapitre suivant.

## 2.3 Conclusion

Le profil final des contraintes sera la conséquence du retrait thermique hétérogène dans l'épaisseur et de la répartition entre les couches des contraintes équilibrant le chargement extérieur. Le profil final des contraintes résiduelles résultera de l'équilibre entre ces deux mécanismes :

- Le retrait thermique a pour effet de fixer des contraintes de compression dans les couches solidifiées en premier.
- L'encastrement de la barre ou l'application d'un chargement extérieur croissant ont pour effet de fixer des précontraintes de traction dans ces couches.

L'utilisation de lois de comportement viscoélastique permet de ne pas figer l'état des contraintes : une partie des contraintes fixées lors des étapes précédentes sera relaxée et redistribuée dans l'épaisseur suivant le gradient de température et les propriétés viscoélastiques du matériau.

Ces exemples ont permis de mettre en avant les paramètres du procédé et les caractéristiques du matériau qui auront une influence prépondérante dans la formation des contraintes. La présence de contraintes résiduelles à la fin du refroidissement est due :

- § à la thermo - dépendance de la loi de comportement du matériau. Les températures initiales et finales étant chacune homogènes dans l'épaisseur, il n'y aurait pas de contraintes résiduelles si la loi de comportement du matériau n'évoluait pas au cours du refroidissement. La thermo - dépendance du matériau limitée au début à la définition de deux états (liquide - solide) a pu être généralisée par l'introduction du comportement viscoélastique.
- § à l'évolution du gradient de température dans l'épaisseur lors du refroidissement, qui est à l'origine de la formation des contraintes résiduelles pour les deux types de mécanisme.
- § à la variation du volume spécifique lors du refroidissement qui est le moteur du premier type de contraintes résiduelles étudiée.
- § à l'évolution du chargement extérieur. Les contraintes nécessaires pour équilibrer les variations se concentrant essentiellement dans les couches solidifiées.

### Remarque 1.8

Nous avons considéré pour l'instant le coefficient de dilatation constant lors du refroidissement mais les diagrammes PVT (Pression, Volume, Température) montrent la dépendance de cette caractéristique en fonction de la température, de la pression et aussi du taux de cristallinité. Pour le procédé étudié, les variations de pression hydrostatique restent faibles et le taux de cristallinité ne varie pas ou peu dans l'épaisseur. La variation du volume spécifique à l'état solide est donc identique pour toute les couches. Ceci n'est plus vrai par exemple dans le cas de la formation des contraintes résiduelles au cours du

procédé d'injection. La variation du volume spécifique dépendra alors de la pression et cela entraînera la formation d'un autre type de contraintes résiduelles (Boitout, 1993).

### 3 Formation des contraintes résiduelles lors du calibrage d'un tube

Dans le conformateur, le tube étant plaqué contre la chambre de calibrage par la dépression, la géométrie du tube va très peu évoluer. La représentation de l'évolution des contraintes peut être simplifiée en considérant le problème analogue d'une tranche se situant dans la partie centrale d'un tube de grande longueur dont le refroidissement ne dépendrait que du rayon et du temps. Nous étudierons ci-dessous la formation des contraintes résiduelles dans un tube dont les conditions aux limites et le refroidissement seraient ceux d'une tranche du tube au cours du calibrage. Les effets de bords n'auront pas à être pris en compte.

Le rayon des tubes étant très grand par rapport à l'épaisseur, rapport 100, le rayon de courbure du tube n'interviendra pas : la formation des contraintes dans un tube sera équivalente à la formation des contraintes dans une plaque de faible épaisseur (Figure 1.19).

Si les mécanismes de formation des contraintes dans les directions circonférentielles,  $\theta$ , et axiales,  $z$ , sont indépendants nous pourrons appliquer directement les résultats obtenus avec la barre.

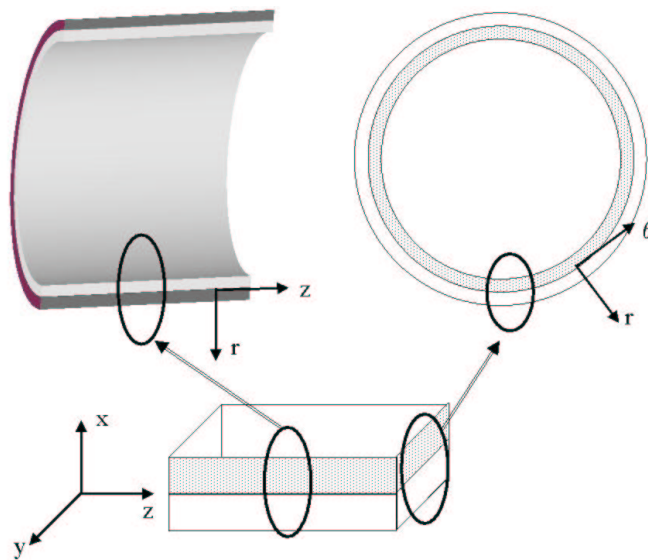


Figure 1.19 : équivalence des couches entre le plan et le tube

Nous nous intéresserons essentiellement ici à la formation des contraintes résiduelles orthoradiales,  $\sigma_{\theta\theta}$ , responsables de l'ouverture ou de la fermeture des tubes après découpe. Nous allons voir cependant que la formation des contraintes dans cette direction peut être dépendante des déformations dans la direction axiale.

En effet, si nous considérons un essai de traction (Figure 1.20), la déformation longitudinale provoque également une déformation transversale, le rapport entre les deux définissant le coefficient de Poisson. Suivant les conditions aux limites imposées sur les bords latéraux, des contraintes peuvent se former dans la direction transversale :

- Si les surfaces latérales sont libres, aucune contrainte due à la déformation longitudinale ne se forme dans la direction transversale.

- Si la condition aux limites est en déplacement (par exemple bords latéraux encastrés), la déformation transversale ne pourra s'effectuer librement et des contraintes se formeront dans cette direction.

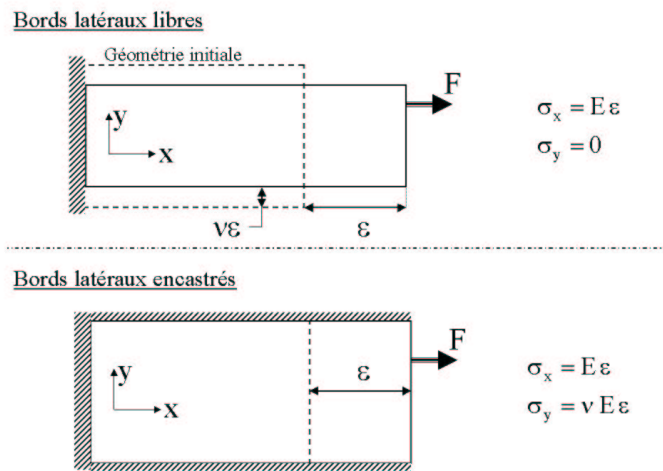


Figure 1.20 : traction uniaxiale et biaxiale

Nous montrerons de manière plus rigoureuse au chapitre 4, que la formation des contraintes orthoradiales est indépendante des déformations axiales si :

- nous imposons une pression comme condition aux limites radiale sur les surfaces intérieures et extérieures du tube.

ou

- si la somme sur la section des contraintes axiales est nulle et que le tube peut se déformer librement dans la direction axiale.

Pour l'une ou l'autre de ces conditions, les mécanismes de formation des contraintes orthoradiales seront équivalents à ceux étudiés précédemment pour la barre.

### 3.1 Formation des contraintes dues à la variation du volume spécifique.

Nous conservons dans les exemples ci-dessous la loi de comportement liquide - solide élastique.

#### 3.1.1 Refroidissement libre d'un tube

Les conditions aux limites radiales du refroidissement libre sont des pressions nulles, le tube est libre de se rétracter durant le refroidissement. La formation des contraintes dans les deux directions étant alors indépendantes, nous pouvons utiliser directement les résultats obtenus pour une barre.

Lors du calibrage, le tube est refroidi exclusivement par l'extérieur. Le reste du tube étant encore à l'état liquide, les couches extérieures sont libres de se rétracter. Par contre, quand les couches intérieures se solidifient et veulent se rétracter, elles sont bloquées par les couches extérieures.

Par analogie avec les exemples précédents, on en déduit que les couches extérieures, refroidies en premier, sont en compression et les couches intérieures en traction. Ainsi si on découpe le tube suivant une de ses génératrices, celui-ci s'enroulera sur lui-même.

Le refroidissement libre correspond à une dépression nulle dans le conformateur. On retrouve qualitativement les résultats expérimentaux obtenus pour les faibles dépressions, que nous avons décrits lors de l'introduction : le tube s'enroule sur lui-même.

La formation des contraintes résiduelles dans une plaque pour un refroidissement quelconque a été étudiée par Goslinga (Goslinga, 1980). Les profils de contraintes résiduelles au cours du refroidissement sont représentés Figure 1.21. Ces résultats ont été obtenus pour une loi de comportement liquide – solide et le refroidissement est imposé uniquement sur une surface par un coefficient de transfert  $h = 500 \text{ W/m}^2 \text{ K}$ .

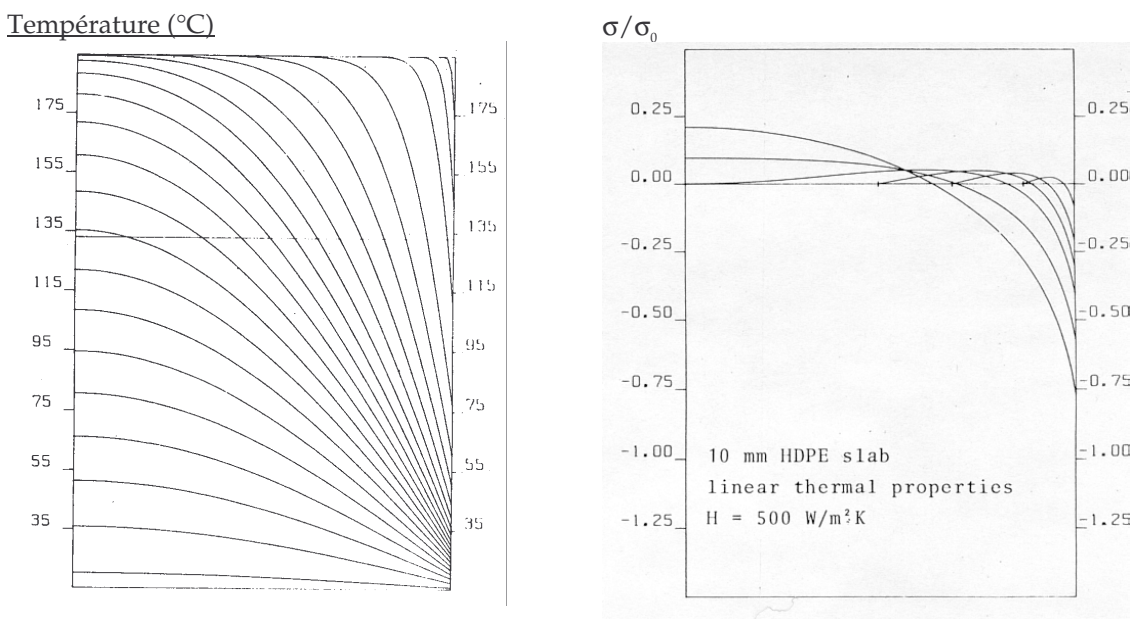


Figure 1.21 : profil de contrainte dans une plaque lors d'un refroidissement libre (Goslinga, 1980)

### 3.1.2 Tube plaqué contre la chambre de calibrage

La dépression dans le conformateur a pour effet de plaquer la surface extérieure du tube contre la chambre de calibrage. Ceci correspond à une condition nulle en déplacement dans la direction radiale.

La condition aux limites radiale sur la surface extérieure n'étant plus une condition en pression, il est nécessaire que les déformations axiales  $\epsilon_{zz}$  soient nulles pour que les formations des contraintes dans les deux directions du plan soient indépendantes : Les bords du tube sont encastrés.

Les effets du retrait thermique et de la dépression lors d'un incrément de temps peuvent être dissociés (Figure 1.22) :

- à l'instant  $t_i$ , le tube est en contact avec la chambre de calibrage. Le tube est à la température  $T_i$ .

- à l'instant  $t_{i+1}$ , la diminution de température (de  $T_i$  à  $T_{i+1}$ ) a provoqué un retrait dans la direction orthoradiale,  $\theta$ , et donc une diminution du diamètre : il y a perte du contact entre le tube et la chambre de calibrage.
- Il est alors nécessaire d'appliquer à l'incrément  $i+1$  une dépression  $\Delta P_{i+1}^e$  sur la surface extérieure afin de la ramener en contact avec la chambre de calibrage et de satisfaire la condition aux limites dans la direction radiale. L'incrément de dépression va fixer des contraintes de traction uniquement dans les couches déjà solidifiées en « ramenant » le tube en contact. Si cette condition aux limites est maintenue jusqu'à la fin de la solidification, les contraintes fixées par la dépression annuleront les contraintes dues à la variation du volume spécifique. (cf. paragraphe 2.1.3).

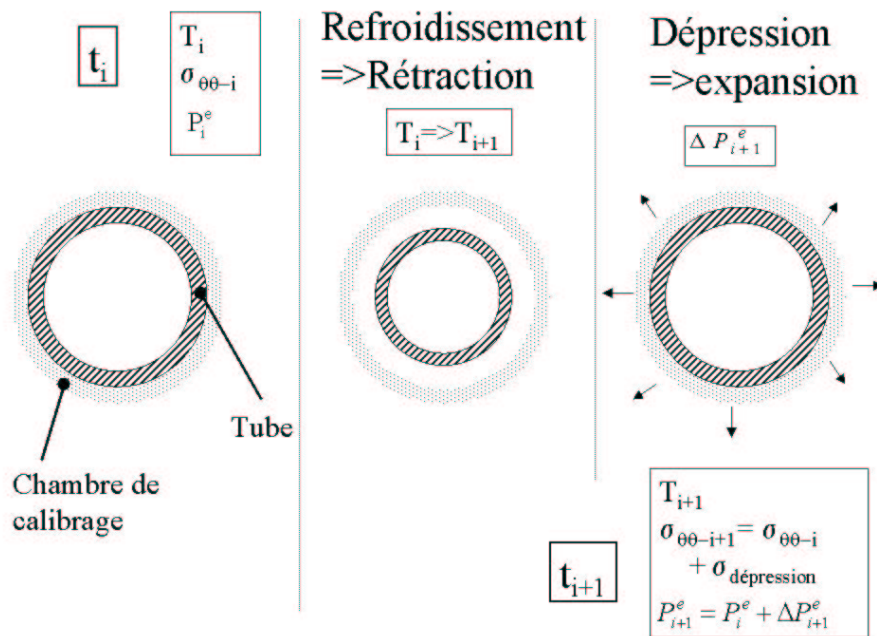


Figure 1.22 : effets dissociés du refroidissement et de la dépression

La condition de contact entre la surface extérieure et la chambre de calibrage est équivalente à une condition aux limites en déplacement orthoradial de valeur nulle. Si la dépression est suffisante pour maintenir cette condition pendant tout le refroidissement, le problème peut être approché en considérant le refroidissement d'un plan dont les quatre bords sont encastrés.

Dans ces conditions, les contraintes orthoradiales et axiales se forment suivant les mêmes mécanismes que dans la barre encastrée. Le profil de contraintes est homogène dans l'épaisseur à la fin du refroidissement et s'annule complètement lorsque la dépression est relâchée.

#### Remarques 1.9

Nous remarquons que la pression imposée à la surface extérieure du tube n'est pas la dépression du conformateur, mais la dépression nécessaire au maintien du contact. En effet la chambre de calibrage, exerce au temps  $t_i$  une réaction radiale sur le tube opposée à l'effet de la dépression. Cette réaction est équivalente à une pression de contact qui sera notée  $P_i^{\text{contact}}$  (1.14). Au début du procédé, elle est maximum et égale en valeur absolue à la dépression présente dans la chambre de calibrage. Puis le tube tentant de « décoller » de la chambre de calibrage, la pression de contact diminue au cours du refroidissement.

La pression que « ressent » la surface extérieure est égale à  $P_{i+1}^e$  et les contraintes se construisant à l'incrément  $i+1$  doivent seulement équilibrer la pression  $\Delta P_{i+1}^e$  (loi de comportement liquide - solide élastique).

$$P_i^{contact} = P_{conformateur} - \sum_1^i \Delta P_i^e \quad (1.14)$$

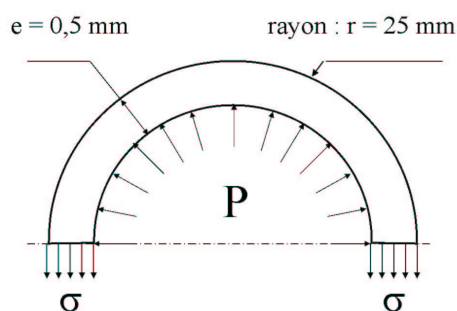
Les conditions aux limites imposées dans la direction d'étirage ne correspondent pas à celles du procédé. Ces conditions ne sont pas en déplacement (nous avons considéré  $\varepsilon_{zz}=0$ ) mais en efforts : les contraintes dans la direction axiale doivent équilibrer la force d'étirage dans l'air et les efforts de frottement entre le tube et la chambre de calibrage. Les conditions aux limites dans la direction axiale seront reconsidérées dans le paragraphe 3.2 (Formation des contraintes dues au chargement extérieur.).

### 3.1.3 Perte de contact entre le tube et la chambre de calibrage.

L'exemple de la plaque encastrée est un cas extrême qui stipule que le tube reste en contact avec la chambre de calibrage. Cependant en se refroidissant, le tube va vouloir se contracter et nous allons voir que la condition de contact peut évoluer si la dépression dans le conformateur n'est pas suffisante.

Nous allons vérifier que la perte de contact entre le tube et la chambre de calibrage peut être envisagée, afin d'expliquer la variation du profil des contraintes en fonction de la dépression. Nous allons calculer ci dessous la pression nécessaire pour maintenir constant le diamètre d'un tube pendant le refroidissement. Le problème réel est simplifié en faisant les hypothèses suivantes (Figure 1.23) :

- Nous considérons que la variation de température est homogène dans l'épaisseur afin de ne pas devoir prendre en compte la formation de contraintes résiduelles. Le tube est refroidi de 100°C à 20°C.
- L'épaisseur du tube est faible par rapport au rayon, nous pouvons faire l'hypothèse que les contraintes  $\sigma_{\theta\theta}$  sont constantes dans l'épaisseur.
- Le module et le coefficient de dilatation linéaire sont constants et égaux aux valeurs du polyéthylène basse densité à température ambiante.  $E=210 \text{ MPa}$ ,  $\alpha=150 \cdot 10^{-6} \text{ K}^{-1}$



$$\sigma_{\theta\theta} = \alpha \Delta T E \quad (1.15)$$

$$= 150 \cdot 10^{-6} * 80 * 210 \cdot 10^6$$

$$= 252 \cdot 10^4 \text{ Pa}$$

(1.16)

$$P = \frac{e \sigma_{\theta\theta}}{r} = \frac{e}{r} \alpha \Delta T E$$

$$= \frac{5 \cdot 10^{-4} * 252 \cdot 10^4}{25 \cdot 10^{-3}}$$

$$= 504 \cdot 10^2 \text{ Pa} = 0,5 \text{ bar}$$

Figure 1.23 : relation  $\sigma_{\theta\theta}$ -pression dans un tube

Si la pression à l'intérieur du tube est nulle, le matériau se contracte et le rapport entre les circonférences initiale et finale est égal à  $\alpha \Delta T$ . La pression intérieure (équivalente à une dépression extérieure) nécessaire pour annuler cette déformation est déterminée par l'équation (1.16) et génère dans l'épaisseur des contraintes  $\sigma_{\theta\theta}$  (équation (1.15))

#### Remarque 1.10

La pression nécessaire pour maintenir le contact est proportionnelle au module d'Young du matériau. Il faudra donc une pression cinq fois plus forte pour un tube en polyéthylène haute densité que pour un tube en polyéthylène basse densité.

Dans des conditions proches de celles du procédé, l'application numérique de ce modèle simplifié montre que la pression nécessaire pour maintenir le contact est de 500 mbar. Or pour ce matériau, la dépression dans le conformateur ne peut en pratique être supérieure à 240 mbar.

Il y aura ainsi une perte de contact entre le tube et la chambre de calibrage lors du refroidissement. Les conditions aux limites appliquées à la surface extérieure seront modifiées durant le calibrage.

La pression dans le conformateur correspond à la force limite,  $F_{lim}$ , à partir de laquelle nous avons une modification des conditions aux limites lors du refroidissement de la barre. Au début du procédé, lorsque le tube est en contact avec la chambre de calibrage, des contraintes de traction se fixent dans les couches solidifiées. Puis la pression limite atteinte, le tube peut se rétracter dans la direction orthoradiale. Les incréments de contraintes suivants se formeront comme lors du refroidissement libre.

Nous pouvons ainsi passer progressivement du profil des contraintes du refroidissement libre faisant se refermer le tube jusqu'à l'annulation des contraintes résiduelles dans l'épaisseur quand la dépression est suffisante pour maintenir le contact jusqu'à la fin de la solidification.

Si la dépression est suffisante pour que la modification de condition aux limites se produise après la fin de la solidification, les contraintes résiduelles seront également nulles. La perte de contact entre la surface extérieure du tube et la chambre de calibrage permet d'expliquer l'influence de la dépression sur le profil des contraintes résiduelles.

Nous retrouvons donc une partie des résultats expérimentaux : pour les faibles dépressions, le tube se referme. L'augmentation de la dépression entraîne l'annulation progressive du profil des contraintes. L'inversion du profil des contraintes observé expérimentalement n'est pas explicable pour l'instant. Mais nous gardons cependant en mémoire que la loi de comportement est pour l'instant simplifiée et que les conditions axiales imposées ne sont pas celles du procédé.

### 3.2 Formation des contraintes dues au chargement extérieur.

Les exemples de constructions des contraintes résiduelles dans une barre soumise à un chargement extérieur correspondent aux conditions aux limites réelles du procédé. Afin de distinguer la formation des contraintes résiduelles due au chargement extérieur de celles dues à la variation du volume spécifique, nous supposons que le volume spécifique du matériau est constant dans ce paragraphe. La loi de comportement du matériau est supposée viscoélastique.

Suite à l'évolution possible des conditions aux limites lors du refroidissement (paragraphe 3.1.3), il est nécessaire de distinguer dès maintenant deux situations.



### 3.2.1 Le tube est en contact avec la chambre de calibrage :

Au début du conformateur, nous considérons que la surface extérieure du tube est en contact avec le conformateur. Les conditions aux limites sont ainsi :

- Dans la direction radiale : un déplacement radial nul de la surface extérieure du tube, et une pression égale à la pression atmosphérique à la surface intérieure.
- Dans la direction axiale : un effort égal à la somme de la force d'étirage du tube dans l'air et des forces de frottement entre le tube et la chambre de calibrage. Le comportement du matériau étant viscoélastique, l'effort extérieur provoquera du fluage dans la direction axiale.

#### a) Forces de frottement.

Afin de représenter l'évolution des forces de frottement, il est nécessaire de se rappeler que les conditions aux limites sont en fait à considérer sur les bords d'une tranche du tube se déplaçant dans le conformateur (Figure 1.24).

La force de frottement entre la tranche  $i$  et la chambre de calibrage dépend essentiellement de la pression de contact  $P_{\text{contact}}$  définie au paragraphe 3.1.2. Elle peut être calculée par la loi de Coulomb (1.17).

La force de frottement que les contraintes de la tranche  $i$  doivent équilibrer est égale à la somme des frottements de la tranche 1 à l'entrée du conformateur jusqu'à la tranche  $i-1$ .

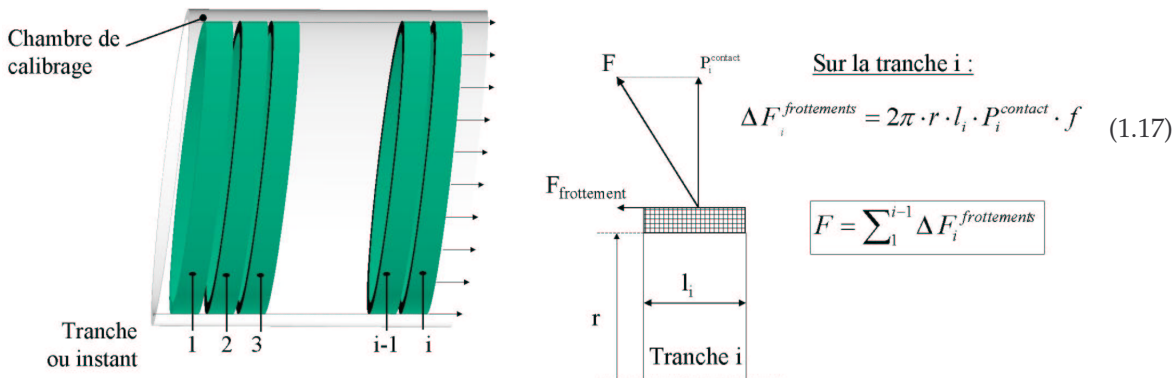


Figure 1.24 : efforts de frottement sur la tranche  $i$ ,  $f$  coefficient de frottement ( $\sim 0,15$ )

Tant que la dépression dans le conformateur est suffisante pour maintenir le contact entre le tube et la chambre de calibrage, la force de frottement est strictement croissante au cours du refroidissement si on suit un point de la surface au cours du temps (« vision lagrangienne »). D'après l'évolution de la pression de contact (Remarques 1.9), la variation du frottement sera la plus importante au début du procédé. A ce moment, le tube est en cours de solidification, les contraintes axiales supplémentaires dues au frottement se concentreront dans les couches solidifiées, donc dans les couches extérieures.

#### b) Influence de l'élongation axiale sur les contraintes orthoradiales.

Nous allons voir que si on néglige l'influence de la variation du volume spécifique, la formation des contraintes dans la direction orthoradiale est uniquement due à l'élongation axiale. L'élongation axiale du tube introduit une diminution significative du diamètre. Afin de s'en convaincre il suffit d'observer Figure 1.25 le rétrécissement latéral

d'un film lors du procédé d'étirage ou la diminution du diamètre d'un tube lors de l'étirage dans l'air précédant l'entrée dans le conformateur.

Le schéma de formation des contraintes résiduelles dans la direction orthoradiale,  $\theta$ , est équivalent à celui du paragraphe 3.1.2. Au retrait thermique, décrit Figure 1.22, correspond la diminution de diamètre due à l'élongation axiale. Le maintien du contact entre le tube et la chambre de calibrage va nécessiter que l'on applique une dépression,  $\Delta P_i^{\text{fluage}}$ , à la surface extérieure afin de « regonfler » le tube et de compenser la diminution de diamètre : des contraintes orthoradiales de traction se formeront principalement dans les couches solidifiées.

L'élongation axiale provient de la relaxation des contraintes axiales qu'il faut compenser à chaque incrément et de l'augmentation de la force de tirage du tube due aux forces de frottement. L'augmentation de la force de frottement, importante au début du procédé, va ainsi fixer indirectement des contraintes orthoradiales de traction dans les couches extérieures.

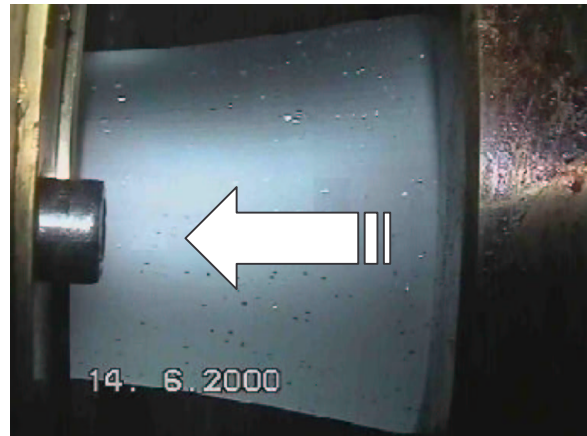
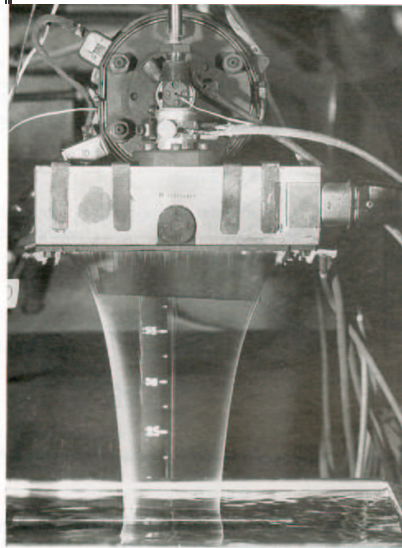


Figure 1.25 : évolution expérimentale de la largeur d'un film.(Agassant et al., 1996) ; évolution du diamètre d'un tube lors de l'étirage dans l'air

### 3.2.2 Le tube n'est plus en contact avec la chambre de calibrage.

Après la perte de contact, les mécanismes de formation dans les directions axiale et orthoradiale correspondent à ceux de la barre lors de l'essai de fluage :

- Dans la direction radiale, les conditions aux limites sont des conditions en pression : pression atmosphérique à la surface intérieure et dépression du conformateur à la surface extérieure. La formation des contraintes dans les directions axiale et orthoradiale sont indépendantes l'une de l'autre.
- Dans la direction axiale, les contraintes doivent équilibrer la force d'étirage dans l'air ainsi que les frottements précédents entre le tube et la chambre de calibrage. Après la perte de contact entre le tube et la chambre de calibrage, le chargement axial est constant.

Dans les deux directions, la formation des contraintes résiduelles dues au chargement extérieur ne dépend donc plus que du comportement viscoélastique du matériau. Les

contraintes de traction vont se redistribuer progressivement dans les couches les plus froides, si la température du matériau est suffisamment élevée pour que les contraintes puissent se relaxer.

Les efforts extérieurs et la relaxation des contraintes au cours du refroidissement vont induire des contraintes de traction dans les premières couches solidifiées et donc un profil de contrainte opposé à celui dû à la variation du volume spécifique. Si le tube est en contact avec la chambre de calibrage, les mécanismes de formation des contraintes résiduelles dans la direction orthoradiale du tube proviennent également de l'élongation axiale du tube qui introduit une contraction transversale. Si le tube n'est plus en contact, les contraintes dans les directions radiale et orthoradiale se construisent comme dans le cas de la barre.

#### 4 Récapitulatif

---

Ces exemples intuitifs ont permis de cibler les mécanismes de formation des contraintes résiduelles et de comprendre l'influence que peut avoir la dépression. En plaquant le tube contre la chambre de calibrage, la pression a un double rôle dans la formation des contraintes résiduelles.

- Elle empêche la contraction radiale du matériau due au retrait thermique et à l'élongation axiale et introduit ainsi des contraintes de traction dans les couches déjà solidifiées.
- Elle provoque des forces de frottement entre le tube et la chambre de calibrage et introduit ainsi une élongation axiale supplémentaire au cours de la solidification. Elle provoque ainsi une évolution anticipée des conditions aux limites.

Comme dans le cas de la barre, le profil des contraintes résiduelles dépendra de deux mécanismes de formation, aboutissant chacun à un profil de contraintes résiduelles opposé. La différence essentielle entre les mécanismes de formation des contraintes résiduelles dans une barre et lors du calibrage d'un tube provient de la diminution du diamètre due au fluage axial. Le coefficient de Poisson (ou son équivalent viscoélastique) sera un paramètre important dans la modélisation du profil des contraintes résiduelles. Cette caractéristique est cependant délicate à déterminer, surtout que comme nous allons l'entrevoir au paragraphe suivant, les chaînes du matériau sont sensiblement orientées durant la phase d'étirage ce qui modifie les phénomènes de rétraction transversale.

Le profil final des contraintes résiduelles dépendra de l'évolution des forces de frottement et du moment où intervient le décollement entre le tube et la chambre de calibrage. Une fois celle-ci effectuée, seule la redistribution des contraintes dues au comportement viscoélastique affectera le profil des contraintes.

Cette première analyse a permis de sélectionner les caractéristiques du matériau intervenant dans la formation des contraintes résiduelles. L'approche intuitive a cependant atteint ses limites et afin de pouvoir comparer le poids des mécanismes rencontrés, il est désormais nécessaire de passer à la modélisation du procédé.

(Agassant et al., 1996)

J. F. Agassant, P. Avenas, J. P. Sergent, B. Vergnes and M. Vincent, *La mise en forme des matières plastiques*, Lavoisier, Paris (1996).

(Boitout, 1993)

F. Boitout, "Calcul des contraintes résiduelles dans les pièces injectées en thermoplastiques en utilisant une description surfacique de la géométrie", Ph. D. thesis, Ecole Nationale Supérieure des Mines de Paris, (1993).

(Goslinga, 1980)

J. Goslinga, "The determination of residual stresses in plastics pipes", Ph. D. thesis, twente university, (1980).

(Guo et Isayev, 2000)

X. Guo and A. I. Isayev, "Thermal residual stresses in freely quenched slabs of semicrystalline polymers : Simulation and experiment", *Journal of applied polymer science*, vol. 75, pp. 1404-1415 (2000).



<b>CHAPITRE 2 - CARACTERISATIONS EXPERIMENTALES DU PROCEDE .....</b>	<b>42</b>
1 BIBLIOGRAPHIE .....	42
1.1 Caractérisations des contraintes résiduelles par découpage .....	42
1.1.1 Evaluation du moment du au profil des contraintes résiduelles. ....	42
1.1.2 Evaluation du profil des contraintes.....	43
1.1.3 Ordre de grandeur des contraintes résiduelles dans la bibliographie.....	45
1.1.4 Influence de la longueur du tube .....	46
1.2 Caractérisation des contraintes résiduelles par biréfringence .....	46
2 LES MATERIAUX – ESSAI D’EXTRUSION .....	48
2.1 Matériaux de référence.....	48
2.2 Fabrication des tubes.....	48
3 RESULTATS OBTENUS.....	50
3.1 Mesure des contraintes résiduelles.....	50
3.1.1 Mesure de la déformation due aux contraintes résiduelles .....	50
3.1.2 Ouverture des tubes en fonction de la dépression .....	51
3.1.3 Influence de la longueur du tube .....	52
3.1.4 Effet de la relaxation des contraintes .....	53
3.2 Profil des contraintes résiduelles obtenu par découpage.....	53
3.3 Tubes multicouches .....	55
3.4 Essais de biréfringence .....	55
3.5 Caractérisation de l’orientation par rayons X .....	57
3.6 Essais sur le polyéthylène basse densité linéaire.....	57
3.6.1 Détermination de l’orientation par biréfringence .....	58
3.6.2 Détermination du retrait dû à l’orientation figée.....	59
3.6.3 Propriétés mécaniques .....	60
3.6.4 Interprétation .....	61
4 MESURES EN LIGNE.....	63
4.1 Mesure de la température.....	63
4.2 Les forces d’étirage et de frottement .....	64
4.3 Mesure du profil de vitesse .....	66
5 CONCLUSION .....	67



## Chapitre 2 - Caractérisations expérimentales du procédé

Ce chapitre présente les résultats expérimentaux représentatif du procédé que nous avons tenté de reproduire dans la suite de cette étude. Nous y décrivons dans un premier temps les méthodes de caractérisations usuelles des contraintes résiduelles disponibles dans la bibliographie. Puis après avoir présenté plus en détail les matériaux de référence de l'étude et les paramètres du procédé, nous abordons les mesures des contraintes résiduelles que nous avons effectuées en précisant l'influence des conditions expérimentales. En marge des essais de caractérisation effectués avec les matériaux de référence, nous intégrons à ce moment des essais réalisés sur des polyéthylènes basses densité linéaire dont le comportement final est sensible à la vitesse d'extrusion.

Le chapitre est ensuite complété par des mesures effectuées in-situ sur le procédé afin de pouvoir caler ou confirmer les résultats des modèles numériques. Nous décrivons les méthodes nous ayant permis de mesurer l'évolution de la température dans le calibre, la sensibilité des forces de frottement en fonction des paramètres du procédé et le profil de vitesse entre la filière et la chambre de calibrage.

### 1 Bibliographie

---

#### 1.1 Caractérisations des contraintes résiduelles par découpage

##### 1.1.1 Evaluation du moment du au profil des contraintes résiduelles.

En enlevant ou en sectionnant une partie d'une pièce, l'équilibre mécanique est modifié . La pièce va se déformer pour retrouver un état d'équilibre. En mesurant la déformation depuis l'état initial, on est ainsi capable de remonter aux contraintes internes en calculant l'effort qu'il faudrait appliquer sur la pièce pour la remettre dans sa configuration initiale. Les méthodes de découpage permettent de déterminer le moment induit par les contraintes résiduelles.

Différentes méthodes de découpage ont été mises au point afin de déterminer le profil des contraintes résiduelles, quelques exemples sont représentés Figure 2.1.

- a) et c) [Anderson, 1924 #54] découpent une bande ne débouchant pas suivant  $\theta$  ou  $z$ . Ils ne coupent pas à partir du bord pour garder le tube initial comme origine de mesure.
- b) [Hatfield, 1919 #55] découpent une bande pour permettre au reste du tube de s'enrouler librement. Ceci est nécessaire pour les tubes d'épaisseur plus importante, nous avons vérifié dans notre cas que le recouvrement n'entraînait pas de différence de l'angle d'ouverture.
- d) [Sachs, 1942 #56] utilisent la même méthode que Anderson, mais ils sectionnent le tube suivant les deux génératrices diamétralement opposées afin d'éviter les effets de bords.



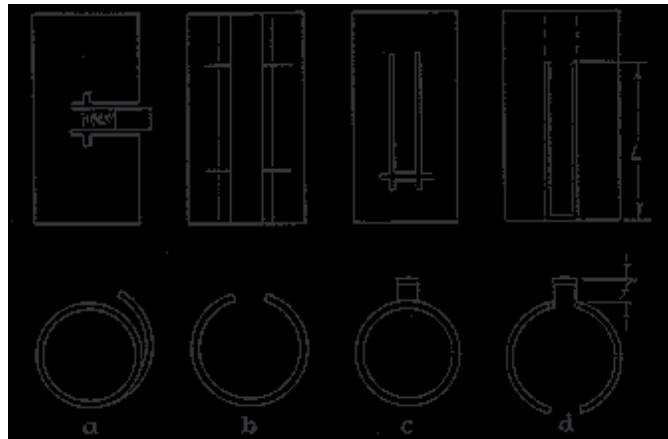


Figure 2.1 : différentes méthodes de découpage des tubes. [Sachs, 1942 #56]

Dans le cas des tubes de faible épaisseur, la découpe permet d'obtenir une déformation importante qui permet de remonter avec précision aux contraintes résiduelles. De par la faible épaisseur du tube, on considère que les contraintes  $\sigma_r$  sont constantes dans l'épaisseur, donc égale à 0 puisque nulle sur les bords (ou égale à la pression atmosphérique). On se ramène ainsi à un problème plan.

Néanmoins la courbure initiale du tube entraîne un changement du moment d'inertie de flexion ce qui limite les déformations de la bande et entraîne une influence des contraintes  $\sigma_z$  sur l'angle d'ouverture [Timoshenko, 1959 #61]. Les modèles établis pour les plaques devront donc certainement être modifiés afin de tenir compte de la courbure initiale.

Afin de pouvoir séparer le rôle des contraintes  $\sigma_\theta$  et  $\sigma_z$ , [Boot, 1991 #58] découpent de fines lamelles dans le sens  $\theta$  et  $z$  afin de relaxer les contraintes internes dans la direction perpendiculaire. La rigidité des échantillons ( tubes en polyéthylène de diamètre 183 mm, et d'épaisseur 6 mm) ne permet pas de mesurer avec une précision suffisante les changements de courbure lorsqu'ils relâchent les contraintes internes. Il utilise alors des jauges pour mesurer les déformations à la surface. Celles-ci sont collées à l'intérieur et à l'extérieur, puis le tube est découpé en tenant compte de l'effet de sa longueur sur l'ouverture.

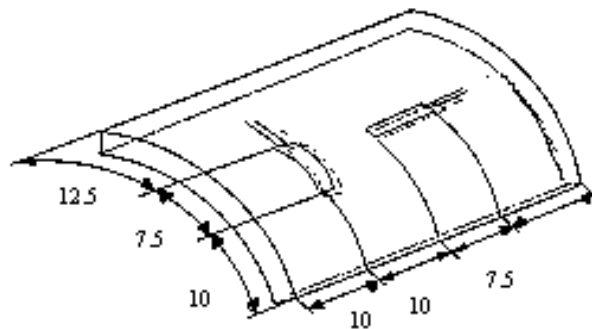


Figure 2.2 : mesure des déformations en surface en découpant un tube

### 1.1.2 Evaluation du profil des contraintes

En enlevant successivement des couches, la variation de la courbure permet d'évaluer les contraintes qui étaient présentes dans la partie retirée. Il est alors théoriquement possible de remonter à la distribution des contraintes dans l'épaisseur et de déterminer le profil des contraintes résiduelles.

La technique de [Treuting, 1951 #59] a été développée pour des plaques. Elle ne sera donc pas directement utilisable pour les tubes, pour lesquels nous avons un moment d'inertie de la section différent à cause de la courbure.

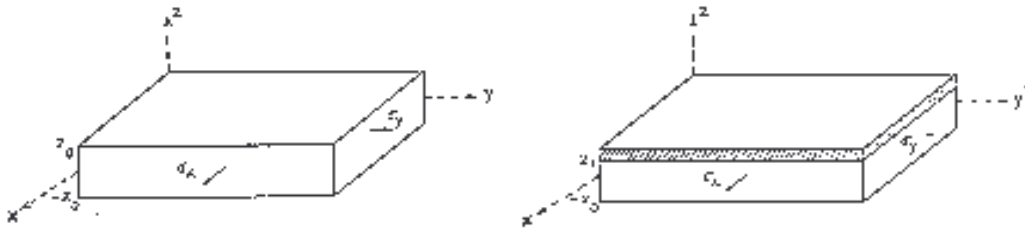


Figure 2.3 : pelage d'une épaisseur de plaque

Hypothèses de calcul :

- Afin de déterminer les contraintes à partir des courbures, il est nécessaire que l'échantillon soit en flexion linéaire dans l'intervalle des courbures considéré et que les constantes élastiques soient homogènes dans tout le matériau.
- Les contraintes ne doivent pas varier dans le plan de la plaque mais uniquement dans l'épaisseur.

Dans les calculs, la courbure initiale est supposée nulle. Si l'on enlève la couche comprise entre  $z_0$  et  $z_1$  (ordonnées des surfaces avant et après découpe), l'équilibre interne de la pièce est modifié et elle va alors se déformer. En utilisant les relations de la théorie des plaques et des enveloppes [Timoshenko, 1959 #61] entre le moment de flexion et la courbure, Treuting et Read ont obtenu les relations suivantes :

$$M_x(z_1) = \int_{-z_1}^{z_1} \sigma_x(z) \left[ z \frac{z_0 - z_1}{2} \right] dz = \frac{-E}{12(1-\nu^2)} (z_0 + z_1)^3 (\varphi_x(z_1) + \nu\varphi_y(z_1)) \quad (2.1)$$

$$\sigma_x(z_1) = \frac{-E}{6(1-\nu^2)} \left\{ \begin{array}{l} (z_0 + z_1)^2 \left[ \frac{d\varphi_x(z_1)}{dz_1} + \nu \frac{d\varphi_y(z_1)}{dz_1} \right] \\ + 4(z_0 + z_1) [\varphi_x(z_1) + \nu\varphi_y(z_1)] - 2 \int_{z_1}^{z_0} [\varphi_x(z_1) + \nu\varphi_y(z_1)] dz \end{array} \right\} \quad (2.2)$$

$\varphi_x, \varphi_y$  courbure après pelage dans les directions  $x$  et  $y$ ,  $\nu$  coefficient de Poisson,  $E$  module élastique.

Un bon recouvrement des résultats obtenues en enlevant des couches externes puis ensuite des couches internes garantit le procédé expérimental.

[Manson, 1998 #57] a développé une technique permettant de remonter aux contraintes résiduelles en mesurant les déformations de surface. Ils mesurent la déformation en surface lorsque pour relâcher les contraintes internes on usine progressivement une fente de l'autre côté. La déformation est mesurée à l'aide d'une jauge de déformation. Cette méthode pourrait être adaptée aux tubes afin de pouvoir remonter au profil des contraintes résiduelles.

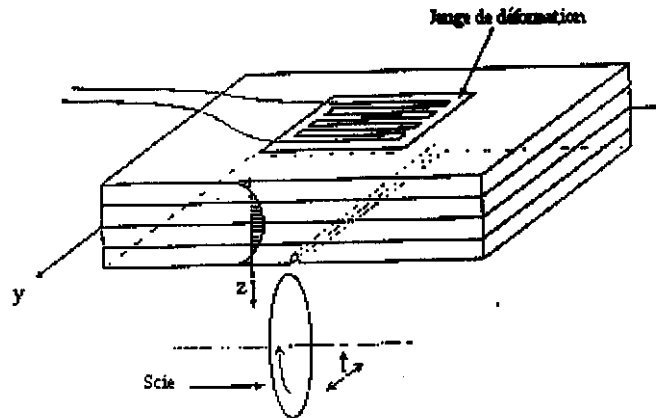


Figure 2.4 : mesure des déformations en surface en usinant une fente

Le modèle de [Williams, 1991 #60] a été développé pour déterminer les contraintes internes dans les tubes. La distribution des contraintes dans l'épaisseur  $\sigma_{\theta\theta}(h)$  ( $h$  position dans l'épaisseur mesurée à partir de la surface extérieure) est aussi obtenue par pelage des couches externes puis internes.

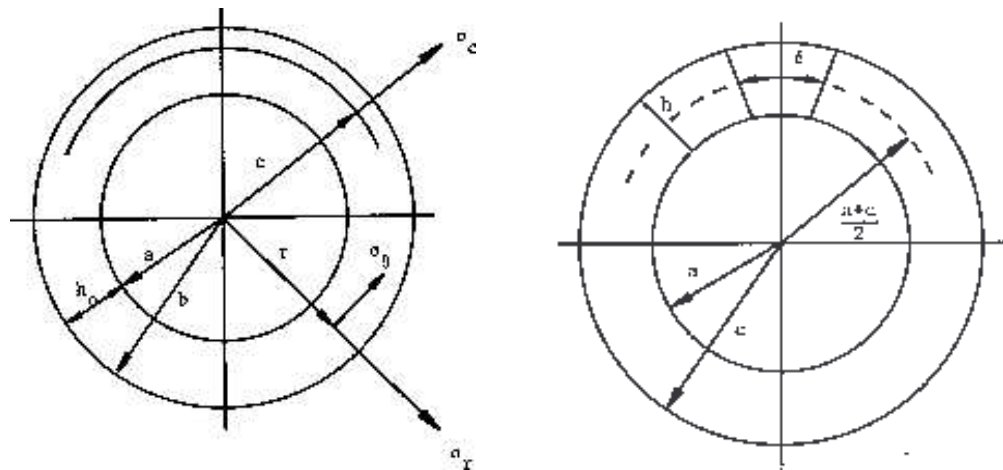


Figure 2.5 : pelage d'une épaisseur de tube

$$\sigma_{\theta\theta}(h) = \frac{E}{12\pi a^2} \left[ 4h\delta + h^2 \frac{d\delta}{dh} + 2 \int_a^h \delta dh \right] + \sigma_0 \quad (2.3)$$

$\sigma_0$  contrainte assurant la condition  $\int_a^b \sigma_{\theta} dh = 0$ ,  $h_0$  épaisseur du tube avant découpe,  $h$  position dans l'épaisseur mesurée à partir de la surface extérieure,  $a$  rayon intérieur du tube,  $b$  rayon extérieur,  $\delta$  ouverture du tube. Expérimentalement celui-ci est coupé en deux et la variation de diamètre permet de remonter à l'ouverture du tube  $\delta$ .

### 1.1.3 Ordre de grandeur des contraintes résiduelles dans la bibliographie.

Dans la littérature nous ne trouvons pas d'expériences réalisées sur des tubes aussi minces que dans notre cas. Les études réalisées jusqu'à présent concernent au minimum des tubes de 8-10 mm d'épaisseur, alors que les nôtres ont une épaisseur de 0,5mm. L'origine des contraintes résiduelles est dues aux différences de température dans

l'échantillon lors du refroidissement et les conditions aux limites mécaniques interviennent assez peu.

Auteurs	Diam./ép.(mm)/matière	$\sigma$ intérieure(MPa)	$\sigma$ extérieure(MPa)
[Williams, 1991 #60]	90/10/PEhd	1	-3,5
[Beech, 1978 #65]	500/30/PEmd	1,5	-2

#### 1.1.4 Influence de la longueur du tube

A plusieurs reprises la littérature évoque une dépendance entre la variation du diamètre lors de la découpe et le longueur des tubes,  $L$  : l'ouverture du tube diminue lorsque  $L$  diminue. Cet effet est observé lorsque  $L$  est inférieure de 1,5 à 3 fois le diamètre, suivant les auteurs. On observe aussi une dépendance de l'enroulement en fonction de la largeur pour les bandes découpées parallèlement à la génératrice mais ceci est clairement dû à la courbure initiale de ces bandes.

[Clutton, 1995 #62] ont développé un modèle pour déterminer l'influence de la longueur du tube sur son ouverture. Ils ne cherchent pas à remonter à la distribution des contraintes dans l'épaisseur et supposent dès le début une distribution linéaire des contraintes. Les auteurs considèrent que le fait de couper le tube dans le plan  $r-\theta$  est équivalent à appliquer un moment  $-Mz$  aux extrémités (Figure 2.6). L'effet de ce moment est réparti sur la longueur par une fonction tirée des théories de l'élasticité des plaques et enveloppes de [Timoshenko, 1959 #61].

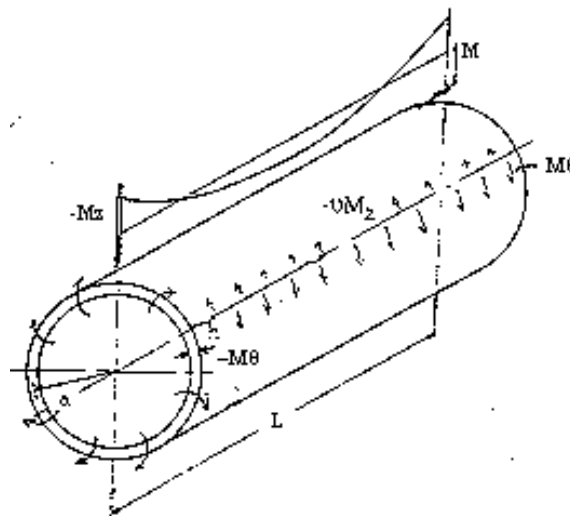


Figure 2.6 : moment induit par la surface de coupe

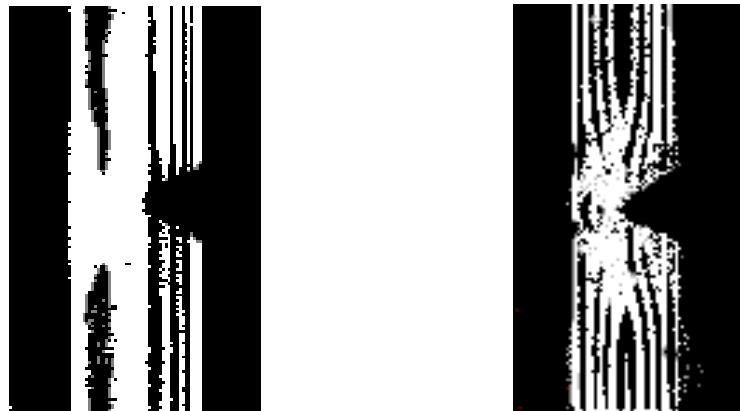
## 1.2 Caractérisation des contraintes résiduelles par biréfringence

### Séparation des effets des contraintes et de l'orientation

La biréfringence est le résultat de deux causes indépendantes : les contraintes et l'orientation figée. Ces deux phénomènes étant généralement présents simultanément dans l'échantillon à étudier, il est nécessaire de pouvoir séparer la part de chacune de ces causes. Les méthodes utilisées consistent à étudier la biréfringence de l'échantillon dans son état initial puis de le découper afin de relaxer les contraintes résiduelles. Il ne reste alors que la biréfringence due à l'orientation, et l'on peut ensuite remonter aux contraintes résiduelles.

Méthode de [Windle, 1980 #63] : dans cette méthode on relaxe les contraintes en découpant des bandes très fines. [Windle, 1980 #63] montrent que pour le polycarbonate la largeur critique de relaxation des contraintes est de l'ordre du mm. On relaxe ainsi les contraintes  $\sigma_x$  et il ne reste que l'effet de l'orientation et des contraintes internes suivant y. La deuxième découpe relaxe  $\sigma_y$  et nous n'avons alors plus que la biréfringence due à l'orientation.

Méthode de [Broutman, 1976 #64] (Figure 2.7) : lorsque l'on usine une fente dans l'échantillon, les contraintes perpendiculaires à celle-ci sont relaxées, alors que les franges dues à l'orientation ne sont pas affectées.



---

Figure 2.7 : biréfringence due à l'orientation,

biréfringence due aux contraintes internes

## 2 Les matériaux – Essai d’extrusion

### 2.1 Matériaux de référence

Deux matériaux de référence ont été sélectionnés au début de l’étude pour caractériser l’influence des paramètres du procédé. Les essais ont été menés sur un polyéthylène haute densité de la société Basell : l’Hostalen® 4750 et sur un polyéthylène basse densité de la société Elf Atochem : le Lacqtène® FB3010. Les caractéristiques de ces produits fournies par les constructeurs et intervenant dans la formation des contraintes résiduelles sont reportées dans le tableau ci-dessous. Une étude plus complète de leurs propriétés est décrite dans le 3<sup>ème</sup> chapitre.

	Lacqtène® FB3010	Hostalen® 4750
Module élastique	215 MPa	900 MPa
Contrainte seuil d’écoulement	10,5 MPa	23 MPa
Température de fusion	113°C	-

Caractéristiques fournisseur des matériaux de référence.

La différence de module élastique entre ces deux matériaux a une influence significative sur les mécanismes de formation des contraintes résiduelles. Le Polyéthylène basse densité ayant un module plus faible, le profil de contraintes résiduelles sera plus sensible aux conditions aux limites mécaniques (dépression, frottement,...).

### 2.2 Fabrication des tubes

Les essais de caractérisation ont été effectués sur la ligne pilote du centre de recherche de Cebal.

Le tube est formé dans une filière cylindrique permettant de ne pas avoir de ligne de soudure. Il est ensuite étiré dans l’air avant d’entrer dans le calibre où on fixe sa géométrie finale. Le calibre (Figure 2.8) est un bac de 2 m de long à l’intérieur duquel une dépression plaque l’extérieur du tube à l’intérieur d’un tube en laiton appelé chambre de calibrage. Pour appliquer de manière homogène la dépression, la chambre de calibrage est percée à sa périphérie et des rainures sont usinées à l’intérieur (Figure 2.9). La chambre de calibrage est refroidie par l’extérieur au moyen d’une rampe d’eau. La température de l’eau est régulée à température constante afin de minimiser les variations du procédé.

L’installation de dimension industrielle est instrumentée afin de pouvoir mesurer les principaux paramètres. Au niveau du calibre, nous avons accès à la mesure de la dépression, de la température de l’eau de refroidissement et du débit d’eau à l’entrée du calibre et sur la chambre de calibrage.

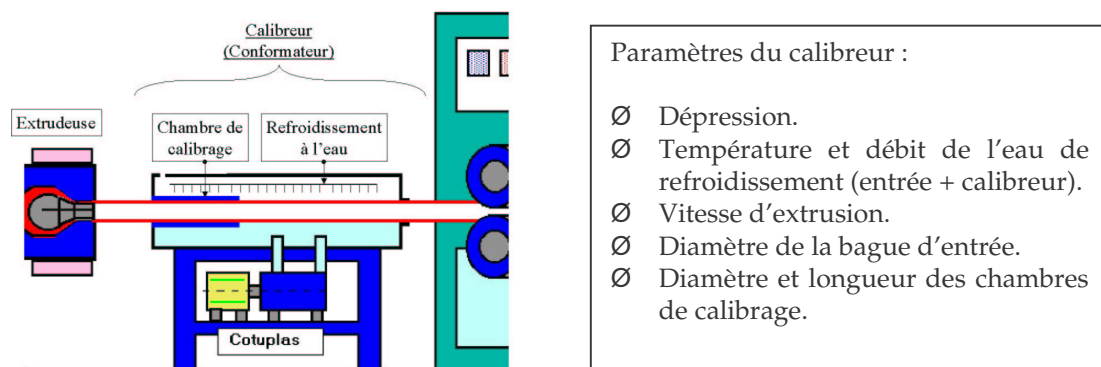


Figure 2.8 : paramètres du calibreur

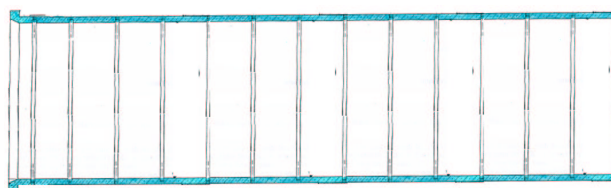


Figure 2.9 : chambre de calibrage

Pour les essais, nous avons choisi des tubes de diamètre relativement grand afin d'avoir des réponses plus importantes lors de la caractérisation du procédé. Ceux-ci ont un diamètre de 50 mm, une épaisseur de 0,5mm et sont découpés en sortie de calibreur en longueur de 200mm.

La température de sortie d'extrudeuse est égale à 220°C, le rapport d'étirage entre la filière et le calibreur est de 2,5, la vitesse d'extrusion est de 12m/minute en sortie de calibreur. A cette vitesse on utilise deux chambres de calibrage accolées de 300 mm chacune. La température de l'eau de refroidissement est régulée à 16°C.

L'influence de la dépression appliquée dans le conformateur a une importance prépondérante lors du calibrage des tubes et est le principal levier permettant de « régler » le niveau de contrainte en production. Ce paramètre a été augmenté volontairement dans cette étude pour comprendre son effet dans les mécanismes de formation des contraintes résiduelles.

	Dépression dans le conformateur	Dépression de fonctionnement classique
Polyéthylène basse densité	-100 à -240 mbar	-150 mbar
Polyéthylène haute densité	-220 à -460 mbar	- 300 mbar

D'autres essais ont été réalisés pour quantifier l'influence de la vitesse d'extrusion, de la température de l'eau de refroidissement et de certains composants du procédé tel le diamètre des bagues d'entrée. Ces paramètres ont pour les deux matériaux sélectionnés une influence du second ordre par rapport à la dépression et les différences obtenues n'étaient pas significatives par rapport à l'erreur de mesure.

Remarques : les caractéristiques finales des tubes sont également sensibles aux paramètres de l'extrudeuse. Des essais internes de Cebal ont mis en évidence la sensibilité du retrait des tubes lorsqu'ils sont ensuite réchauffés en fonction de la géométrie de la filière et des températures d'extrusion.

### 3 Résultats obtenus

#### 3.1 Mesure des contraintes résiduelles

##### 3.1.1 Mesure de la déformation due aux contraintes résiduelles

La méthode la plus simple pour évaluer les contraintes orthoradiales  $\sigma_{\theta\theta}$  dans un tube consiste à découper le tube suivant la génératrice (Figure 2.10) et à mesurer l'angle ou le diamètre après ouverture. Cette méthode est en particulier utilisée sur le site de production afin de contrôler les contraintes résiduelles en fonction des paramètres du procédé. Si la couche extérieure est en traction, le moment produit par le profil de contraintes résiduelles va avoir tendance à ouvrir le tube ( $\alpha > 0$ ), voire le mettre complètement à plat. A l'opposé si la couche externe est en compression le tube va se refermer ( $\alpha < 0$ ). Cette méthode étant mise en œuvre simplement, elle introduit peu d'artefacts expérimentaux.

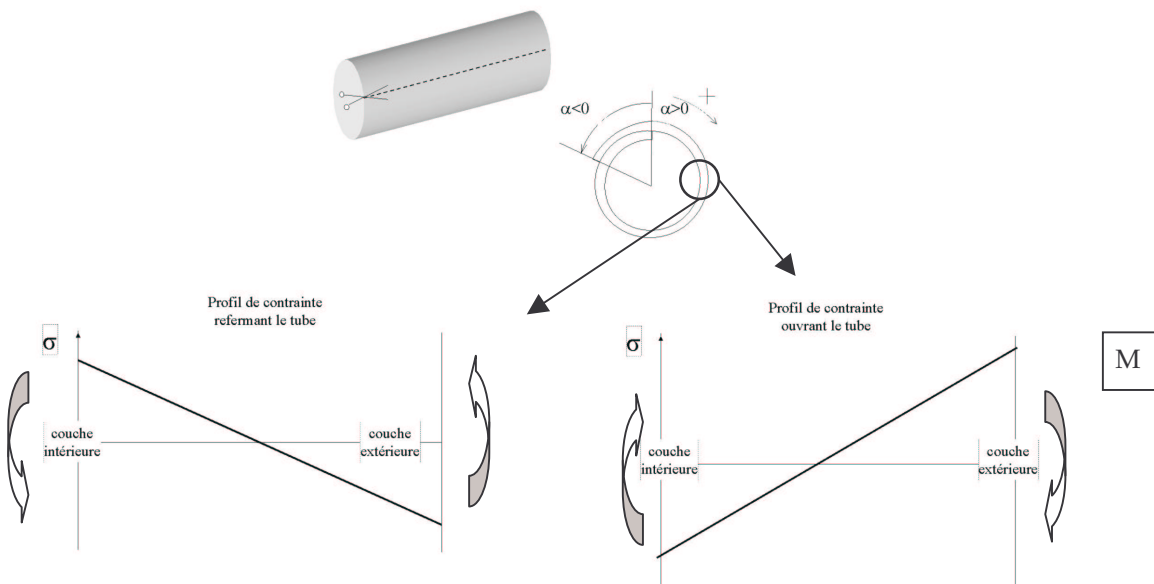


Figure 2.10 : découpe suivant la génératrice et profil de contrainte avant l'ouverture

Afin d'évaluer le moment induit par les contraintes axiales, on peut découper une bande d'environ 1 cm, parallèlement à la génératrice (Figure 2.11). Si la couche externe est en compression la bande va avoir tendance à s'enrouler sur elle-même (Figure 2.11(a)) alors que si la couche externe est en traction la bande va avoir tendance à s'enrouler sur l'extérieur (Figure 2.11(b)).

La découpe de la bande permet d'avoir uniquement une information qualitative sur le profil de contrainte  $\sigma_{zz}$ , la concavité de la bande rigidifiant sa déformation.

Les contraintes résiduelles sont considérées comme convenables si la bande ne s'enroule pas dans un sens ou dans l'autre et si le tube s'enroule sur lui-même d'environ 1/3 de son diamètre. Les contraintes internes sont donc jugées nécessaires pour que le tube ne se déforme pas dans la suite de la chaîne de production.

Cette méthode est sensible pour déterminer les contraintes orthoradiales  $\sigma_{\theta\theta}$  dans les tubes de faible épaisseur. Elle permet de bien mettre en évidence l'influence des principaux paramètres tel que la dépression dans le conformateur. Cependant, cette



méthode permet seulement de déterminer le moment induit par le profil des contraintes résiduelles, elle ne permet pas de déterminer le profil de celles-ci.

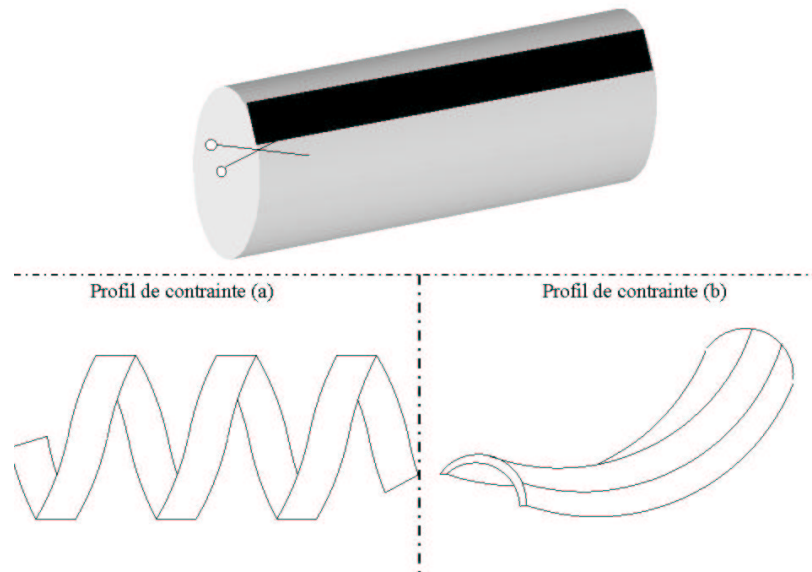


Figure 2.11 : découpe d'une bande parallèlement a la génératrice

### 3.1.2 Ouverture des tubes en fonction de la dépression

La dépression produite dans le bac du conformateur est le paramètre le plus sensible du procédé vis à vis des contraintes résiduelles (Figure 2.12). Une augmentation de la dépression provoque l'ouverture des tubes pour les deux types de polyéthylène, donc entraîne la formation de contraintes de traction dans les couches extérieures.

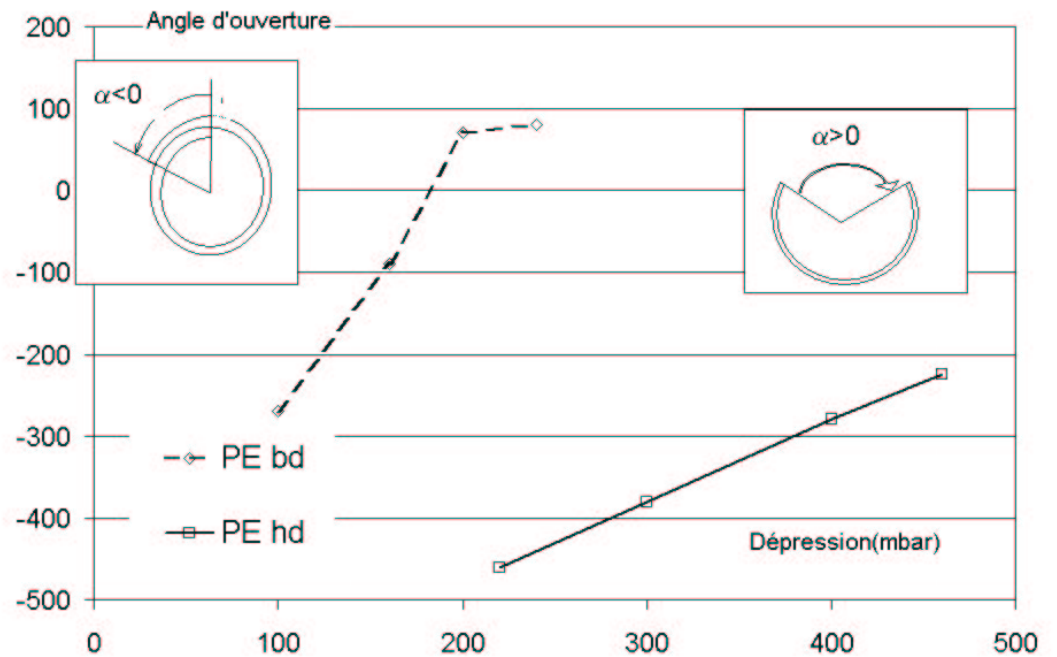


Figure 2.12 : Influence de l'ouverture des tubes en fonction de la dépression.

Les effets sont plus marqués pour le polyéthylène basse densité, les dépressions les plus importantes entraînant même une mise à plat du tube.

Remarque : des essais ont également été effectués à des dépressions de 350 mbar avec du polyéthylène basse densité. Dans ces conditions le tube se met complètement à plat et s'enroule dans la direction perpendiculaire de  $720^\circ$  (2 tours) par l'extérieur. Les contraintes axiales  $\sigma_{zz}$  près de la surface extérieure du tube sont donc certainement très importantes.

### 3.1.3 Influence de la longueur du tube

Pour découper les tubes nous avons réalisé un mandrin expansible monté sur un tour. Il s'agit d'un tube de PVC fendu suivant une génératrice et deux cônes de chaque côté (un dans le mandrin du tour, l'autre centré sur la contre-poupée). En faisant varier la distance entre les cônes, on écarte le tube expansible, et on peut ainsi maintenir l'échantillon.

Une lame de cutter montée dans le porte-outil permet alors de couper des rondelles tout en se servant des verniers du tour. En utilisant une lame de cutter, on ne génère presque pas de contraintes lors de la découpe.

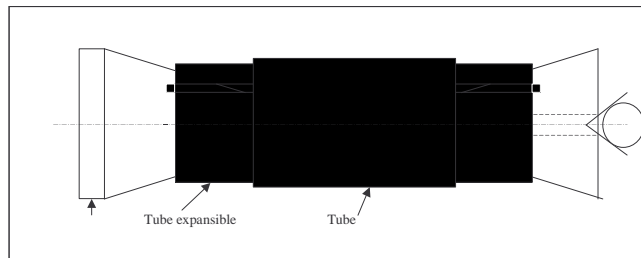


Figure 2.13 : principe du mandrin expansible

Les résultats obtenus sont représentés Figure 2.14 : pour des tubes d'épaisseur 0,5mm et de diamètre 50mm, l'ouverture atteint une asymptote lorsque la longueur est égale au minimum à 30 mm. L'influence de la longueur du tube sur l'ouverture est en accord avec les résultats des différents auteurs. Les tubes utilisés pour déterminer le moment induit par les contraintes résiduelles ont une longueur de 200mm.

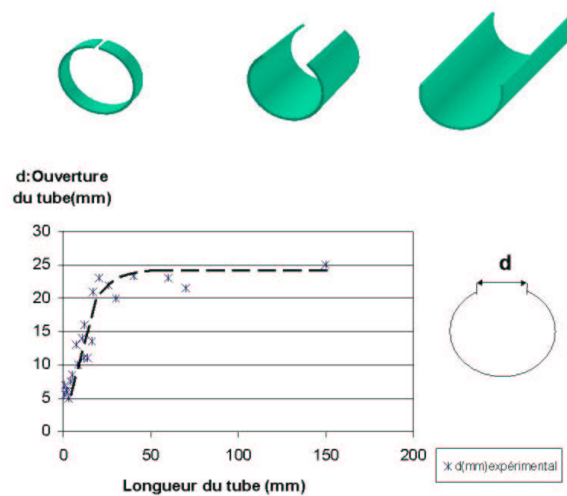


Figure 2.14 : influence de la longueur du tube

### 3.1.4 Effet de la relaxation des contraintes

La température de transition vitreuse des polyéthylènes est de l'ordre de  $-100^{\circ}\text{C}$ . A température ambiante le comportement des polyéthylènes est viscoélastique, c'est-à-dire que les contraintes ont tendance à se relaxer avec le temps. Différentes mesures ont été réalisées afin d'estimer l'importance de cet effet. Les tubes ont tous été extrudés lors de la même campagne et découpés à différents intervalles dans le temps. La première série a été découpée directement sur le site de production, la seconde 1 mois après, puis la troisième 4 mois après la date de fabrication.

Pour le polyéthylène haute densité, l'angle d'ouverture diminue avec le temps à cause de la relaxation des contraintes quelle que soit la valeur initiale (Figure 2.15). Pour le polyéthylène basse densité l'effet est moins compréhensible à ce stade. Si le tube se refermait, l'angle de fermeture diminue avec le temps. Par contre si le tube s'ouvrait, l'angle a tendance à augmenter avec le temps indiquant ainsi une relaxation plus importante des contraintes en compression des couches intérieures. Le calcul des profils de contraintes explique ces résultats par la forme du profil de contrainte final.

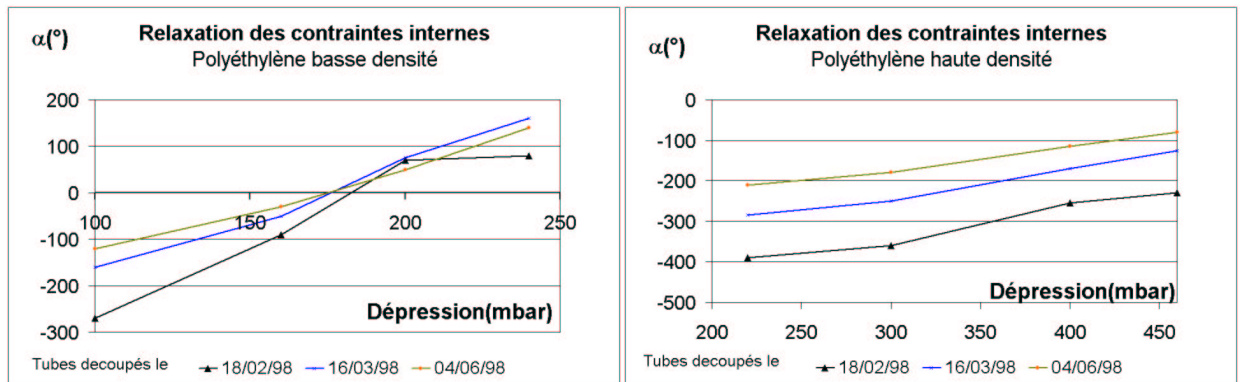


Figure 2.15 : relaxation des contraintes en fonction du temps

### 3.2 Profil des contraintes résiduelles obtenu par découpage

Nous avons décrit en introduction l'effet de la dépression sur l'ouverture du tube lorsque l'on sectionne celui-ci suivant sa génératrice. La variation des contraintes résiduelles est alors quantifiée par l'angle d'ouverture du tube ou par la variation de diamètre. L'ouverture du tube après découpe est liée aux contraintes orthoradiales  $\sigma_{\theta\theta}$  mais aussi aux contraintes axiales  $\sigma_{zz}$ . La découpe du tube suivant sa génératrice ne donnant accès qu'à une seule valeur, nous considérerons l'effet des contraintes  $\sigma_{zz}$  négligeables ce qui est justifiée par la longueur des tubes.

Avant découpe, la résultante des contraintes  $\sigma_{\theta\theta}$  est nulle mais pas le moment résultant de ces contraintes, nous nommons ci dessous ces contraintes  $\sigma_{\theta\theta(\text{avant.découpe})}$ . (2.4).

$$\int \sigma_{\theta\theta(\text{avant.découpe})} \cdot dr = 0 \text{ Résultante nulle} \quad (2.4)$$

$$\int r \sigma_{\theta\theta(\text{avant.découpe})} \cdot dr \neq 0 \text{ Moment non nul}$$

Au moment de la découpe le tube va s'ouvrir ou se fermer sous l'action du moment induit par les contraintes nommées  $\sigma_{\theta\theta(\text{relaxée})}$ . La relation (2.5) reliant les contraintes  $\sigma_{\theta\theta(\text{relaxée})}$  à l'ouverture du tube est donnée par [Timoshenko, 1959 #61]. Pour les tubes de faible épaisseur, le profil de contrainte correspondant à une petite ouverture est quasiment linéaire.

$$\sigma_{\theta\theta(\text{relaxée})} = \frac{E.\Delta D}{(1-\nu^2)D} \cdot \frac{z' + \frac{\delta^2}{6D}}{z' + \frac{D}{2}} \approx \frac{2.E.\Delta D.z'}{(1-\nu^2).D^2} \quad (2.5)$$

$D$  Diamètre ;  $\Delta D$  variation du diamètre ;  $z'$  position dans l'épaisseur par rapport à la ligne moyenne ;  $\delta$  épaisseur du tube.

L'ouverture du tube se fait par un calcul en petites déformation mais en grand déplacement. Lorsque le tube se referme de 180°, cela correspond à une variation du diamètre de 50mm à 33mm. Afin de conserver la relation (2.5) qui n'est valable qu'en petit déplacement, la détermination du profil des contraintes à partir de l'angle d'ouverture (ou vice-versa) est effectué par un programme incrémental prenant en compte à chaque pas la variation du diamètre. Dans les applications qui suivent la variation du diamètre entre deux pas est au maximum de 10<sup>-4</sup>mm avec un raffinement lorsqu'on se rapproche de la solution jusqu'à 10<sup>-6</sup>mm.

Après ouverture, les contraintes  $\sigma_{\theta\theta}$  se sont équilibrées (conditions (2.6)). Les contraintes ne se sont cependant pas annulées et il reste un gradient de contraintes qui a une résultante et un moment nuls, ces contraintes sont nommées ici  $\sigma_{\theta\theta(\text{après.découpe})}$ .

$$\int \sigma_{\theta\theta(\text{après.découpe})} . dr = 0; \int r \sigma_{\theta\theta(\text{après.découpe})} . dr = 0 \quad (2.6)$$

$$\sigma_{\theta\theta(\text{avant.découpe})} = \sigma_{\theta\theta(\text{après.découpe})} + \sigma_{\theta\theta(\text{relaxée})} \quad (2.7)$$

Les angle d'ouverture des tubes de la Figure 2.16 (a) correspondent aux profils de contraintes de la Figure 2.16 (b). Nous notons que le profil des contraintes  $\sigma_{\theta\theta(\text{relaxée})}$  s'inverse lorsque la dépression passe de 160 à 200 mbar.

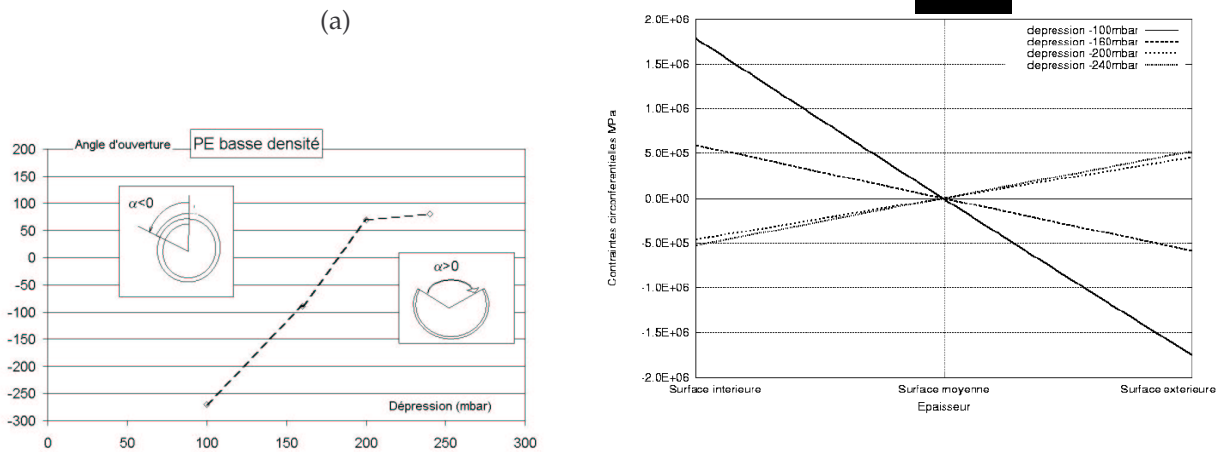


Figure 2.16 : ouverture du tube et profils de contraintes correspondant suivant la dépression dans le conformateur (Polyéthylène basse densité radicalaire)

Le calcul de l'angle d'ouverture ne prend pas en compte l'influence des forces axiales. Dans le cas des faibles déformations et déplacements, cette influence peut être obtenue analytiquement [Timoshenko, 1959 #61]. Ne respectant pas ces conditions, la prise en compte des contraintes axiales nécessite d'utiliser des codes par éléments finis pour effectuer un calcul de retour élastique. Le calcul étant relativement lourd, nous avons préféré utiliser la détermination analytique ne prenant en compte que les contraintes orthoradiales.

### 3.3 Tubes multicouches

Les méthodes de caractérisation décrites ci dessus ne permettent pas d'évaluer le profil de contrainte dans l'épaisseur. Des tentatives d'usinage des couches ont été effectuées afin de reproduire les essais de Treuting et Read, mais les perturbations dues à l'usinage étaient prépondérantes par rapport aux contraintes résiduelles.

Afin d'effectuer une opération équivalente, nous avons mis au point une méthode permettant d'effectuer du pelage de couche sans découpe, ni usinage. Nous avons utilisé une filière multicouche permettant de coextruder des tubes bicouches polyéthylène / polypropylène. Ces deux matériaux ont des propriétés d'adhésion suffisamment faibles pour pouvoir être séparés et suffisamment fortes pour qu'il n'y ait pas de décohésion lors de l'extrusion (pour rester dans les mêmes conditions cinématiques).

Les profils de contraintes sont certes modifiés puisque les propriétés du polypropylène ne sont pas identiques à celles du polyéthylène (caractéristiques mécaniques, variation du volume spécifique, ...). Néanmoins, le grade de polypropylène choisi étant normalement extrudé dans des conditions proches du polyéthylène basse densité radicalaire, cette méthode permet d'obtenir une première évaluation du profil des contraintes résiduelles.

La filière utilisée permet de modifier les épaisseurs des couches de chaque matériau. Les configurations et les résultats sont reportés dans le Tableau 1

Couche extérieure (mm)	Couche intérieure (mm)	Dépression conformateur (mbar)	Diamètre avant pelage.	Diamètre couche extérieure	Diamètre couche intérieure
PEbd / 0,25	PP / 0,25	150	32,5	40	-29
PEbd / 0,25	PP / 0,25	220	37,5	50	-30
PEbd / 0,25	PP / 0,25	285	42,5	(mise à plat et enroulement zz)	-29
PP / 0,25	PEbd / 0,25	150	32	34	-31
PP / 0,25	PEbd / 0,25	220	33	38	-30
PP / 0,25	PEbd / 0,25	285	36	39	-31

Tableau 1 : Pelage de tubes multicouches – Essai à 9m/min, diamètre des tubes 35mm

Ces essais ne permettent pas, une fois de plus, de tracer le profil de contrainte dans toute l'épaisseur et ne fournissent donc qu'une information qualitative du profil de contraintes. Le principal résultat que nous pouvons en déduire est que le profil de contrainte des couches intérieures n'est pas dépendant de la dépression dans le conformateur. La dépression n'affecte les contraintes que dans les couches extérieures.

### 3.4 Essais de biréfringence

Le profil de biréfringence a été étudié afin d'obtenir la répartition des contraintes dans l'épaisseur sans devoir effectuer les techniques de pelage décrites ci-dessus qui se révèlent très délicates pour les tubes de faible épaisseur.

La différence de marche est proportionnelle à l'épaisseur du matériau. Afin de pouvoir visualiser les phénomènes d'interférence, il est nécessaire d'avoir un échantillon d'assez faible épaisseur pour limiter le nombre de franges. Cette épaisseur a été déterminée par différents essais à environ 0,5 mm. La Figure 2.17 (a) montre l'influence de la coupe sur les bords de l'échantillon. Il s'agit d'une photo de biréfringence réalisée à travers l'épaisseur du tube suivant r, nous observons le plan  $\theta$ -z. La découpe introduit une

perturbation sur la surface de coupe, néanmoins celle-ci est faible et un polissage ne permettrait pas d'obtenir de meilleurs résultats.

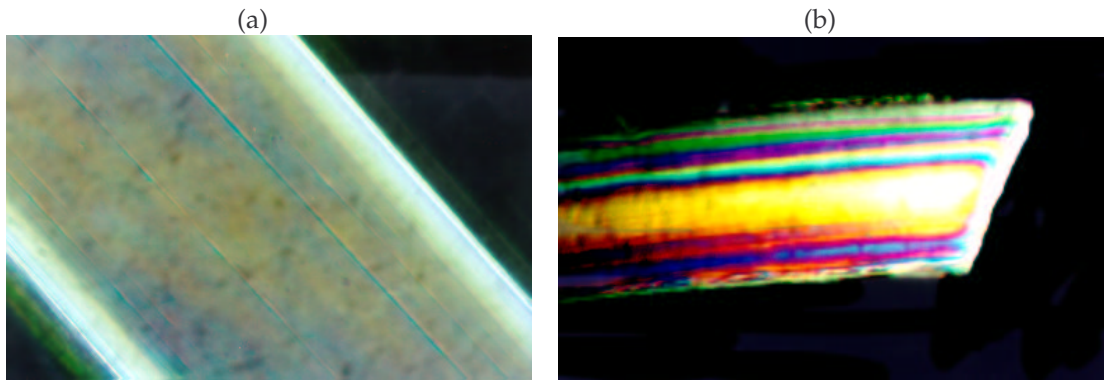


Figure 2.17 : influence de la coupe (plan  $\theta z$ ) et stabilités des franges proche de la section (plan  $\theta r$ )

La Figure 2.17 (b) représente l'évolution des lignes de biréfringence près d'une découpe suivant la génératrice du tube. La faible épaisseur des lamelles utilisées devrait entraîner l'annulation des contraintes dans la zone près de la coupe. Cependant l'évolution représentée Figure 2.17 (b) ne permet pas de trancher entre contrainte et orientation sur l'origine de la biréfringence car la zone où les contraintes semblent évoluer est également perturbée par la coupe.

Influence de la dépression dans le conformateur sur l'orientation : les photos suivantes (Figure 2.18) sont prises dans le plan  $r-\theta$  pour des tubes mis en œuvre dans les mêmes conditions excepté la pression dans le conformateur. Comme cela a été observé lors de l'ouverture des tubes suivant la génératrice, la valeur et la répartition des contraintes internes sont très sensibles à ce paramètre. L'épaisseur des échantillons étant identique plus le nombre de franges est élevé, plus les chaînes sont orientées ou plus les contraintes sont importantes.

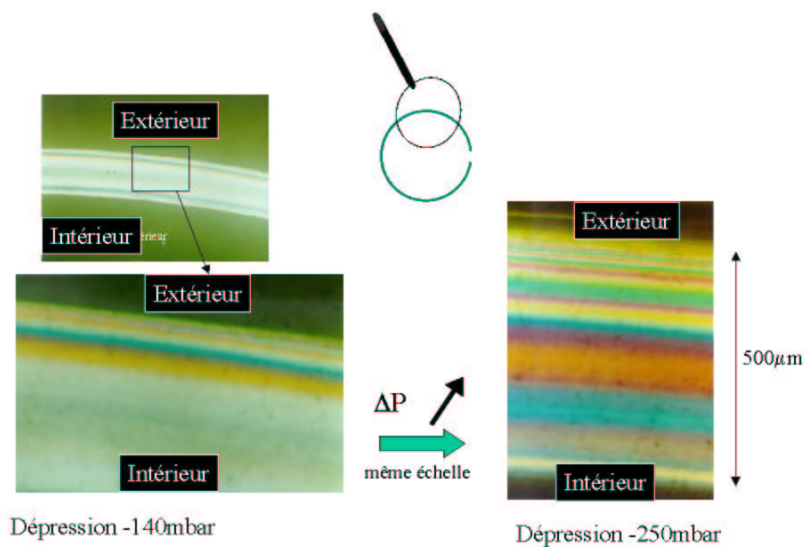


Figure 2.18 : influence de la dépression sur les résultats obtenus par biréfringence

Nous constatons une variation importante du nombre de franges en fonction de la dépression. Dans les conditions normales de fabrication, seule une fine couche extérieure

présente une variation de l'orientation de quelques franges. Par contre, une biréfringence plus importante apparaît sur la moitié extérieure du tube lorsqu'on augmente la dépression dans le conformateur. Le gradient de biréfringence est réparti sur toute l'épaisseur, mais les franges sont plus resserrées dans les couches extérieures.

### 3.5 Caractérisation de l'orientation par rayons X

Une analyse aux rayons X dans le plan  $\theta$ -z a également été menée afin d'observer l'orientation des plans cristallographiques. Celle-ci confirme le phénomène d'orientation dans la direction d'étirage Figure 2.19 mais la réponse est insuffisante pour confirmer une relation avec la dépression du conformateur. De plus le résultat obtenu est une moyenne dans l'épaisseur.

On observe un renforcement de la raie 110 perpendiculairement à la direction d'étirage (horizontale) et un renforcement de la raie 200 selon cette direction

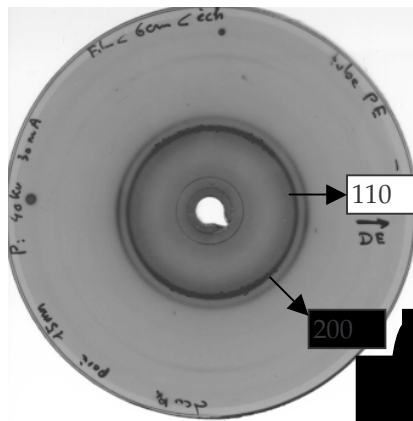


Figure 2.19 : caractérisation de l'orientation par diffraction des rayons X

### 3.6 Essais sur le polyéthylène basse densité linéaire

Les caractéristiques mécaniques des polyéthylènes sont dépendantes de la vitesse de sollicitation. Or, il était curieux de n'observer aucune influence de la vitesse d'étirage sur les contraintes résiduelles pour les matériaux étudiés jusqu'à présent (PEbd Hostalen FB3010 et PEhd Lacqtène GF 4750).

Les PEbd linéaires ont mis ces observations en défaut. A partir d'une certaine vitesse d'étirage on observe le défaut de « tulipe » sur les tubes passés à l'étuve (80°C pendant 10min.). Ce défaut va en s'accroissant lorsque la vitesse d'étirage augmente. La vitesse d'étirage critique dépend du PEbd utilisé : (Escorène Y1004-Y1002 ~ 12m/min ; Dow-Flexirène ~15 m/min).

Ce défaut peut être dû à un profil variable des contraintes ou de l'orientation axiale dans l'épaisseur du tube. Nous notons aussi que la « tulipe » n'apparaît qu'après passage en étuve. En réchauffant le tube, celui-ci va se déformer sous l'influence des contraintes ou orientations figées en voulant revenir à l'équilibre. Mais, à cause de la rigidité du tube la déformation ne va pouvoir avoir lieu qu'aux extrémités.

Afin de pouvoir vérifier ces hypothèses et d'essayer de prédire ce défaut nous avons réalisé :

- des observations du profil de biréfringence. Ceci permet de déterminer le profil des contraintes ou de l'orientation.

- mesure en fonction de la température du retrait dû à l'orientation figée.
- la mesure des modules de relaxation en rhéométrie plan-plan des différents polyéthylènes.

### 3.6.1 Détermination de l'orientation par biréfringence

La détermination du profil de biréfringence a été réalisée sous microscope en lumière polarisée en utilisant un compensateur de type B (Berek). Les échantillons, des lamelles de 25  $\mu\text{m}$ , ont été prélevées par coupe au microtome sur les tubes extrudés.

Les profils sont représentatifs de l'orientation ou des contraintes dans la direction axiale du tube. Les résultats ont été obtenus pour différentes vitesses d'étirage, inférieure et supérieure à l'apparition du défaut de « tulipe ».

Les profils de biréfringence obtenus sont reportés sur la Figure 2.20. Les valeurs moyennes de biréfringence obtenues sont importantes et représentatives d'un matériau orienté.

Pour les deux vitesses d'étirage, nous notons une augmentation de la biréfringence dans les couches près de la surface extérieure. Lorsque la vitesse d'étirage augmente la biréfringence augmente significativement dans les couches près de l'extérieur sur 25% de l'épaisseur et atteint des valeurs importantes en peau. Ces couches sont les premières à refroidir dans le conformateur, c'est donc dans celles-ci que va se « concentrer » la force d'étirage. Ces couches sont suffisamment orientées pour expliquer une déformation des extrémités lors du passage en étuve.

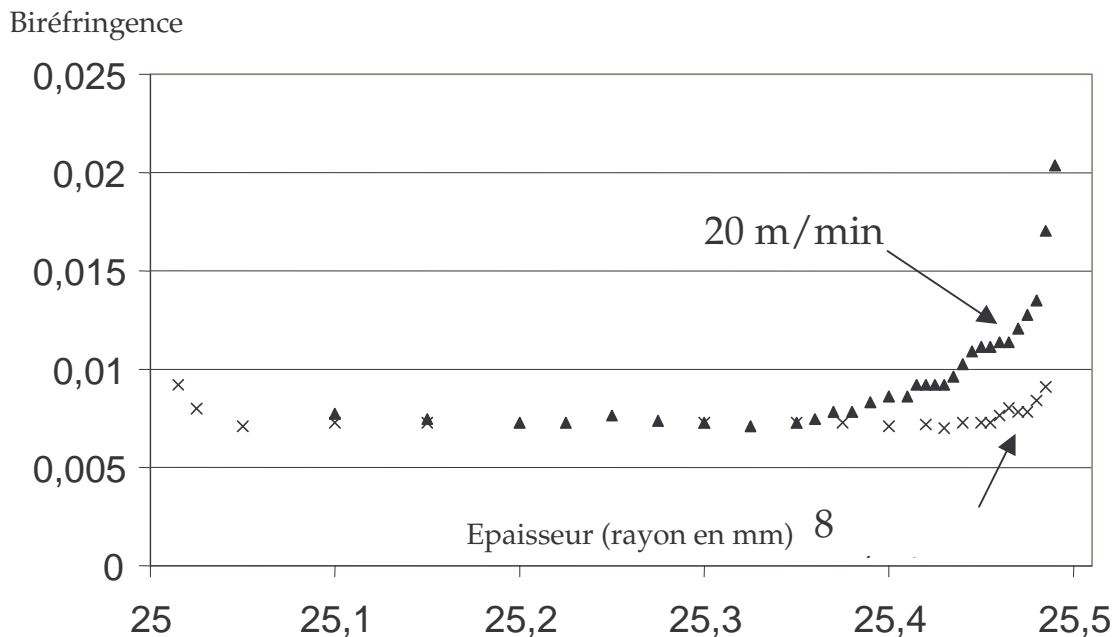


Figure 2.20 : profil de biréfringence dans l'épaisseur pour deux vitesses d'étirage(8 et 20m/min) ; Escorène Y1002

Les essais de biréfringence ont également été menés pour comparer

a) Deux PEbd linéaires : Escorène Y1002 et un produit Dow à 20m/min. Les résultats sur les deux matériaux sont identiques aux courbes de la Figure 2.20.



b) L'évolution de la biréfringence avant et après passage à l'étuve sur des échantillons prélevés au milieu du tube. On ne note pas d'évolution significative de la biréfringence lors du passage en étuve. Effectivement, si nous coupons un tube passé en étuve en son milieu nous n'observons pas de formation de « tulipe » sur les bords. Pendant l'étuvage seul, les bords extrêmes sont affectés. Cette observation tend à montrer que la biréfringence est due à l'orientation du matériau et non aux contraintes internes qui elles se seraient relaxées dans l'étuve.

c) Etude dans une platine chauffante. Aucune évolution de la biréfringence n'a été observée jusqu'à 85°C. La biréfringence est due à l'orientation.

d) Des essais de biréfringence ont aussi été menés dans d'autres plans afin d'observer les contraintes ou l'orientation dans les autres directions. Aucun gradient n'a alors été observé, ceci confirme une orientation dans le sens axial du tube.

Les parties b) et c) montrent qu'un réchauffage du tube en sortie de calibre comme cela se fait sur les calibreurs à film d'eau ne devrait pas éliminer ce défaut. De plus, ce système n'est utilisé que lors de faibles vitesses d'étirage alors qu'ici le problème intervient à vitesse d'étirage assez élevée.

### 3.6.2 Détermination du retrait dû à l'orientation figée

Des essais initialement prévus pour déterminer la rhéologie en extension des polymères nous ont permis de réaliser des fils avec différentes forces d'étirage. A la sortie d'un rhéomètre capillaire le fil passe dans une poulie et est ensuite enroulé à vitesse constante. En modifiant la vitesse, nous modifions la force d'étirage que nous pouvons évaluer en déterminant la force de réaction de la poulie.

Nous avons ensuite placée les fils dans de l'huile silicone et mis en étuve à différentes températures pendant 1 heure afin de quantifier leur retrait. De part la fabrication des fils, le retrait que nous mesurons est essentiellement dû à l'orientation figée lors de la cristallisation.

Nous constatons Figure 2.21 que la rétraction du fil est fortement dépendante de la température de réchauffage à partir de 80°C mais aussi de la force d'étirage initiale. L'orientation que nous avons observée dans les couches extérieures est certainement due à une force d'étirage axiale plus importante dans ces couches lors de la solidification (voir ci dessous le lien avec les propriétés mécaniques et l'interprétation : paragraphe 2.3 et 2.4). Donc lors du passage en étuve, ces couches veulent se rétracter davantage que le reste du tube ce qui peut former le défaut de « tulipe » sur les bords libres.

Une diminution de 10°C de la température d'étuvage (70°C au lieu de 80°C) pourrait certainement atténuer, voir supprimer, le défaut.

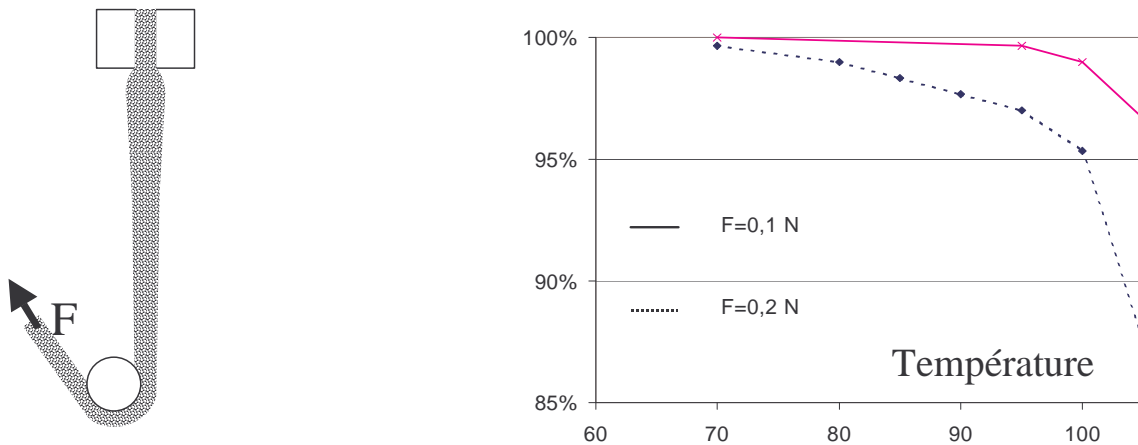


Figure 2.21 : détermination expérimentale de l'orientation figée

### 3.6.3 Propriétés mécaniques

Afin d'expliquer la présence de ce défaut uniquement pour les PEbd linéaires et à partir d'une vitesse dépendant du polymère, nous avons réalisé une caractérisation rhéologique en cisaillement des différents matériaux à l'état fluide (c'est-à-dire au dessus de la température de fusion).

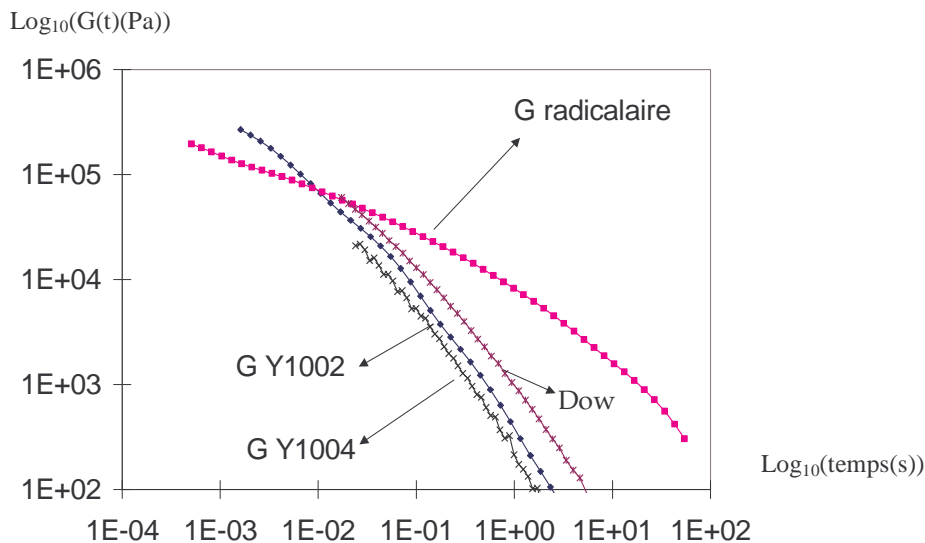


Figure 2.22 : évolution de  $G(t)$  des différents PEbd étudiés. ( $T_{référence} = 190^{\circ}C$ )

Après avoir effectué le traitement de superposition temps-température (décrit au 3<sup>ème</sup> chapitre), nous avons obtenu pour les PEbd testés en extrusion les modules  $G(t)$  décrits Figure 2.22. Les PEbd linéaires présentent des temps de relaxation beaucoup plus faibles que les radicalaires, ce qui pourrait expliquer la différence de comportement.

La vitesse de relaxation des contraintes est directement liée à la vitesse critique à laquelle le défaut de tulipe apparaît. Plus les contraintes se relaxent rapidement plus lente est la vitesse d'étirage critique. Pour pouvoir extruder des tubes à vitesse élevée il faudrait des PEbd linéaires ayant des temps de relaxation plus grands, compris entre ceux du Dow et du PEbd radicalaire.

Remarque : ces résultats montrent que si on applique instantanément une force de 10N (~1kg) à une barre en PEbd radicalaire à 190°C, 1 seconde plus tard elle ne vaut plus que 1N(~100g). Si on fait le même essai avec un PEbd linéaire du type Y1002, au bout d'1 seconde la force ne vaut plus 0,05N(~5g).

### 3.6.4 Interprétation

Afin de mieux comprendre la formation des contraintes résiduelles axiales il est plus simple de se reporter à l'étirage d'une barre composée de deux matériaux. Ce modèle approximatif permet de comprendre la répartition des contraintes entre les couches ayant déjà cristallisé et les couches à l'état fluide.

- Le premier matériau « solide » correspond à la couche externe du tube qui a commencé à se solidifier au contact du conformateur mais dans lequel les contraintes se relaxent encore, car il est à haute température.
- La partie « fluide » correspond aux couches intérieures du polymère ne s'étant pas encore refroidies. Les propriétés mécaniques sont celles décrites dans la 2<sup>ème</sup> partie.

Lorsque l'on étire la barre, les contraintes se répartissent entre les deux matériaux et on comprend alors que si le matériau fluide peut moins « stocker » les contraintes (si les contraintes se relaxent plus vite) celles-ci vont se concentrer dans la partie solide. La différence de comportement entre les PEbd linéaires et radicalaires peut expliquer la différence de sensibilité à la vitesse d'étirage. Dans le PEbd linéaire les contraintes ne se fixent que dans la partie déjà solidifiée entraînant une orientation (ou une accumulation des contraintes) dans la couche externe, alors que pour les radicalaires les contraintes sont plus réparties.

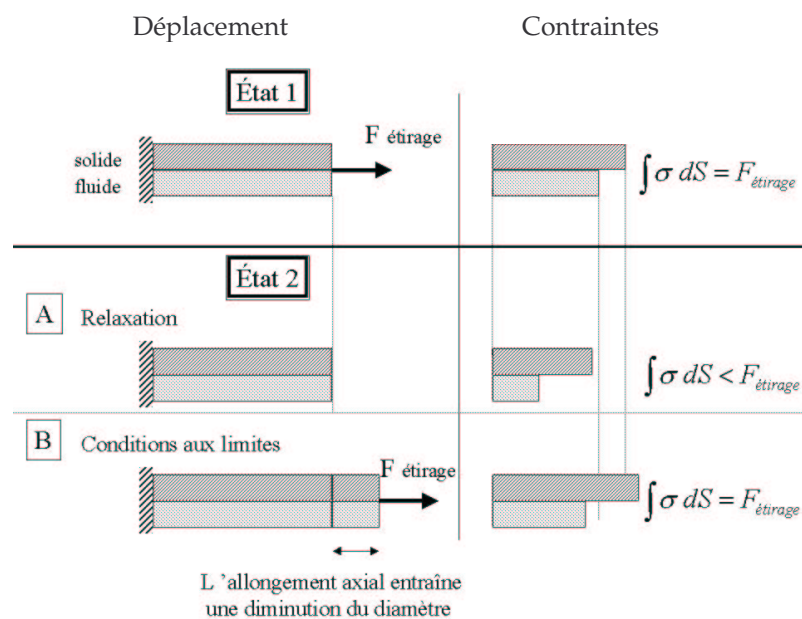


Figure 2.23 : étirage d'une barre composée de 2 matériaux ayant des temps de relaxation différents

Les résultats ci-dessus permettent de comprendre pourquoi le défaut de tulipe apparaît plus facilement sur les PEbd linéaires. La sensibilité à la vitesse doit être due à l'augmentation de la force d'étirage lorsque l'on augmente la vitesse. Les premiers résultats obtenus Figure 2.21 pour le retrait dû à l'orientation figé indiquent que celui-ci est fortement dépendant de la force d'étirage. L'orientation figée que nous constatons sur le produit final est due à la répartition des contraintes lors de la solidification.

L'augmentation de la force d'étirage peut être due d'une part à la réaction du matériau, mais aussi à une augmentation des forces de frottement avec la chambre de calibrage alors que solidification n'est pas assez avancée.

## 4 Mesures en ligne

Afin de pouvoir caler les résultats du modèle par rapport au procédé et de juger de l'influence de certains paramètres, nous avons été amené à mesurer au cours de l'extrusion l'évolution de la température du tube, des forces de frottement dans la chambre de calibrage et de la vitesse dans la zone d'étirage entre la filière et le conformateur.

### 4.1 Mesure de la température

L'utilisation d'une filière avec renvoi à 90° permet d'insérer à l'intérieur du tube le montage représenté Figure 2.24. Un thermocouple est brasé sur le bout d'une lame ressort montée au bout d'une rallonge. Deux câbles fins permettent de fléchir la lame ressort afin de garantir le contact entre le thermocouple et le tube.

La température n'a pu être mesurée que sur la surface intérieure. La surface extérieure n'est accessible que dans la zone d'étirage où le tube se refroidit peu. Les températures ne pouvant pas être mesurées dans l'épaisseur, nous avons réalisé les expériences pour trois épaisseurs (0.42mm, 0.62mm et 0.90mm) afin de caler les coefficients du modèle thermique. Les résultats obtenus pour les deux matériaux sont reportés Figure 2.25 : un tube de 0,5mm (~0,45mm) extrudé à 6m/min est déjà complètement refroidi à la fin de la chambre de calibrage (60cm).

La modification de pente (Figure 2.25) constatée à environ 90°C pour le PEbd et à 110°C pour le PEhd correspond à la chaleur dégagée par la cristallisation. L'influence de sa prise en compte est obtenue par la modélisation du refroidissement détaillée au 4<sup>ème</sup> chapitre. Les résultats sont représentés Figure 2.26 ce qui permet de confirmer que la prise en compte de la cristallisation est du premier ordre pour déterminer précisément l'évolution des températures lors du refroidissement.

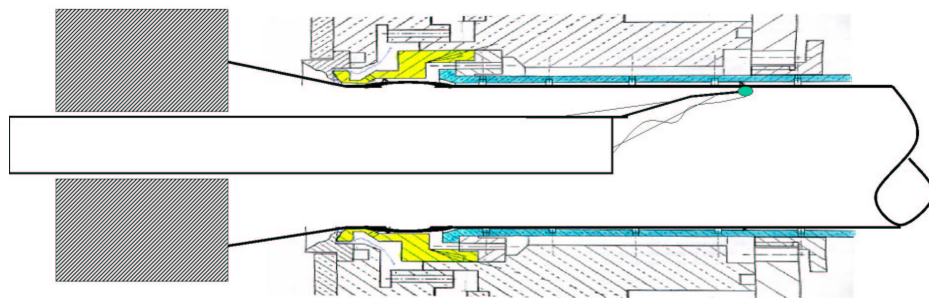


Figure 2.24 : dispositif expérimental de mesure de la température

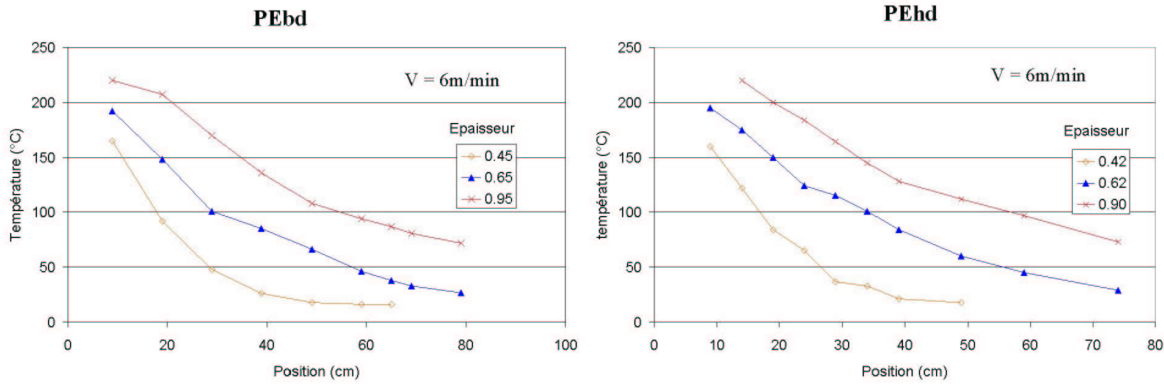


Figure 2.25 : mesures expérimentales de la température

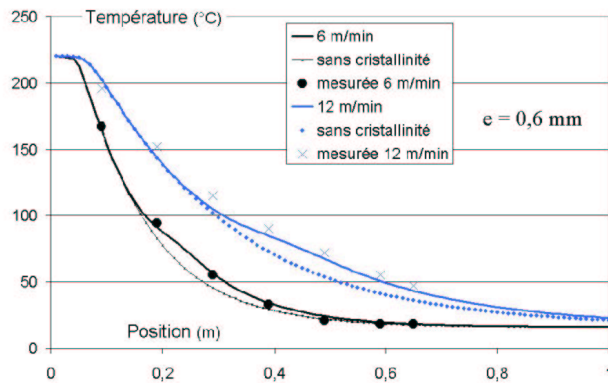


Figure 2.26 : mesures expérimentales de la température comparées à des modélisations avec ou sans cristallisation

## 4.2 Les forces d'étirage et de frottement

### Force d'étirage dans l'air

L'ordre de grandeur de la force d'étirage dans l'air a été obtenu en plaçant un dynamomètre lors du démarrage de la ligne. Cette mesure a été effectuée en n'appliquant pas de dépression dans le conformateur afin de ne pas induire des forces de frottement. La force d'étirage dans l'air est d'environ 10N.

### Force de frottement entre le tube et la chambre de calibrage

Le dispositif de montage de la chambre de calibrage permet un jeu d'environ 5mm dans la direction d'extrusion. La force de frottement peut donc être mesurée en positionnant la chambre en position arrière et en installant une jauge d'effort (plaque isoflexion équipée d'une jauge de déformation) entre le bâti et la chambre de calibrage. La jauge d'effort fabriquée spécialement pour cette mesure a été étalonnée en suspendant des masses à son extrémité.

Les mesures ont été effectuées sur les deux matériaux en faisant varier les paramètres du procédé (vitesse (de 6 à 9m/min), dépression, température de l'eau (15°/20°C)). Les résultats avec des chambres de calibrage de 160 et 300mm sont reportés Figure 2.28 en fonction de la dépression.

Pour le polyéthylène basse densité radicalaire, les frottements sont faibles et indépendants de la dépression si celle-ci est inférieure à 120 mbar. Puis elle évolue linéairement pour atteindre environ 50N à 170 mbar pour une chambre de calibrage de 300mm de long.

De part l'évolution du contact entre la surface extérieure du tube et la chambre de calibrage que nous avons décrit au 1<sup>er</sup> chapitre paragraphe 3, l'essentiel des frottements doivent avoir lieu au début de la chambre de calibrage. Si la chambre de calibrage est constitué en 2 parties (Figure 2.27), le tube ne frotte que sur la 1<sup>ère</sup> chambre de calibrage pour les faibles dépressions. Lorsque la dépression dans le conformateur augmente le tube frotte également sur la deuxième chambre de calibrage. Donc en utilisant 2 chambres de calibrage de longueur différentes, nous espérons trouver la dépression dans le conformateur à partir de laquelle le tube commence à frotter contre la deuxième chambre de calibrage. Ainsi en utilisant un jeu de chambre de longueur croissante, nous aurions pu déterminer précisément l'évolution des forces de frottement en fonction de la position dans le conformateur et de la dépression.

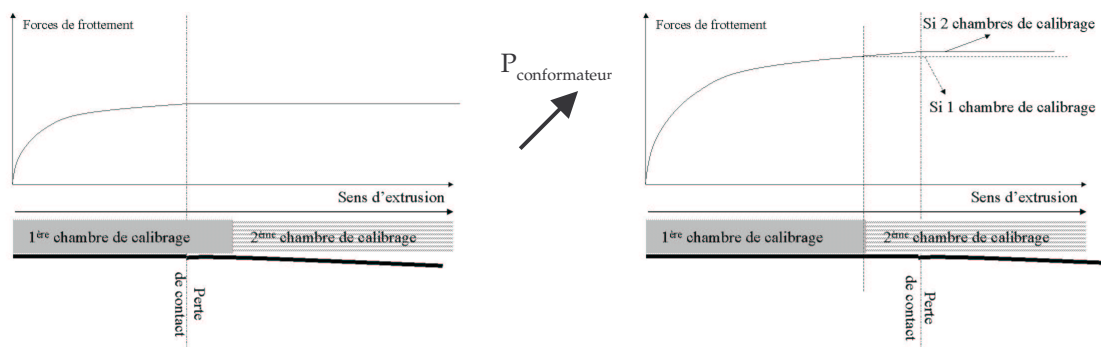


Figure 2.27 : zone de contact entre le tube et la chambre de calibrage et évolution envisagée des forces de frottement

Seulement nous constatons expérimentalement Figure 2.28 que la progression n'est pas continue entre les chambres de 160 et 300mm (courbe 160\_15m/min\_6°C et 300\_15m/min\_6°C).. Cette observation peut être due à

- le rayon de la chambre de 160mm était légèrement plus grand (>0,1mm).
- Lorsque le tube n'est plus en contact le refroidissement est moins efficace et le tube peut revenir en contact Dans ce cas les frottements sont répartis sur une portion supplémentaire de la chambre de calibrage.
- Le tube gonfle dans la zone avant la chambre de calibrage et à l'entrée de la zone de calibrage le diamètre du tube est supérieur à celui de la chambre.

L'évolution est similaire pour le polyéthylène haute densité. Les frottements sont quasiment nuls pour des dépressions inférieures à environ 180mbar et atteignent 70N pour des dépressions de 300mbar.

Pour les deux matériaux, les forces de frottement ne commencent à croître qu'à partir d'une dépression critique. En dessous, la diminution du diamètre due à l'étirage axial ne peut vraisemblablement pas être compensée par la dépression. La force de frottement est actuellement la seule grandeur du procédé qui soit aussi sensible aux paramètres de mise en œuvre : température de l'eau et vitesse d'extrusion.. Elle peut être une grandeur permettant de suivre l'évolution du procédé, surtout que nous verrons lors de la modélisation qu'elle a une forte influence dans la formation des contraintes résiduelles.

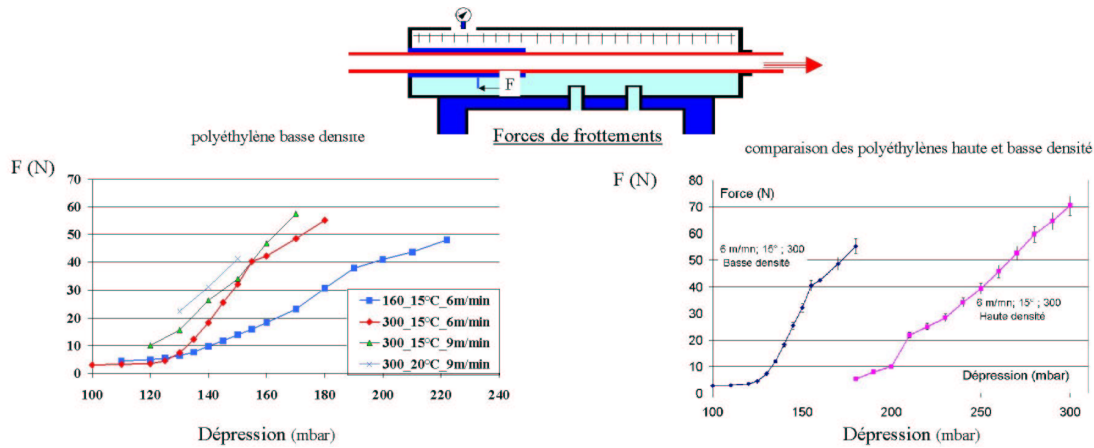


Figure 2.28 : forces de frottements en fonction de la dépression pour deux longueurs de chambre de calibrage

### 4.3 Mesure du profil de vitesse

La mesure du profil de vitesse dans la zone d'étirage peut permettre de caler les paramètres d'un modèle mécanique évaluant les vitesses de déformation et l'évolution des contraintes. Les valeurs des vitesses aux extrémités sont imposées par le procédé et l'évolution dans cette zone dépend de l'histoire thermo - mécanique du matériau dans la filière et de ses caractéristiques mécaniques. Dans cette étude, la modélisation de cette zone permet d'initialiser la répartition des contraintes si la loi de comportement du matériau est décrite par une loi viscoélastique.

En filmant un tube légèrement chargé en paillettes (Figure 2.29), nous pouvons décomposer les images et déterminer la position en fonction du temps d'un point matériel. Cette information permet de déduire ensuite le profil de vitesse tel que reporté Figure 2.29 pour une vitesse imposée en sortie de 6m/min. Le profil de vitesse est quasiment constante dans le premier tiers de la zone étirage et évolue ensuite de manière linéaire.

L'utilisation d'une caméra ultra - rapide permettrait d'obtenir des informations relativement précises. Cette expérience complète les essais de rhéologie en extension comme le Rheotens en prenant en compte la véritable histoire thermo - mécanique du matériau. Ces mesures ne seront pas exploitées dans la suite, la modélisation de cette zone n'ayant pas été effectuées dans le cadre des grandes déformations.

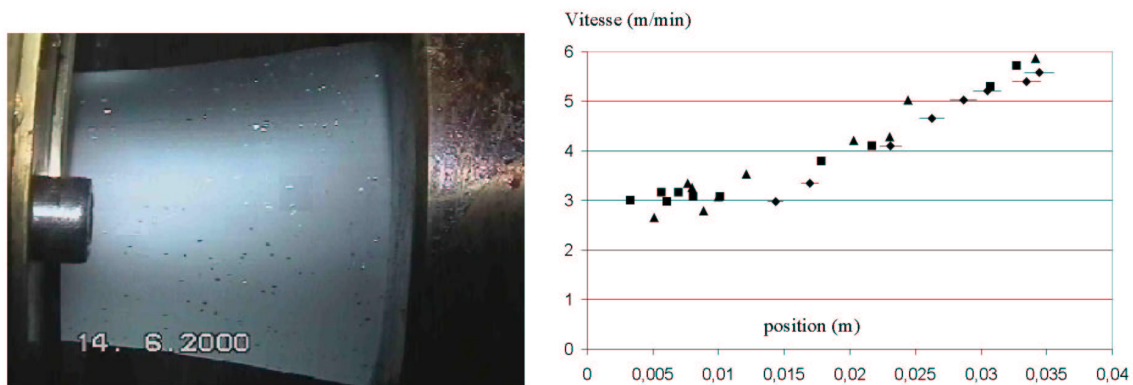


Figure 2.29 : mesure du profil de vitesse entre la filière et le conformateur



## 5 Conclusion

---

La mesure de l'angle d'ouverture des tubes lors de la découpe suivant une génératrice reste la méthode la plus appropriée pour quantifier le profil moyen des contraintes résiduelles. Le retour élastique, dû à l'annulation du moment de flexion, se traduit par des grands déplacements du tube variant sensiblement en fonction de la dépression dans le conformateur. Ces larges variations obtenues expérimentalement permettent une quantification précise du profil moyen.

Ces informations ne permettent cependant pas de remonter au profil complet des contraintes résiduelles. L'extrusion de tube multicouche pouvant se décoller et les essais de biréfringence donnent pour l'instant des résultats qualitatifs. Les premières expériences mettent en évidence que la dépression a essentiellement une influence sur le niveau des contraintes des couches extérieures et n'affecte pas les couches intérieures.

Les résultats décrits dans ce chapitre montrent que l'analyse des mécanismes de formation des contraintes résiduelles sera sensible aux paramètres du procédé et aux caractéristiques du matériau :

- Procédé. L'influence du procédé est évidente par les réponses que nous avons obtenues aux variations de la dépression. Celle-ci a une influence de part les déformations orthoradiales,  $\epsilon_{\theta\theta}$ , c'est à dire le gonflement du tube. Mais aussi indirectement sur les déformations longitudinales via les forces de frottement qui se révèlent non négligeables.
- Matériau. Les mécanismes de formation des contraintes du 1<sup>er</sup> chapitre ont montré l'influence de la variation du volume spécifique et de la température de transition liquide solide. Donc implicitement des cinétiques de cristallisation, dont nous retrouvons l'influence également sur l'évolution de la température. Les différences de résultats obtenus sur l'ouverture des tubes en polyéthylène haute et basse densité mettent en avant l'influence de la rigidité du matériau. La relaxation des contraintes et les résultats obtenus avec les polyéthylènes basse densité linéaire montrent que les caractéristiques viscoélastiques du matériau fluide et semi-cristallin peuvent aussi être du premier ordre.

(Anderson et Fahlman, 1924)

R. J. Anderson et E. G. Fahlman, *J. Inst. Metals*, vol. 32, pp. 367-383 (1924).

(Beech et al., 1978)

S. H. Beech, C. Burley et H. C. Bunn, "Residual stress in large diameter MDPE water pipe", *Plastics pipes VII*, Université de Bath (U.K.) (1978).

(Boot et Guan, 1991)

J. C. Boot et Z. W. Guan, "The measurement of residual strain in plastic pipe", *Plastics, Rubber and composites processing and applications*, vol. 16, pp. 123-125 (1991).

(Broutman et Krishnakumar, 1976)

L. J. Broutman et S. M. Krishnakumar, "Impact Strength of Polymers :1. The effect of thermal treatment and residual stress", *Polymer Engineering and Science*, pp. 74-81 (1976).

(Clutton et Williams, 1995)

E. Q. Clutton et J. G. Williams, "On the measurement of residual plastic Pipes", *Polymer Engineering and Science*, vol. 35, pp. 1381-1386 (1995).

(Hatfield et Thirkell, 1919)

W. H. Hatfield et G. L. Thirkell, *J. Inst. Metals*, vol. 22, pp. 67-126 (1919).

(Manson et al., 1998)

J. A. Manson, L. Boogh et P. Sunderland, "Tailoring and characterisation of residual stresses induced during processing of heterogeneous materials", *ESAFORM 98* (1998).

(Sachs et Espey, 1942)

G. Sachs et G. Espey, "A new method for determination of stress distribution in thin-walled tubing", *Trans. AIME*, vol. 147, pp. 348-360 (1942).

(Saffel et Windle, 1980)

J. R. Saffel et A. H. Windle, "The influence of thermal history on internal stress-Distribution in sheets of PMMA and Polycarbonate", *Journal of Applied Polymer Science*, vol. 25, pp. 1117-1129 (1980).

(Timoshenko et Woinowsky-Krieger, 1959)

S. P. Timoshenko et S. Woinowsky-Krieger, *Theory of plates and shells*, Mc Graw-Hill, N.Y. (1959).

(Treuting et Read, 1951)

R. G. Treuting et W. T. Read, "A mechanical determination of biaxial residual stress in sheet materials", *Journal of applied physics*, vol. 22, pp. 130-134 (1951).

(Williams et al., 1991)

J. G. Williams, J. M. Hodgkinson et A. Gray, "The determination of residual stresses in plastic pipe and their role in fracture", *Polymer Engineering and Science*, vol. 21, pp. 822-828 (1991).

<b>CHAPITRE 3 - CARACTERISATION DES MATERIAUX .....</b>	<b>71</b>
1 CRISTALLINITE .....	72
1.1 Evolution de la phase cristalline lors du refroidissement .....	72
1.2 Modélisation de la cristallisation .....	73
1.3 Résultats expérimentaux .....	74
2 VARIATION DU VOLUME SPECIFIQUE .....	77
2.1 Evolution expérimentale du volume spécifique .....	78
2.1.1 Etat fondu .....	78
2.1.2 Etat solide .....	78
2.2 Modélisation de l'évolution du volume spécifique .....	79
3 COMPORTEMENT THERMOMECHANIQUE DES POLYMERES .....	81
3.1 Introduction .....	81
3.2 Caractérisation rhéologique - Bibliographie .....	82
3.2.1 Comportement viscoélastique linéaire .....	82
a) Essai de relaxation .....	82
b) Mesures dynamiques .....	83
c) Modèle Multimode .....	85
Spectre de relaxation .....	85
Spectre de relaxation continu. ....	86
Introduction des éléments paraboliques .....	87
3.2.2 Influence de la température - Superposition temps-température. ....	89
a) Comportement thermo-rhéologiquement simple .....	89
b) Superposition temps - température avec glissement vertical .....	91
c) Thermo-dépendance complexe .....	92
3.3 Comportement viscoélastique des polyéthylènes semi-cristallins .....	93
3.3.1 Mécanismes de relaxation .....	93
a) Relaxation $\gamma$ .....	94
b) Relaxation $\beta$ .....	94
c) Relaxation $\alpha$ .....	94
3.3.2 Influence du taux de cristallinité .....	95
3.3.3 Modélisation du comportement viscoélastique .....	97
a) Modèle basé sur les phénomènes de relaxation .....	97
b) Méthodes d'homogénéisation - Modèles composites .....	98
3.4 Application : Comportement mécanique des polyéthylènes lors du refroidissement : .....	100
3.4.1 Influence du taux de cristallinité .....	100
3.4.2 Comportement mécanique en cisaillement .....	101
a) Comportement viscoélastique linéaire .....	101
b) Choix du mode de superposition temps-température .....	101
c) Détermination des coefficients de glissement .....	103
d) Résultats obtenus : .....	103
e) Détermination du spectre de Maxwell multimode discret .....	105
3.4.3 Etat fluide .....	106
3.4.4 Transition fluide solide .....	108
3.5 Conclusion .....	110



## Chapitre 3 - Caractérisation des matériaux

Les polyéthylènes sont des matériaux semi-cristallins, c'est-à-dire qu'en dessous d'une certaine température, la température de cristallisation, une partie des macromolécules constituant le polymère va s'ordonner en une structure régulière périodique : la structure cristalline. Ainsi, on observe à l'état solide (après cristallisation) la coexistence d'un domaine ordonné cristallin et d'un domaine désordonné amorphe.

Les changements de phase tels que la cristallisation sont des transitions thermodynamiques du premier ordre, ce qui signifie qu'il peut leur être associé :

- Une température de transition, qui sous une pression donnée traduit l'équilibre entre le cristal et le liquide.
- Une chaleur latente (ou enthalpie) de transition. Ainsi, la cristallisation est une réaction exothermique, il y a dégagement de chaleur. La cristallisation du matériau influencera le profil de température dans la pièce lors du refroidissement. Cette propriété est utilisée afin de déterminer l'évolution de la phase cristalline en utilisant les techniques d'analyse calorimétrique différentielle lors du refroidissement.

Le réarrangement des chaînes lors de la cristallisation entraîne une importante variation du volume spécifique. Celle-ci est constatée sur les diagrammes PVT (Pression, Volume, Température) aux températures correspondant à la cristallisation. La variation du volume spécifique étant un des paramètres clé de la formation des contraintes résiduelles, il faudra tenir compte de l'influence du taux de cristallinité sur cette caractéristique (cf. paragraphe 2, Variation du volume spécifique).

Il est enfin à noter que la cristallisation même partielle aura une influence importante sur les caractéristiques mécaniques du matériau. On constatera que la rigidité du matériau est multipliée par un facteur 100 lors de la cristallisation. Le passage de l'état de fluide à l'état de solide sera également basé sur la variation du taux de cristallinité.

Ainsi l'évolution des trois facteurs à l'origine des contraintes résiduelles (le gradient thermique, la variation du volume spécifique et les propriétés mécaniques) sont reliés de manière implicite à l'évolution du taux de cristallinité. La modélisation des caractéristiques au cours du refroidissement sera basée sur l'évolution du taux de cristallinité suivant les lois décrites dans ce chapitre.

## 1 Cristallinité

### 1.1 Evolution de la phase cristalline lors du refroidissement

La proportion de phase cristalline est quantifiée par le taux de cristallinité. Si on suppose que le matériau suit un modèle à deux phases : une seule phase cristalline et une seule phase amorphe, le taux de cristallinité est défini par la relation (3.1), où  $M_c$  et  $M$  sont respectivement la masse de la phase cristalline et de l'échantillon.

$$\chi_c = \frac{M_c}{M} \quad (3.1)$$

La méthode calorimétrique a été préférée pour étudier l'évolution du taux de cristallinité car elle donne directement accès aux températures, mais également aux enthalpies des transformations de phase nécessaires pour prédire l'influence de la cristallisation sur la température lors du refroidissement. La cristallisation a été analysée par calorimétrie différentielle à compensation de puissance (DSC) en condition statique, c'est-à-dire sans prendre en compte l'influence de l'écoulement (cisaillement dans la filière, élongation). Les deux autres techniques les plus fréquemment utilisées pour déterminer le taux de cristallinité sont la diffraction des rayons X et les mesures de densité.

En DSC, on mesure la différence de puissance nécessaire pour imposer la même température à l'échantillon et à un milieu de référence lors d'un programme déterminé de température (isotherme ou chauffage, refroidissement à vitesse constante). La Figure 3.1 représente l'évolution de la différence de puissance en fonction de la température lors de la cristallisation, nous vérifions qu'elle correspond à un changement de phase exothermique.

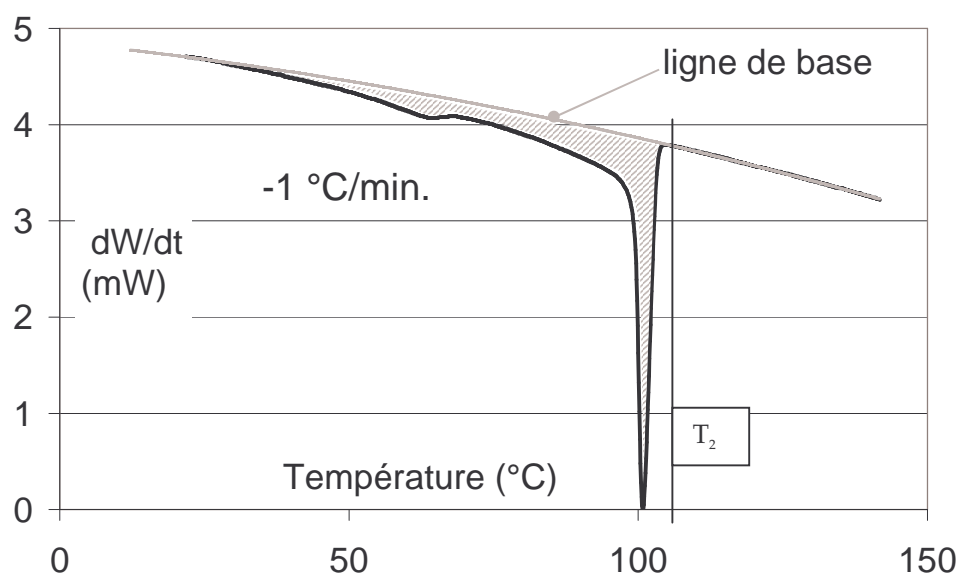


Figure 3.1 : puissance dégagée lors de la cristallisation d'un polyéthylène basse densité radicalaire. Mode anisotherme.

La relation (3.2) donne l'expression de la puissance lorsque l'on travaille à vitesse de refroidissement ou de chauffage constante  $\dot{T}_p$  :

$$\frac{dW}{dt} = \frac{dW}{dT} \dot{T}_p = M \left( c_p(T) + \frac{d\Delta H_t}{dT} \right) \dot{T}_p \quad (3.2)$$

$$\Delta H_t(T) = \frac{1}{M \dot{T}_p} \int_T^{T_2} \frac{dW}{dt} dT - \int_T^{T_2} c_p(T) dT \quad (3.3)$$

( $T_2$ : température de début de cristallisation)

Afin d'obtenir l'enthalpie de cristallisation (3.3), il est nécessaire de soustraire la ligne de base de l'enregistrement. La différence d'enthalpie due à la différence de capacité calorifique entre la référence et l'échantillon est incluse dans la ligne de base. Ensuite l'aire de l'exotherme résultant est égale à l'enthalpie de cristallisation de l'échantillon multipliée par la vitesse de refroidissement  $\dot{T}_p$ .

La variation du taux de cristallinité massique  $\chi_c$  au cours du refroidissement est obtenue par la relation (3.4),  $\Delta H$  et  $\Delta H_c$  étant respectivement les enthalpies massiques de cristallisation de l'échantillon au cours du refroidissement et du matériau 100% cristallin. La valeur de  $\Delta H_c$  pour le polyéthylène est environ égale à 295 J/g.

$$\chi_c(T) = \frac{\Delta H(T)}{\Delta H_c} \quad (3.4)$$

## 1.2 Modélisation de la cristallisation

Les modèles de cristallisation permettent de déterminer la fraction volumique  $\alpha_c$  transformée en entités semi-cristallines telles que les sphérolites (Haudin, ). La calorimétrie donne accès à la fraction cristallisée, c'est-à-dire au rapport entre le taux de cristallinité au temps t et le taux de cristallinité à la fin de la cristallisation. Bien qu'il n'y ait aucune relation générale entre ces deux grandeurs, nous les assimilons, comme cela est généralement fait dans la littérature. On a alors :

$$\alpha_c = \frac{\chi_c(t)}{\chi_c(t=\infty)} = \left( \frac{\Delta H(t)}{\Delta H(t=\infty)} \right)_{\dot{T}_p = \text{cste}} \quad (3.5)$$

Ozawa (Ozawa, ) a repris la théorie d'Avrami-Evans, pour l'adapter au cas d'un refroidissement à vitesse constante  $\dot{T}_p$ . La fraction volumique transformée s'exprime alors en fonction de la température T et de la vitesse de refroidissement  $\dot{T}_p$ , sous la forme :

$$\alpha_c(T, \dot{T}_p) = 1 - \exp \left[ - \frac{\chi(T)}{\dot{T}_p^n} \right] \quad (3.6)$$

où n est le coefficient d'Avrami et  $\chi(T)$  une constante de vitesse dépendant de la température.

Des cristallisations réalisées à différentes vitesses de refroidissement constantes  $\dot{T}_p$  donnent accès à la fonction  $\alpha_c(T, \dot{T}_p)$  des deux variables T et  $\dot{T}_p$ . Si la loi d'Ozawa est vérifiée :

$$\ln \left[ - \ln(1 - \alpha_c(T, \dot{T}_p)) \right] = \ln \chi(T) - n \ln \dot{T}_p \quad (3.7)$$



A  $T$  fixé, les variations de  $\ln[1 - \ln(-\alpha_c(T, \dot{T}_p))]$  en fonction  $\ln \dot{T}_p$  doivent donc être décrites par une droite de pente  $-n$  et d'ordonnée à l'origine  $\ln \chi(T)$ . A partir des courbes obtenues à  $\dot{T}_p$  constant, on construit donc, pour différentes valeurs de la température  $T$ , les courbes  $\ln[1 - \ln(-\alpha_c(T, \dot{T}_p))] = f(\ln \dot{T}_p)$ . Elles forment un faisceau de droites, dont les pentes donnent le coefficient d'Avrami et les ordonnées à l'origine des valeurs de la fonction  $\chi(T)$ .

### 1.3 Résultats expérimentaux

La Figure 3.2 reprend les évolutions du taux de cristallinité obtenues pour quelques vitesses de refroidissement.

La forme du pic de cristallisation (cf. Figure 3.1) est plus complexe que dans le cas d'un corps pur, il peut être décomposé en deux contributions d'enthalpie équivalente :

- Une cristallisation primaire qui résulte de la germination et de la croissance des lamelles cristallines. Elle se produit sur un intervalle de température étroit. La température de début de cristallisation est fortement dépendante de la vitesse de refroidissement. Elle représente environ 50% du taux de transformation total
- Une cristallisation secondaire s'étalant jusqu'à température ambiante. Elle proviendrait de la post-cristallisation de la phase amorphe emprisonnée par les lamelles primaires. En effet, tant que la température reste supérieure à la température de transition vitreuse du polymère ( $-100^\circ\text{C}$  pour les polyéthylènes), les chaînes conservent une certaine mobilité qui autorise une post-cristallisation.

Les différences de taux de cristallinité à la fin du refroidissement sont faibles et inférieures à l'erreur expérimentale commise. En effet le large intervalle de cristallisation rend délicat la détermination de la ligne de base surtout aux faibles vitesses de refroidissement. Nous pouvons donc conclure que le taux de cristallinité final sera indépendant de la vitesse de refroidissement dans la gamme mesurée.

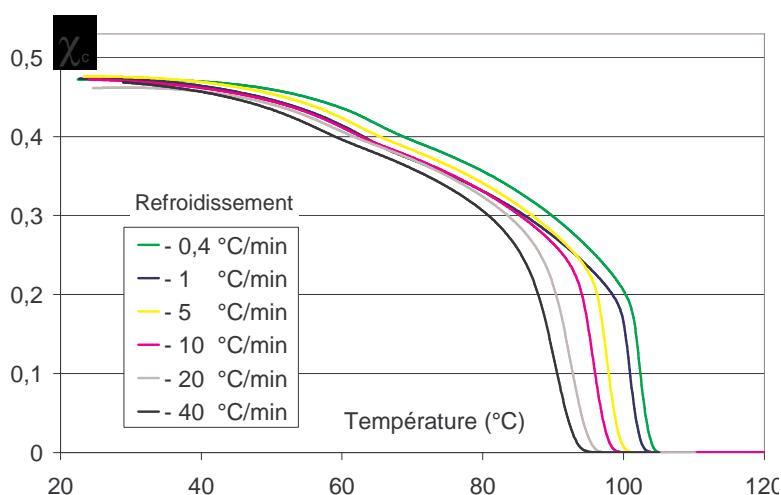


Figure 3.2 : évolution du taux de cristallinité pour le polyéthylène basse densité radicalaire

Les vitesses de refroidissement du procédé, qui peuvent atteindre  $1000^\circ\text{C}/\text{min}$  sont largement supérieures à celles étudiées par DSC. Mais il n'est pas possible d'effectuer des analyses à des vitesses supérieures, car le calorimètre ne peut plus contrôler le refroidissement et l'apparition d'un gradient thermique dans l'échantillon perturbe les mesures. Néanmoins, nous observons Figure 3.3 que l'évolution de la température de

début de cristallisation en fonction de la vitesse de refroidissement suit une loi logarithmique. L'extrapolation à des vitesses de refroidissement supérieures, permet de situer la température de début de cristallisation aux environs de 90°C à 1000°C/min.

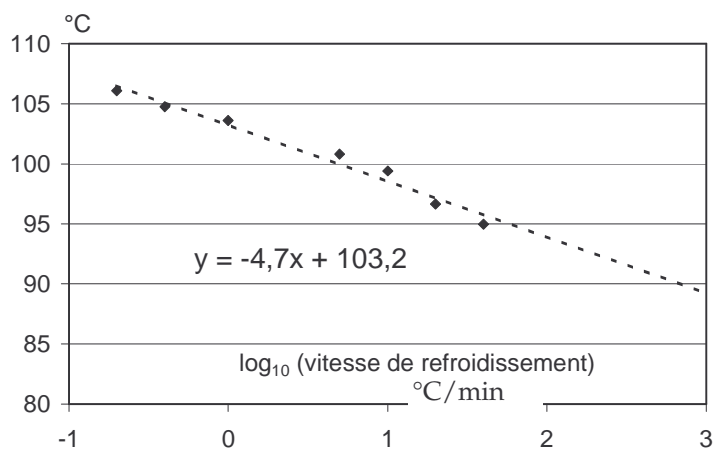


Figure 3.3: variation de la température de début de cristallisation avec la vitesse de refroidissement. Polyéthylène basse densité radicalaire

La courbe de fusion, Figure 3.4, montre que dès que l'on réchauffe le matériau, une partie de la structure cristalline fond, mais sans reprendre la même évolution que lors de la cristallisation. Ceci aura deux conséquences sur l'analyse du comportement mécanique :

- La structure cristalline n'étant pas stable, il ne sera pas possible d'étudier un PE avec une structure identique sur tout le domaine de température sans effectuer de recuit proche de la température de cristallisation (c'est ce que font les auteurs de la partie 3.3). Or, un recuit modifierait trop la structure que nous voulons caractériser. On observe en effet des différences importantes entre les échantillons bruts et les échantillons recuits, (Alberola, 1989).
- Le comportement mécanique ne peut être déterminé que lors d'une fusion. Si le taux de cristallinité est un paramètre essentiel du comportement mécanique, la différence d'évolution du taux de cristallinité entre la cristallisation et la fusion devra être prise en compte.

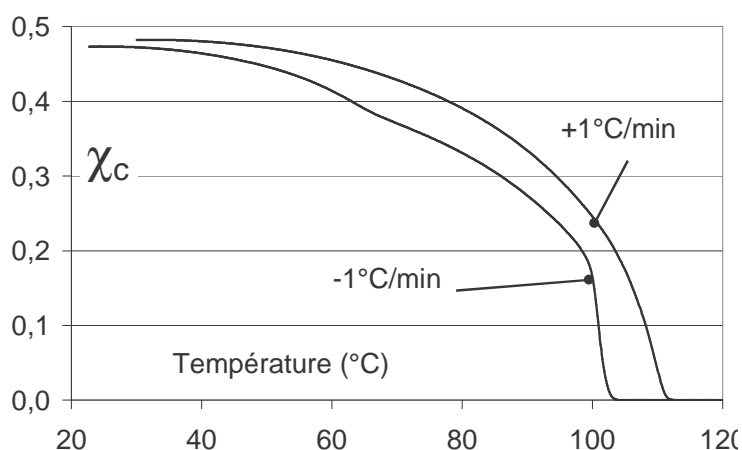


Figure 3.4 : différence d'évolution du taux de cristallinité,  $\chi_c$ , entre la cristallisation et la fusion : Cristallisation (-1°C/min), fusion (+1°C/min). Polyéthylène basse densité radicalaire

Les paramètres de la loi d'Ozawa ont été déterminés en utilisant la méthode citée au paragraphe précédent. Cette analyse ne considère que la cristallisation primaire, mais il est également nécessaire de se restreindre à des valeurs du taux de transformation comprises entre 0,1% et 20%. Le modèle de cristallisation est donc basé sur l'évolution des premiers 10% du taux de cristallinité.

Finalement, la modélisation de la cristallisation nécessite des simplifications importantes des observations expérimentales. Afin de s'assurer des résultats de la modélisation, nous allons recalculer à partir des paramètres de la loi d'Ozawa, le pic exothermique de la cristallisation et nous le comparerons à l'expérience.

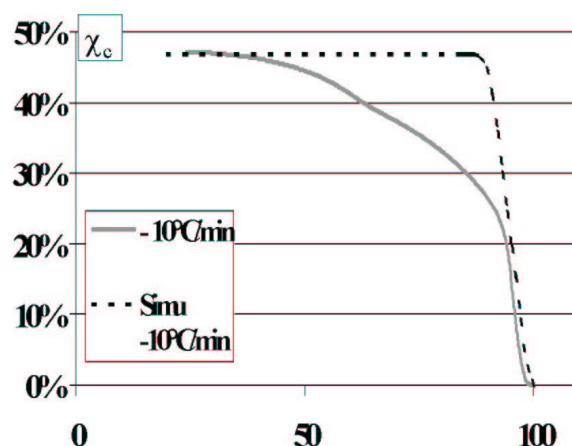


Figure 3.5 : comparaison entre les résultats obtenus par la loi d'Ozawa et par DSC. Polyéthylène basse densité radicalaire

Etant donné les simplifications réalisées, nous constatons (Figure 3.5) une différence importante entre l'expérience et la modélisation. Nous confirmons ainsi la nécessité de développer des modèles capables de représenter plusieurs cinétiques de cristallisation. Cette étude n'a pas été menée. La loi d'Ozawa permet cependant de retrouver la température de début de cristallisation et de bien représenter la cristallisation primaire.

Dans cette étude, nous sommes intéressés par la modélisation de la cristallisation à des vitesses de refroidissement équivalentes à celles rencontrées dans le procédé ( $\sim 1000^\circ\text{C}/\text{min}$ . en surface externe au maximale). La loi d'Ozawa est, mathématiquement, a priori capable de prendre en compte n'importe quel  $\dot{T}_p$ . Cependant la fiabilité des données et le domaine expérimental trop restreint rendent trop hasardeuse toute extrapolation à haute température. Dans notre cas, les résultats de la modélisation n'ont plus de sens lorsque la vitesse de refroidissement est supérieure à environ  $75^\circ\text{C}/\text{min}$ .

Afin de représenter au mieux ce que peut être la cristallisation aux vitesses de refroidissement élevées nous ferons ensuite deux hypothèses découlant des observations expérimentales :

- l'évolution de la température de début de cristallisation en fonction de la vitesse de refroidissement (en  $^\circ\text{C}/\text{min}$ ) suit une loi logarithmique (3.8) :

$$T_{\text{cristallisation}} = -4,7 \cdot \log_{10}(\dot{T}_p) + 103 \quad (3.8)$$

- La forme de l'évolution de la cristallisation est indépendante de la vitesse de refroidissement. Elle sera modélisée soit en utilisant la loi d'Ozawa soit en reprenant les points expérimentaux obtenus par DSC et en faisant une interpolation linéaire entre ces points. Pour les deux cas, nous prendrons comme évolution de référence celle à  $10^\circ\text{C}/\text{min}$ . représentée Figure 3.5.

## 2 Variation du volume spécifique

La variation du volume spécifique étant à l'origine de contraintes résiduelles, il est nécessaire de pouvoir modéliser avec précision son évolution au cours du refroidissement. Dans les exemples du 1<sup>er</sup> chapitre, celle-ci était considérée comme constante, mais il suffit d'observer Figure 3.6 la variation du volume spécifique en fonction de la température et de la pression pour s'assurer de la nécessité de remettre en cause cette hypothèse. La brusque diminution du volume spécifique constatée aux environs de 100-150°C est due à la cristallisation du matériau : les chaînes constituant le cristal étant ordonnées en une structure régulière et compacte, la densité du cristal est supérieure à celle de la phase amorphe.

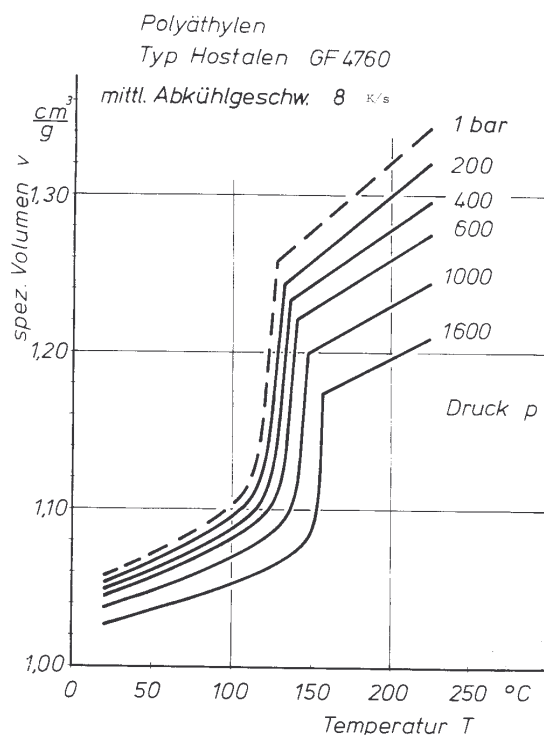


Figure 3.6 : diagramme PVT ( Pression, Volume, Température) d'un polyéthylène

La pression hydrostatique varie peu lors du calibrage des tubes et n'aura donc pas d'influence sur la variation du volume spécifique. Il nous faut simplement modéliser l'évolution du volume spécifique en fonction de la température et du taux de cristallinité à la pression atmosphérique.

Afin de rester proche de l'équilibre thermodynamique, les diagrammes PVT standards sont généralement réalisés à vitesse de refroidissement faible et pression constante ou en faisant varier la pression à température imposée. Or nous avons vu que la vitesse de refroidissement avait une influence importante sur la température de début de cristallisation, donc sur la température où la variation du volume spécifique intervient. De plus, les mesures ne sont en général pas effectuées à la pression atmosphérique à cause de problèmes de dégazage de l'échantillon. La courbe correspondante est obtenue en extrapolant les mesures à plus haute pression. Les diagrammes PVT standards ne sont donc pas utilisables directement.

## 2.1 Evolution expérimentale du volume spécifique

Nous avons déterminé expérimentalement l'évolution du volume spécifique à une vitesse de refroidissement constante, 5°C/min, afin de pouvoir la relier aux évolutions de la structure cristalline obtenue par DSC.

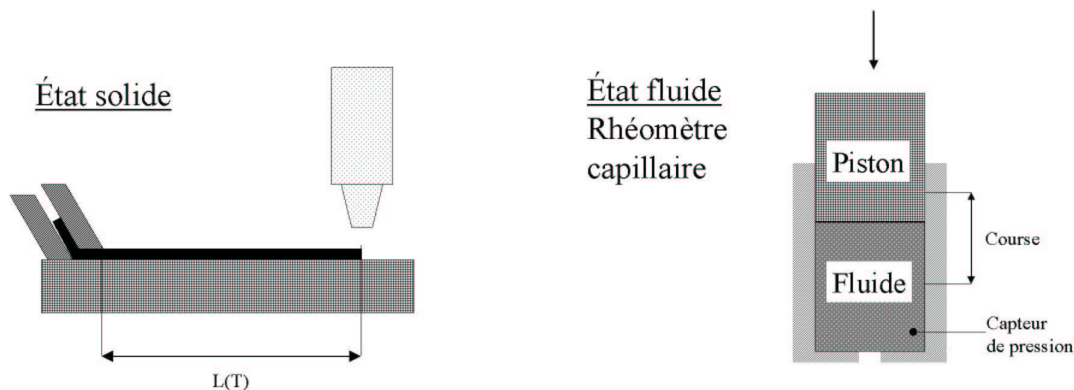


Figure 3.7 : dispositifs expérimentaux

### 2.1.1 Etat fondu

À l'état fondu, nous utilisons un rhéomètre capillaire (Figure 3.7). Le réservoir est rempli par le matériau à une température imposée et à la pression atmosphérique. Le piston étant asservi en déplacement, la course effectuée nous permet de déterminer le volume correspondant. Une fois la pression dans le réservoir redevenue égale à la pression atmosphérique, il ne reste plus qu'à peser la quantité de matière sortie du rhéomètre capillaire. En appliquant une course importante au piston, nous augmentons la précision de la mesure. Les erreurs commises proviennent du jeu entre le piston et le réservoir. Cette méthode permet d'obtenir simplement et avec une précision correcte la variation du volume spécifique à l'état fondu. Les résultats obtenus pour le polyéthylène haute densité sont reportés Figure 3.8.

### 2.1.2 Etat solide

L'influence du taux de cristallinité sur l'évolution du volume spécifique nécessite d'effectuer les mesures au cours du refroidissement. Une bande (5x50mm) de polyéthylène haute densité est découpée et placée sur une platine Pelletier. La platine est recouverte d'un film d'huile afin de limiter les frottements. Une extrémité de la bande est encastrée et une caméra préalablement étalonnée mesure les déplacements de l'autre côté. La variation de longueur est ainsi enregistrée lors d'un refroidissement de 150 à 20°C et à une vitesse imposée de 5°C/min. La variation du volume spécifique est obtenue par la relation (3.9), le volume spécifique à température ambiante  $v_s(20^\circ\text{C})$  est tiré de la documentation technique du matériau et est égale à 1,05 ; la longueur de l'échantillon,  $L(20^\circ\text{C})$ , est mesurée après l'expérience car celui-ci subit un allongement à l'état fluide.

$$v_s(T) = \left( \frac{L(T)}{L(20^\circ\text{C})} \right)^3 \cdot v_s(20^\circ\text{C}) \quad (3.9)$$

Les résultats sont reportés Figure 3.8 ainsi que la variation du volume spécifique pour un coefficient de dilatation constant et égal à  $150 \cdot 10^{-6} \text{K}^{-1}$  (documentation technique du matériau). Aux basses températures, nous vérifions la validité de la méthode en retrouvant la même pente que celle de la documentation technique. La variation du

volume spécifique se détache de la variation linéaire aux environs de 60°C. Nous retrouvons également par l'expérience la brusque variation due à la cristallisation du matériau. A haute température, la force de rappel due au retrait est trop faible par rapport au frottement entre le matériau et la platine pour pouvoir mesurer la rétraction de la bande. Ces mesures n'ont pas pu être effectuées pour le polyéthylène basse densité, celui-ci collant à la platine à haute température malgré le film d'huile

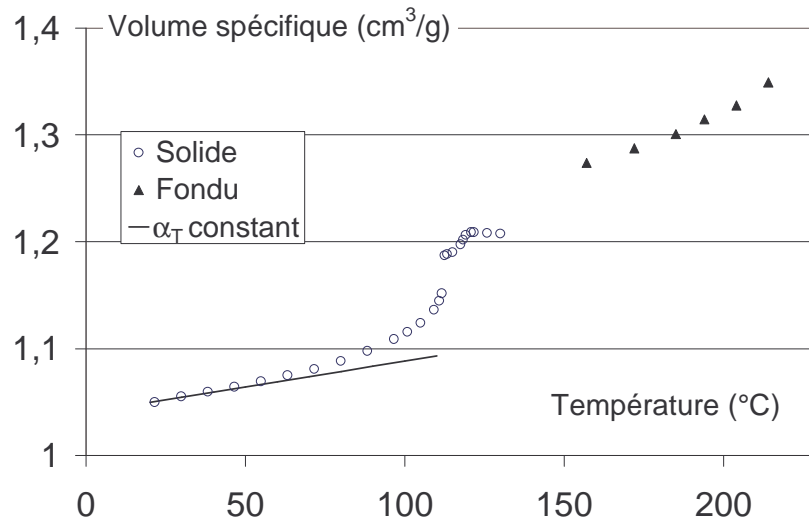


Figure 3.8 : évolution expérimentale du volume spécifique (polyéthylène haute densité)

## 2.2 Modélisation de l'évolution du volume spécifique

Si on suppose que le matériau est composé d'une unique phase amorphe et d'une unique phase cristalline, on peut modéliser la variation du volume spécifique par une loi de mélange (3.10) ayant comme paramètre le taux de cristallinité.

$$V = v_s M = V_c + V_a = v_{sc} M_c + v_{sa} M_a$$

$$v_s = v_{sc} \frac{M_c}{M} + v_{sa} \frac{M - M_c}{M}$$

$$v_s = \chi_c v_{sc} + (1 - \chi_c) v_{sa} \quad (3.10)$$

$M, M_c, M_a$  Masse de l'échantillon, des phases cristalline et amorphe.

$V, V_c, V_a$  Volume de l'échantillon, des phases cristalline et amorphe.

$v_s, v_{sc}, v_{sa}$  Volume spécifique de l'échantillon, des phases cristalline et amorphe.

L'évolution du volume spécifique de la phase cristalline du polyéthylène (3.11) est obtenue à partir de mesures aux rayons X par (Wunderlich, 1980). Cette équation représente avec une erreur inférieure à 1% l'évolution du volume spécifique, jusqu'à 130°C.

$$v_c = 0,9994 + 2,614 \cdot 10^{-4} * T + 4,43 \cdot 10^{-7} * T^2 \quad (T \text{ en } ^\circ\text{C}) \quad (3.11)$$

(Wunderlich, 1980) a également montré que le volume spécifique de la phase amorphe dépend de la distribution des masses moléculaires mais est indépendant des

branchements et du type de copolymérisation. Ainsi alors que le volume spécifique du polyéthylène amorphe ne peut être mesuré qu'à haute température, il est possible d'analyser différents copolymères amorphes de propylène et de polypropylène atactique. (Wunderlich, 1980) propose la relation (3.12) pour décrire la variation du volume spécifique de la phase amorphe en fonction de la température :

$$v_a = 1,153 + 7,85 \cdot 10^{-4} * T + 4,3 \cdot 10^{-7} * T^2 + \Delta \bar{v} \quad (T \text{ en } ^\circ\text{C}) \quad (3.12)$$

où  $\Delta \bar{v}$  est la différence de volume entre le volume spécifique mesuré et l'équation (3.12).

(Richardson et al., 1963) propose des relations similaires pour l'évolution des volumes spécifiques des phases amorphe et cristalline.

La loi de mélanges (3.10) permet de recalculer l'évolution du volume spécifique en utilisant la variation du taux de cristallinité obtenue expérimentalement par DSC (Figure 3.2) ou celle obtenue par la loi d'Ozawa.

L'erreur commise sur la prédiction du volume spécifique du matériau dépend de la précision de la modélisation du taux de cristallinité. Or nous avons vu au paragraphe précédent que celle-ci restait délicate et assez éloignée des résultats expérimentaux. Les résultats obtenus sont comparés Figure 3.9 à la modélisation.

La modélisation de l'évolution du volume spécifique à partir des taux de cristallinité déterminés par DSC permet de bien rendre compte de la variation du volume spécifique (courbe en trait plein).

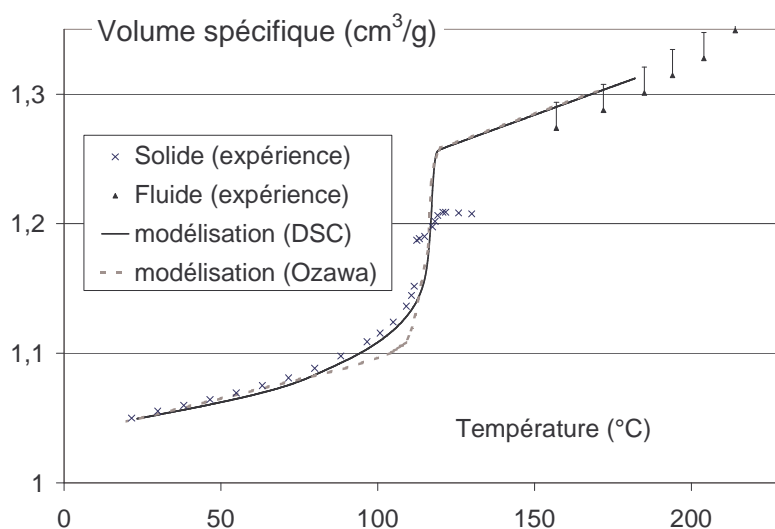


Figure 3.9 : évolution du volume spécifique. (polyéthylène haute densité)

### 3 Comportement thermomécanique des polymères

---

#### 3.1 Introduction

Les polymères ont un comportement mécanique de type viscoélastique, qui se traduit par la disparition au cours du temps des contraintes présentes dans le matériau. Si celui-ci est fluide, les contraintes dues à une déformation antérieure auront disparu après une durée de l'ordre de la seconde. Par contre, si le matériau est solide à température ambiante, les contraintes mettront plusieurs mois à disparaître. Les grandeurs mécaniques représentant ce comportement et leurs modélisations sont décrites dans la première partie.

Les temps de relaxation ci-dessus ne sont donnés que pour information, ce phénomène étant très dépendant de la température. Par exemple, pour le polyéthylène haute densité le temps de relaxation des contraintes à 30°C est 10 fois plus grand qu'à 50°C. Il existe ainsi une relation étroite entre le temps de relaxation des contraintes et la température de l'échantillon. A l'état fluide, le temps de relaxation est simplement multiplié par un coefficient fonction de la température, le facteur de glissement  $a_T$ . A l'état semi-cristallin, les relations sont plus complexes. Une approche théorique du couplage temps – température est proposée dans la deuxième partie.

Afin de pouvoir prévoir la formation des contraintes résiduelles, il est nécessaire de déterminer le comportement mécanique du matériau au cours du refroidissement. Au début du procédé le matériau est à l'état fluide, l'analyse du comportement viscoélastique dans le cadre des petites déformations est relativement classique et correspond à une simplification des problèmes rencontrés dans le solide. Le polymère à l'état semi-cristallin peut être considéré comme un matériau composé de trois phases distinctes : une phase amorphe, une phase cristalline et une zone intermédiaire reliant ces deux premières phases. Chacune ayant ses propres modes de relaxation, le comportement mécanique global est beaucoup plus complexe qu'à l'état fluide. Des applications de la littérature au cas du polyéthylène solide sont exposées dans la troisième partie. Elles mettent en avant certaines caractéristiques de ces matériaux et apportent une explication des mécanismes de relaxation dans les polymères semi-cristallins.

Cependant ces résultats ne sont pas directement applicables pour représenter le comportement du matériau lors de la formation des contraintes résiduelles. En effet, ces études ont été réalisées sur des matériaux ayant une structure stabilisée par des recuits. Or nous avons besoin de l'évolution du comportement mécanique pendant la formation de cette structure, c'est-à-dire lors de la transition fluide–solide et ensuite au cours du refroidissement. Les cinétiques de cristallisation étant fortement dépendantes de la vitesse de refroidissement et non réversibles, on peut s'attendre à des différences de comportement. L'objectif de la quatrième partie sera donc de proposer un modèle permettant de prendre en compte les évolutions du comportement viscoélastique des deux polyéthylènes lors de la mise en forme.

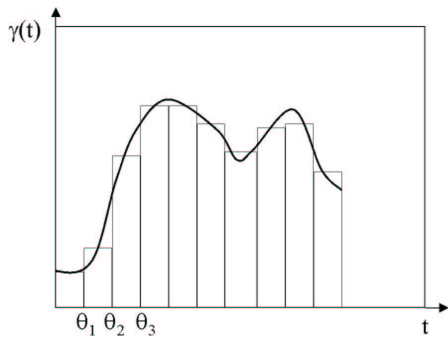


### 3.2 Caractérisation rhéologique - Bibliographie

#### 3.2.1 Comportement viscoélastique linéaire

La viscoélasticité linéaire repose sur le principe de superposition de Boltzmann. Ce principe indique que lorsqu'un corps est soumis à une suite de déformations élémentaires, la contrainte résultant de la sollicitation globale est la somme des contraintes associées à chaque déformation élémentaire prise isolément.

Ainsi, en découpant un programme de déformation  $\gamma(t)$  en fonctions échelons élémentaires d'amplitude  $\dot{\gamma}(\theta)d\theta$  (Figure 3.10), on peut calculer la contrainte résultante  $\sigma(t)$  par l'équation (3.13).



$$\sigma(t) = \int_0^t G(t-\theta) \dot{\gamma}(\theta) d\theta \quad (3.13)$$

Figure 3.10 : principe de Boltzmann

Afin de comprendre les phénomènes de relaxation il est intéressant d'observer les résultats d'essais en relaxation et en sollicitation dynamique pour un polymère idéal à un seul temps de relaxation.

#### a) Essai de relaxation

A  $t_0$ , un échantillon est soumis à une déformation constante  $\epsilon_0$  et nous mesurons l'évolution de la contrainte  $\sigma(t)$ . Le comportement du matériau est représenté sur la Figure 3.11.

- Pour un solide élastique, les contraintes sont proportionnelles à la déformation et donc constantes.
- Pour un solide viscoélastique, la valeur des contraintes est affectée par l'écoulement et décroît vers une valeur d'équilibre pour des temps suffisamment longs.

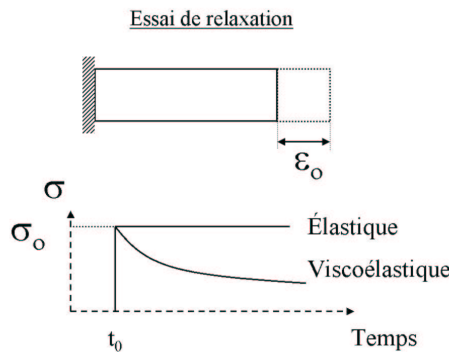


Figure 3.11 : essai de relaxation

L'évolution du module  $G(t)$  obtenue lors d'un essai de relaxation en cisaillement est supposée égale au rapport  $\sigma(t)/\gamma_0$  puisque nous nous plaçons dans le cas de la viscoélasticité linéaire. Si nous pouvions imposer  $\gamma_0$  instantanément et sur une période de temps très longue, nous aurions une évolution de  $G(t)$  équivalente à celle représentée schématiquement sur la Figure 3.12.

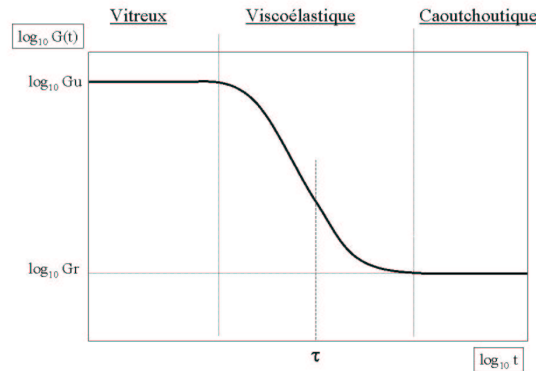


Figure 3.12 : évolution schématique de  $G(t)$

La réponse du matériau peut être scindée en trois parties :

- Pour les faibles temps, le module de relaxation est élevé ( $G_U$ ) et indépendant du temps, il s'agit de l'état vitreux.
- Aux temps très longs nous observons également un module constant mais de plus faible valeur ( $G_R$ ), c'est l'état caoutchoutique.
- A des temps intermédiaires le module se situe entre ces deux valeurs et décroît avec le temps : c'est le comportement général de la viscoélasticité.

Ces résultats montrent que le comportement du matériau va dépendre du rapport entre le temps de l'expérience et le temps  $\tau$  appelé temps de relaxation. La distinction entre l'état vitreux et l'état caoutchoutique dépend de la valeur de  $\tau$  à température ambiante. Si le temps d'observation est très supérieur à  $\tau$  on aura un comportement caoutchoutique et dans le cas inverse on aura un comportement vitreux.

Le temps de relaxation  $\tau$  est relié aux mouvements de réarrangement qui prennent place dans la matière lorsque celle-ci est soumise à une déformation. En augmentant la température, on augmente significativement la fréquence de réarrangement moléculaire et on diminue ainsi la valeur de  $\tau$ . Ainsi un caoutchouc va présenter un comportement vitreux à basse température et inversement à haute température un polymère vitreux aura un comportement caoutchoutique.

Des comportements identiques sont observés lors d'un essai de fluage, mais il faut alors introduire un temps de retard  $\tau'$  de même ordre de grandeur que  $\tau$ .

## b) Mesures dynamiques

Une autre méthode de mesure des propriétés viscoélastiques est de soumettre l'échantillon à une déformation sinusoïdale et de mesurer simultanément les contraintes qui en résultent. Pour un comportement viscoélastique linéaire, les déformations et contraintes vont toutes les deux varier selon un profil sinusoïdal, mais avec un déphasage  $\delta$  entre les deux mesures. Le comportement du matériau peut être représenté à l'aide des modules dynamiques définis ci-après :

$$\begin{aligned} \varepsilon &= \varepsilon_0 \sin(\omega t) \\ \sigma &= \sigma_0 \sin(\omega t + \delta) = \sigma_0 \sin(\omega t) \cos(\delta) + \sigma_0 \cos(\omega t) \sin(\delta) \\ &= \varepsilon_0 G' \sin(\omega t) + \varepsilon_0 G'' \cos(\omega t) \end{aligned} \quad (3.14)$$

$$G' = \frac{\sigma_0}{\varepsilon_0} \cos(\delta) \quad G'' = \frac{\sigma_0}{\varepsilon_0} \sin(\delta) \quad \tan(\delta) = \frac{G''}{G'}$$

Soit en représentation complexe :

$$\varepsilon = \varepsilon_0 e^{i\omega t} \quad \sigma = \sigma_0 e^{i(\omega t + \delta)} \quad \text{et donc} \quad G^* = G' + iG'' \quad (3.15)$$

On définit de la même façon les complaisances dynamiques  $J^* = J' + iJ''$  avec  $G^* = 1/J^*$ .

Les évolutions des modules  $G'$ ,  $G''$  et de  $\tan \delta$  en fonction de la fréquence  $\omega$  sont représentées sur la Figure 3.13 pour un solide viscoélastique. A basse et haute fréquence le module  $G'$  ne dépend pas de la fréquence. Nous retrouvons le plateau caoutchoutique à basse fréquence, le plateau vitreux à haute fréquence et une zone de transition entre ces deux plateaux correspondant au comportement viscoélastique.

Des informations complémentaires sont fournies par le module  $G''$  et  $\tan \delta$ . Ceux-ci valent zéro à basses et hautes fréquences : les déformations et les contraintes sont alors en phase. Dans la partie intermédiaire, proche des fréquences où  $G'$  évolue le plus vite, ils passent tous les deux par un maximum avec un léger décalage en fréquence. Ce profil de  $\tan \delta$  est caractéristique des solides viscoélastiques et n'est pas retrouvé pour les fluides viscoélastiques.

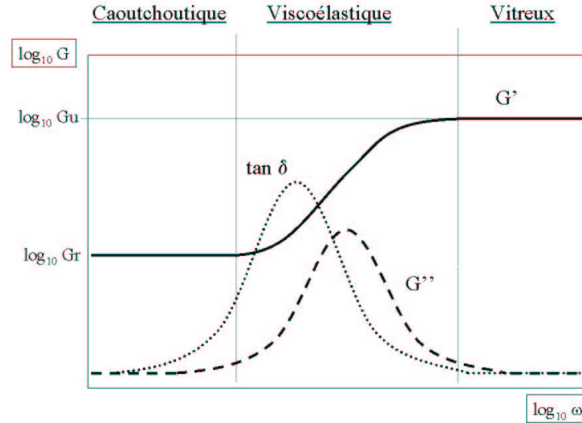


Figure 3.13 : évolution schématique de  $G'$ ,  $G''$  et  $\tan \delta$

Le modèle de Maxwell décrit bien la relaxation des contraintes d'un fluide viscoélastique, mais il ne permet ni d'obtenir le module caoutchoutique  $G_r$  pour les tests de relaxation, ni un maximum de  $\tan \delta$  pour les mesures en dynamique. Afin de compléter ce modèle, il est nécessaire de lui ajouter un élément élastique en parallèle. On obtient ainsi le modèle de Zener ou du 'standard linear solid' (Figure 3.14) qui permet de modéliser les observations des paragraphes précédents.

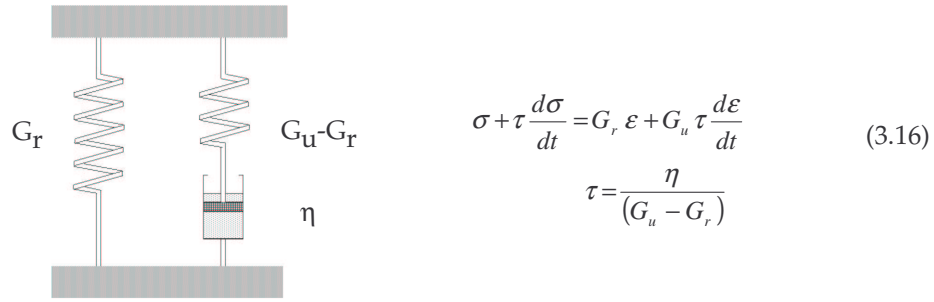


Figure 3.14 : modèle de Zener

$$G(t) = G_r + (G_u - G_r) e^{-\frac{t}{\tau}} \quad \text{Essai de relaxation ( Figure 3.12 )} \quad (3.17)$$

$$G^*(\omega) = G_r + (G_u - G_r) \frac{i\omega\tau}{1 + i\omega\tau}$$

$$G'(\omega) = \frac{G_r + \omega^2 \tau^2 G_u}{1 + \omega^2 \tau^2}$$

$$G''(\omega) = \frac{(G_u - G_r)\omega\tau}{1 + \omega^2 \tau^2} \quad \text{Essai en dynamique ( Figure 3.13 )} \quad (3.18)$$

$$\tan \delta(\omega) = \frac{(G_u - G_r)\omega\tau}{G_r + \omega^2 \tau^2 G_u}$$

Notons dès à présent les relations suivantes qui nous seront utiles pour modéliser les propriétés de nos matériaux. Ces relations sont proportionnelles à la « force de relaxation » ( $G_u - G_r$ ). Les résultats obtenus pour  $\tan \delta$  sont sans dimension ce qui justifiera par la suite leur utilisation pour estimer les mécanismes de relaxation.

$$\omega^2 \tau^2 = 1 \Rightarrow G_{\max}'' = \frac{G_u - G_r}{2} \quad \left| \quad \omega^2 \tau^2 = \frac{G_r}{G_u} \Rightarrow \tan \delta(\omega)_{\max} = \frac{G_u - G_r}{2\sqrt{G_u G_r}} \right.$$

$$\int_{-\infty}^{\infty} G''(\omega) d(\ln \omega) = \frac{\pi}{2} (G_u - G_r) \quad \left| \quad \int_{-\infty}^{\infty} \tan \delta(\omega) d(\ln \omega) = \frac{\pi}{2} \frac{(G_u - G_r)}{\sqrt{G_u G_r}} \right. \quad (3.19)$$

Un comportement équivalent est obtenu en plaçant un élément élastique en série avec un élément de Voigt et permet de modéliser plus facilement les expériences en fluage.

### c) Modèle Multimode

#### Spectre de relaxation

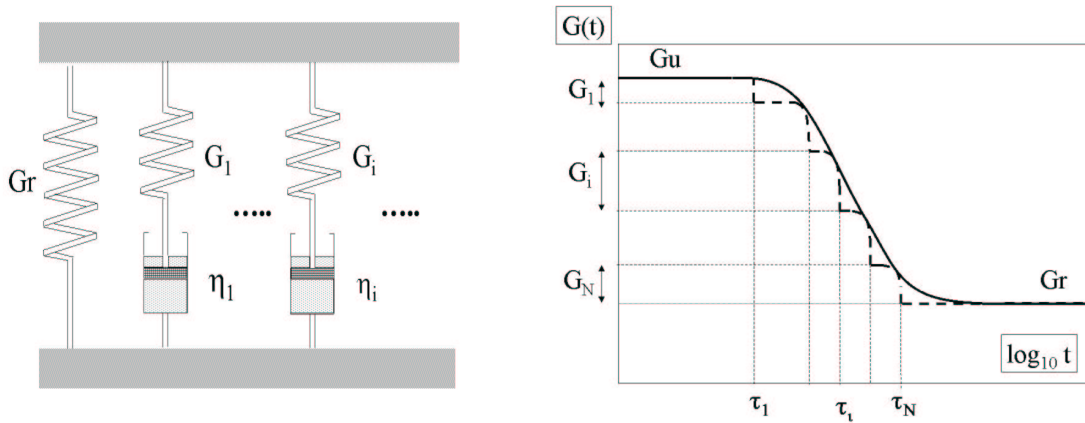
Le modèle précédent prévoit uniquement une réponse exponentielle de la contrainte à un saut de déformation. En général, le comportement d'un polymère ne peut pas être représenté par un seul temps de relaxation, mais par une distribution de temps de relaxation. Rajouter des temps de relaxation dans le modèle analogique précédent revient à scinder l'élément de Maxwell du modèle de Zener en une distribution parallèle d'éléments de Maxwell (Figures 3.15). Ce modèle est identique à un modèle de Maxwell multimode avec au moins un des éléments ayant un temps de relaxation très grand par rapport au temps de l'expérience. La loi de comportement linéaire du modèle Maxwell contenant N éléments est définie par les relations suivantes :

$$\sigma = \sum_1^N \sigma_n \quad \text{avec} \quad \sigma_n + \tau_n \frac{\partial \sigma_n}{\partial t} = 2\eta_n \dot{\epsilon} \quad (3.20)$$

En viscoélasticité linéaire, on obtient alors les modules de relaxation et dynamiques suivant :

$$G(t) = G_r + \sum G_i \exp\left(\frac{-t}{\tau_i}\right) \quad G^* = \sum_1^N G_n^* \quad G' = \sum_1^N G_n' \quad G'' = \sum_1^N G_n'' \quad (3.21)$$

$$\sum G_i = G_u - G_r$$



Figures 3.15 : modèle multimode

L'influence des temps de relaxation sur le module  $G(t)$  est également représentée schématiquement sur les Figures 3.15 : le module de relaxation au temps  $t$  ne dépend pas des éléments ayant des temps de relaxation inférieurs à  $t$ . En effet, si on considère l'approximation ci-dessous, le module  $G(t)$  est égal à la somme des modules des éléments ayant un temps de relaxation supérieur à  $t$ .

$$t < \tau_i \Rightarrow \exp\left(\frac{-t}{\tau_i}\right) = 1$$

$$t > \tau_i \Rightarrow \exp\left(\frac{-t}{\tau_i}\right) = 0$$

$$G(t) = \sum_i^N G_i \quad \text{avec } i \text{ tel que } \tau_i > t \quad (3.22)$$

Le graphique figure 3.15 montre l'influence des différents éléments du modèle. Ainsi pour déterminer un spectre de relaxation discret de  $G(t)$ , il faut évaluer les couples  $(G_i, \tau_i)$  en partant du temps le plus long jusqu'au temps le plus court. Il est important d'utiliser un nombre suffisant d'éléments de Maxwell, sinon le comportement présentera des oscillations comme la courbe en pointillé des Figures 3.15.

#### Spectre de relaxation continu.

En augmentant le nombre d'éléments à l'infini, nous pouvons remplacer  $G_i$  par la fonction poids  $f(\tau) d\tau$  représentant les éléments de Maxwell dont le temps de relaxation est compris entre  $\tau$  et  $\tau+d\tau$ . On peut ainsi représenter l'équation précédente sous forme intégrale :

$$\begin{aligned}
 G(t) &= G_r + \int_0^{\infty} f(\tau) \exp\left(\frac{-t}{\tau}\right) d\tau \\
 &= G_r + \int_{-\infty}^{\infty} H(\tau) \exp\left(\frac{-t}{\tau}\right) d(\ln \tau)
 \end{aligned}
 \tag{3.23}$$

La fonction  $f(\tau)$  correspond au spectre des temps de relaxation. Le spectre des temps de relaxation étant généralement visualisé en échelle logarithmique, il est plus pratique de définir la fonction  $H(\tau)$  pour laquelle  $H(\tau) d(\ln \tau)$  représente le poids des éléments dont le temps de relaxation est compris entre  $\ln \tau$  et  $\ln \tau + d(\ln \tau)$ . Si le principe de superposition de Boltzmann est vérifié, on peut calculer toutes les fonctions viscoélastiques à partir du spectre de relaxation. Le problème inverse, déterminer  $H(\tau)$  à partir des modules, est moins évident. De même en sollicitation dynamique,

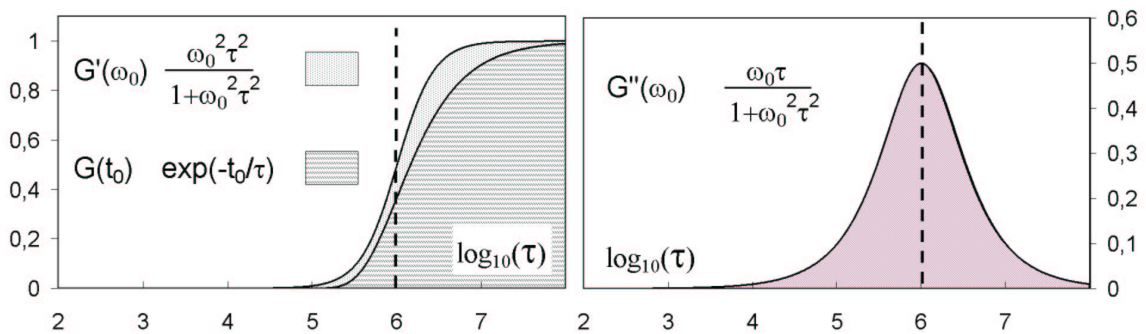
$$\begin{aligned}
 G' &= G_r + \int_{-\infty}^{\infty} \frac{H(\tau) \omega^2 \tau^2}{1 + \omega^2 \tau^2} d \ln \tau \\
 G'' &= \int_{-\infty}^{\infty} \frac{H(\tau) \omega \tau}{1 + \omega^2 \tau^2} d \ln \tau
 \end{aligned}
 \tag{3.24}$$

Pour étudier l'incidence des temps de relaxation, nous allons considérer l'évolution des grandeurs mécaniques en fonction de  $\tau$  à un temps  $t_0$ , ou une fréquence  $\omega_0$ , fixés. Nous traçons sur les Figures 3.16 l'évolution de  $\exp(-t_0/\tau)$  en fonction de  $\ln(\tau)$  à l'instant  $t_0=10^6$  s pour représenter l'évolution du module de relaxation et les évolutions de  $\omega^2 \tau^2 / (1 + \omega^2 \tau^2)$  et  $\omega \tau / (1 + \omega^2 \tau^2)$  à  $\omega_0=10^6$  rad/s pour les modules  $G'$  et  $G''$ .

On observe que les éléments ayant un temps de relaxation inférieur à  $t_0$  (ou à  $1/\omega_0$ ) ont peu d'influence sur les modules  $G(t)$  ou  $G'(\omega)$ .

Nous remarquons également que l'influence du spectre de relaxation est équivalente pour ces deux modules. Les remarques précédentes sur la détermination du spectre discret à partir de  $G(t)$  seront donc semblables pour la détermination du spectre de relaxation à partir du module  $G'(\omega)$ .

Pour  $G''(\omega)$  les temps de relaxation supérieurs et inférieurs à  $1/\omega$  ont un rôle symétrique.



Figures 3.16 : poids des temps de relaxation ; pour  $\log_{10} t_0 = 6,0$  pour  $G(t)$  et  $\log_{10} \omega_0 = -6,0$  pour  $G'(\omega)$  et  $G''(\omega)$

#### Introduction des éléments paraboliques

L'utilisation du modèle multimode conduit rapidement à un grand nombre de paramètres. Une distribution particulière des temps de relaxation est obtenue en

introduisant un ou plusieurs éléments paraboliques qui permettent artificiellement de restreindre le nombre de paramètres. Les modèles incluant des éléments paraboliques possèdent un ou des paramètres qui contiennent implicitement la notion de distribution de temps de relaxation, ce qui limite d'autant le nombre des paramètres du modèle. Les modèles paraboliques ne sont pas strictement équivalents aux modèles multimodes et permettent par exemple de mieux représenter l'évolution des propriétés viscoélastiques aux hautes et basses fréquences. On pourra se reporter aux travaux de Martin et Decroix (Martin, 1999, Decroix, 1974) pour une approche plus complète de ces modèles.

Nous allons utiliser au paragraphe 3.3.3a ) un modèle parabolique simple : le modèle de relaxation de Cole-Cole (ou Zener parabolique).

$$G^*(\omega) = G_r + (G_u - G_r) \frac{(i\omega\tau)^h}{1 + (i\omega\tau)^h} \quad (3.25)$$

Il s'agit d'une extension du modèle de Zener. Au lieu d'avoir un unique temps de relaxation, on prend en fait en compte une distribution de temps de relaxation due au fait que  $h$  est non entier. En première approximation cette distribution est symétrique par rapport à  $\tau$ . La largeur du spectre est fonction du coefficient  $h$  compris dans l'intervalle 0 à 1. L'influence de ce coefficient sur le spectre de relaxation est reportée Figure 3.17 et nous représentons sur les Figures 3.18 l'influence de ce coefficient sur les modules  $G'$ ,  $G''$ . La position du maximum de  $G''$  n'évolue pas en position avec  $h$  donc si nous avons à interpoler un spectre de relaxation du type Zener parabolique nous utiliserons la position de  $G''_{\max}$  pour déterminer  $\tau$ .

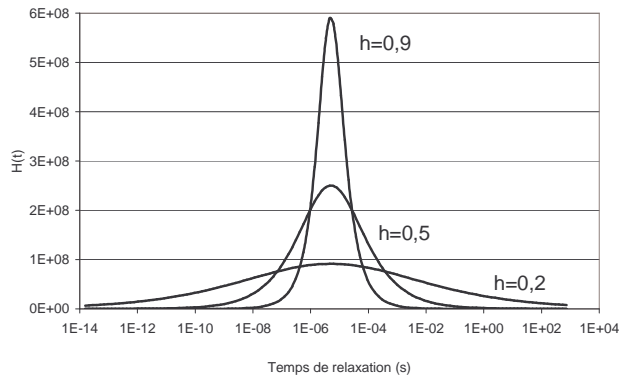
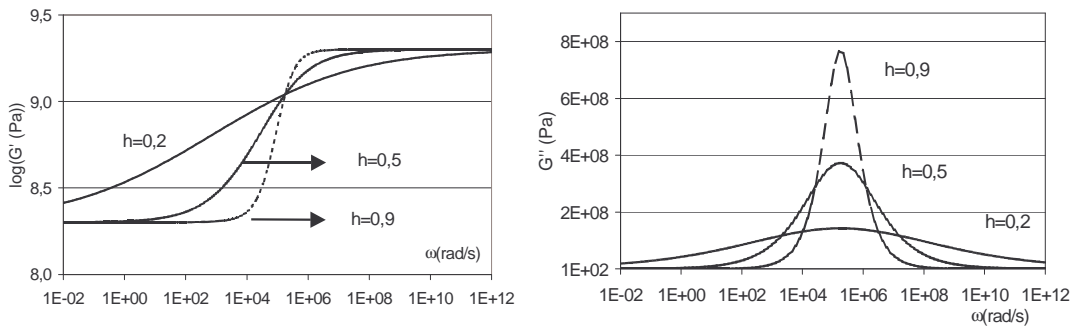


Figure 3.17 : approximation du spectre de relaxation  $H(t)$  en fonction de  $h$



Figures 3.18 : évolution de  $G'$  et  $G''$  en fonction de  $h$

3.2.2 Influence de la température - Superposition temps-température.

a) Comportement thermo-rhéologiquement simple

Le spectre des temps de relaxation est représentatif des mécanismes physiques de relaxation liés aux réarrangements moléculaires qui se produisent dans la matière. Ces mécanismes étant activés thermiquement, il existe une relation étroite entre  $H(\tau)$  et la température. Suivant la thermo-dépendance du spectre de relaxation nous pouvons distinguer différents comportements.

Si les modules  $G_u$  et  $G_r$  sont indépendants de la température, le spectre des temps de relaxation sera simplement translaté le long de l'échelle des temps. Ce comportement est appelé thermo-rhéologiquement simple. On définit alors une température de référence,  $T_0$ , et un facteur de glissement du spectre de relaxation,  $a_T$ , tel que

$$H(\tau, T) = H\left(\frac{\tau}{a_T}, T_0\right) \tag{3.26}$$

Si l'axe des temps est représenté en échelle logarithmique, cela correspond à une translation horizontale du spectre de relaxation. Puisqu'un changement de température n'affecte que l'échelle des temps, les grandeurs mécaniques ne dépendant pas de la vitesse de sollicitation sont elles aussi simplement translatées horizontalement. Il en est ainsi pour les modules et  $\tan \delta$ , par contre la viscosité sera également translatée verticalement puisque  $\eta_T = a_T \cdot \eta_{T_0}$ . Ces résultats sont représentés schématiquement sur la Figure 3.19.

$$\begin{aligned} G(t, T) &= G_r + \int_{-\infty}^{\infty} H(\tau, T) \exp\left(\frac{-t}{\tau}\right) d(\ln \tau) \\ &= G_r + \int_{-\infty}^{\infty} H\left(\frac{\tau}{a_T}, T_0\right) \exp\left(\frac{-t}{\tau}\right) d(\ln \tau) & \tau' = \frac{\tau}{a_T} \\ &= G_r + \int_{-\infty}^{\infty} H(\tau', T_0) \exp\left(\frac{-t}{a_T \tau'}\right) d(\ln \tau') = G\left(\frac{t}{a_T}, T_0\right) \end{aligned} \tag{3.27}$$

Et de même pour les modules dynamiques :

$$\begin{aligned} G'(\omega, T) &= G'(a_T \omega, T_0) \\ G''(\omega, T) &= G''(a_T \omega, T_0) \end{aligned} \tag{3.28}$$

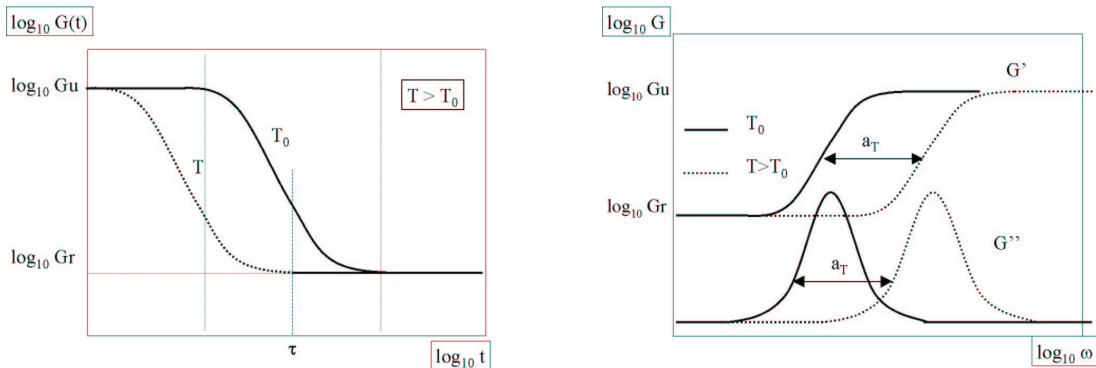
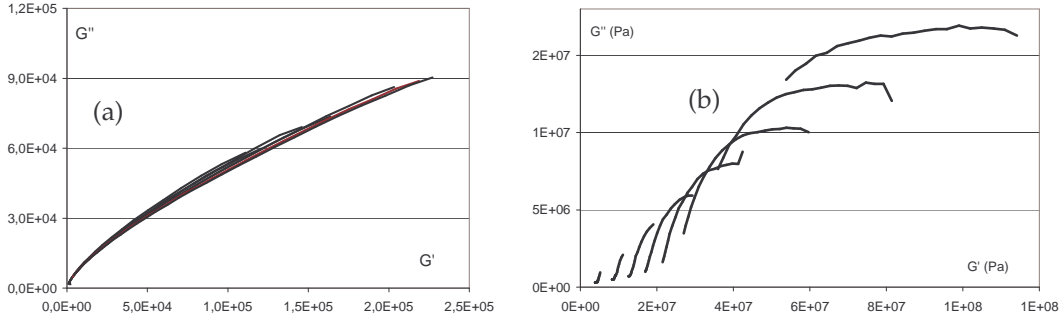


Figure 3.19 : superposition temps-température de matériaux thermo-rhéologiquement simple.

Ainsi une manière simple de vérifier si un matériau a un comportement thermo-rhéologiquement simple est de tracer le diagramme Cole-Cole de  $G''(\omega)$  en fonction de



$G'(\omega)$ ; les courbes obtenues à différentes températures doivent se superposer en une courbe unique. On peut ainsi remarquer sur les Figures 3.20 que ce comportement décrit bien la thermo-dépendance du polyéthylène à des températures supérieures à la température de fusion mais pas lorsque celui-ci a cristallisé.



Figures 3.20 : Cole-cole  $G''-G'$  pour le polyéthylène basse densité, courbes isothermes  
 (a)  $T > T_{\text{fusion}}$  (b)  $T < T_{\text{fusion}}$

Ce modèle introduit comme une thermo-dépendance simple du spectre de relaxation est une bonne approximation du comportement de nombreux polymères à l'état amorphe et à l'état liquide. Ce comportement peut en effet être prédit par les modèles moléculaires et suivant la zone de température l'évolution du coefficient de glissement  $a_T$  peut être ramenée à des considérations physiques.

Les modèles théoriques prévoient un faible décalage vertical de  $T_0 \rho_0 / T \rho$  lorsque l'on passe de la température  $T$  à la température de référence  $T_0$ . Dans la pratique ce décalage est négligeable par rapport aux larges variations du comportement viscoélastique.

- Williams, Landel et Ferry ont établi une loi valable pour presque tous les polymères amorphes dans l'intervalle de température de  $T_g$  à  $T_g+100^\circ\text{C}$ . Cette relation introduite de façon purement empirique à été retrouvée par les modèles reposant sur les concepts de volume libre à l'intérieur du matériau (voir (Ferry, 1970)).

$$\log a_T = \frac{C_1^g (T - T_g)}{C_2^g + (T - T_g)} \quad \text{Equation WLF} \quad (3.29)$$

- A des températures élevées, de plus de  $100^\circ\text{C}$  supérieures à la température de transition vitreuse ou au dessus de la température de fusion pour les polymères semi-cristallins, la variation de  $a_T$  est mieux représentée par une loi d'Arrhenius :

$$a_T = \exp\left(\frac{E_a}{R} \left(\frac{1}{T} - \frac{1}{T_0}\right)\right) \quad (3.30)$$

$E_a$  étant l'énergie d'activation associée au mécanisme de relaxation,  $R$  la constante des gaz parfaits et  $T_0$  la température de référence en kelvin.

La superposition temps-température permet, en faisant glisser horizontalement des courbes obtenues à différentes températures, de construire une courbe maîtresse à une température de référence (Figure 3.21). On peut ainsi calculer les grandeurs mécaniques dans des domaines de temps ou de fréquences auxquels nous n'avons pas accès expérimentalement et donc visualiser l'évolution complète des modules représentée sur les Figure 3.12 et Figure 3.13. En procédant à l'inverse nous pouvons à partir d'une courbe maîtresse complète et des facteurs de glissement  $a_T$  définir le comportement viscoélastique sur tout le domaine temps -température.

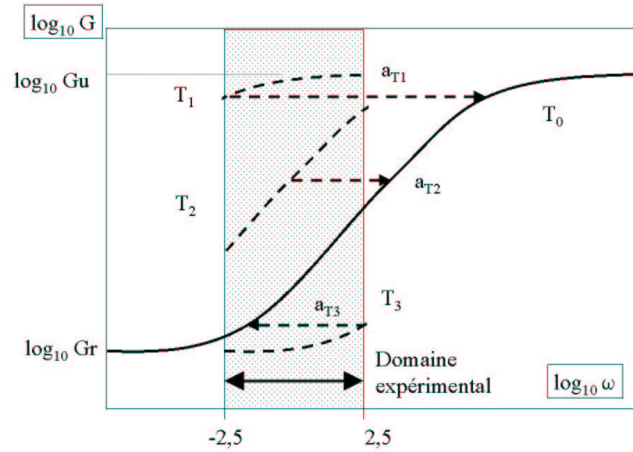


Figure 3.21 : construction d'une courbe maîtresse ;  $T_3 > T_0$  (température de référence)  $> T_2 > T_1$

### b) Superposition temps - température avec glissement vertical

Dans de nombreuses études sur la thermo-dépendance du comportement viscoélastique des polymères, particulièrement celles reposant sur des essais dynamiques, le glissement a été introduit suivant les hypothèses précédentes. Or, les Figures 3.20 montrent que cette superposition n'est pas valable pour les polymères semi-cristallins et, si les résultats obtenus dans la bibliographie semblent satisfaisants, cela est dû aux grandes échelles logarithmiques et à la pente de  $G'(\omega)$  qui est faible et régulière.

Mc Crum et Morris (McCrum et Morris, 1966) ont montré la nécessité pour certains matériaux de prendre en compte la variation des modules  $G_u$  et  $G_r$  en fonction de la température, afin d'obtenir les mêmes résultats pour les essais mécaniques en relaxation et en fluage. En effet on pouvait construire une courbe maîtresse avec un facteur de glissement,  $a_r$ , obéissant à une loi d'Arrhenius, mais suivant le type d'essai mécanique, on n'obtenait pas la même énergie d'activation.

Pour prendre en compte les remarques ci-dessus nous pouvons enrichir la thermo-dépendance précédente en couplant la translation horizontale du spectre de relaxation à une transformation affine par rapport à l'axe des temps. On définit alors un coefficient de glissement vertical,  $c_r$ , par rapport à la température de référence  $T_0$  tel que :

$$H_T(\tau) = c_T H_{T_0}\left(\frac{\tau}{a_T}\right) \quad c_T = \frac{G_u(T)}{G_u(T_0)} = \frac{G_r(T)}{G_r(T_0)} \quad (3.31)$$

Nous voyons sur la Figure 3.22 que si le rapport  $G_u/G_r$  est supposé constant, cela revient en échelle logarithmique à un simple glissement vertical des courbes de module. Ce comportement permet de définir à partir des coefficients  $a_r$ ,  $c_r$  et d'une courbe maîtresse le comportement du matériau sur tout le domaine temps - température.

Notons que ceci n'a aucune influence sur les valeurs  $\tan \delta$  puisque  $\frac{G''(\omega, T)}{G'(\omega, T)} = \frac{G''(a_T \omega, T_0)}{G'(a_T \omega, T_0)} = \tan \delta(\omega)$ . Ce critère peut être utilisé afin de vérifier si le matériau correspond à ce type de comportement.

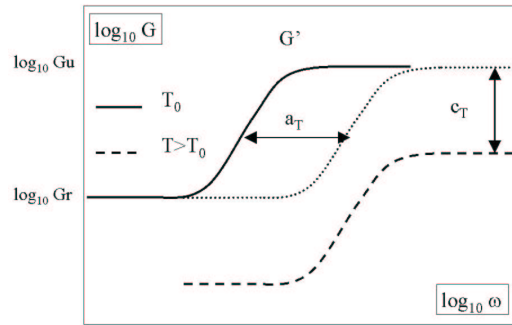


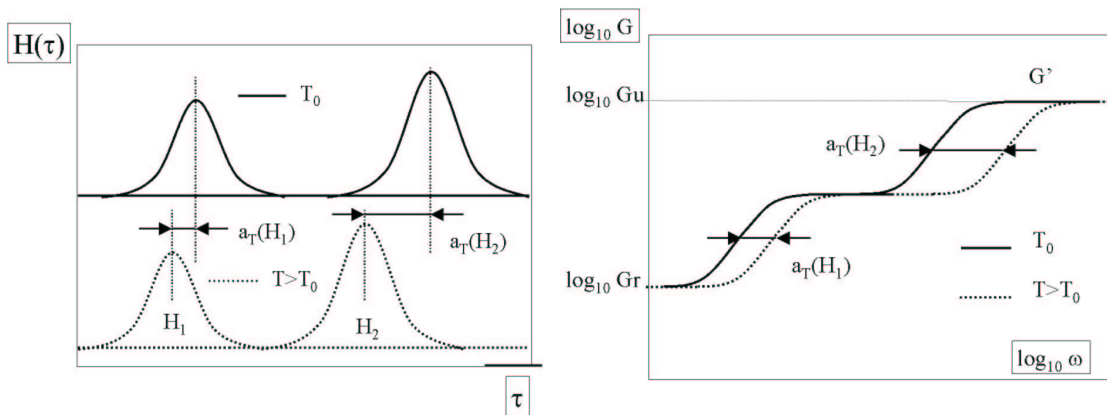
Figure 3.22 : glissement vertical

c) Thermo-dépendance complexe

Lorsque le comportement nécessite l'introduction d'autres coefficients, le simple glissement horizontal et/ou vertical des courbes de module n'est plus possible. Il faudrait alors définir d'autres transformations afin de décrire la thermo-dépendance du matériau.

Dans les polymères semi-cristallins, le spectre de relaxation sera constitué de la superposition de deux ou trois « sous-spectres » de relaxation, chacun relié à un phénomène physique différent (Figures 3.23). Par exemple  $H_\beta(\tau)$  est relié à des mécanismes de relaxation de la phase amorphe et  $H_\alpha(\tau)$  de la phase cristalline. Si ces deux mécanismes n'ont pas la même dépendance temps – température, il devient alors impossible de construire une courbe maîtresse représentant le comportement du matériau à partir des paramètres précédents. En effectuant une superposition temps – température avec glissement vertical pour un polyéthylène semi-cristallin, Mc Crum et Morris (McCrum et Morris, 1966) n'obtiennent pas une, mais deux courbes maîtresses, chacune reliée à un des mécanismes  $\alpha$  et  $\beta$ .

Dans certains cas, nous pourrions scinder  $H(\tau)$  en « sous-spectres »  $H_i(t)$  ayant des dépendance temps-température propre. Il est ainsi possible de reconstruire  $H(t)$  à d'autres températures et d'en déduire les grandeurs mécaniques. En pratique, ceci est rendu difficile par le faible domaine de fréquence ou de temps observable expérimentalement et par la superposition des différents « sous-spectres de relaxation » dans le domaine expérimental. Au § 3.3.3a), nous montrons une étude de Boyd basée ce principe décrivant les phénomènes de relaxation dans les polyéthylènes.



Figures 3.23 : différence d'activation thermique entre deux « sous-spectres »

### 3.3 Comportement viscoélastique des polyéthylènes semi-cristallins

#### 3.3.1 Mécanismes de relaxation

Les phénomènes de relaxation dans les polymères semi-cristallins ont fait l'objet de nombreuses études et sont encore d'actualité. L'étude expérimentale des propriétés mécaniques montre que leur modification en fonction de la température n'est pas continue. Diverses transitions mécaniques se produisent successivement lorsque l'on augmente la température. Elles se manifestent par une modification brutale des propriétés mécaniques au passage d'un seuil de température caractéristique de la transition, dans des conditions de sollicitation mécaniques données. Il est possible d'interpréter les phénomènes de transition mécanique en termes de mouvements moléculaires qui se produisent dans la matière.

Dans les polymères, tels le polyéthylène ou le polypropylène, qui cristallisent très rapidement et à des taux de cristallinité élevés, on distingue trois relaxations mécaniques principales désignées à température croissante lors d'essais dynamiques isochrones par  $\gamma$ ,  $\beta$ ,  $\alpha$ .

L'origine des différentes relaxations a été étudiée en comparant différents types de polyéthylène (basse densité radicalaire, haute densité, basse densité linéaire), à différents taux de cristallinité et différents taux de ramification. Des essais de relaxation ont également été menés sur des monocristaux. Il n'a pas été possible d'observer juste la partie amorphe, le polyéthylène ne pouvant être obtenu 100% amorphe, mais cela a été fait pour d'autres polymères relativement proches tels que les polypropylènes. Une revue complète des différentes approches est proposée par Boyd (Boyd, 1985a, Boyd, 1985b).

Analysons qualitativement dans un premier temps les résultats représentés schématiquement sur la Figure 3.24 (Ward, 1971) pour un PEhd et un PEbd radicalaire. Le PEbd est représenté par de longues chaînes de  $-(CH_2)-$  contenant un nombre important de courtes ramifications et quelques grandes ramifications pouvant atteindre la taille de la chaîne principale. Le polyéthylène haute densité comporte très peu de ramifications et se rapproche donc plus d'une parfaite chaîne de  $-(CH_2)-$ .

Pour le PEbd radicalaire les trois relaxations se produisent dans des domaines distincts, alors que pour le PEhd la relaxation  $\beta$  a quasiment disparu et, à la relaxation  $\alpha$ , semble s'ajouter une relaxation  $\alpha'$  à haute température.

Nous donnons ci-dessous quelques interprétations des origines de ces mécanismes de relaxation issues essentiellement des travaux de Mc Crum, Boyd et Alberola (McCrum et Morris, 1966, Boyd, 1985b, Alberola, 1989).

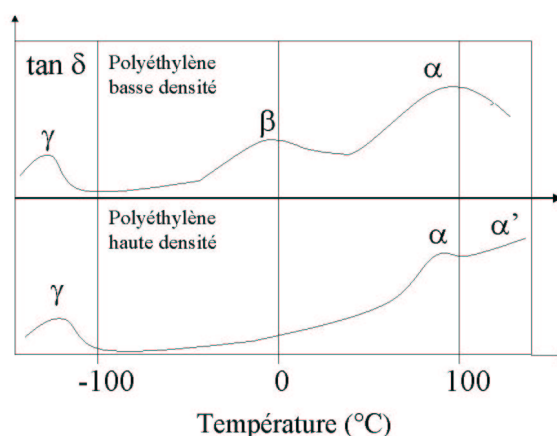


Figure 3.24 : représentation schématique des relaxations  $\alpha$ ,  $\beta$ ,  $\gamma$

a) Relaxation  $\gamma$ 

La relaxation  $\gamma$ , située dans l'intervalle de  $[-140$  à  $-120^\circ\text{C}]$ , est bien définie pour tous les polyéthylènes. Son origine est généralement reliée à la transition vitreuse de la phase amorphe. Cependant, on a prouvé son existence dans des matériaux presque 100% cristallins, donc elle intervient aussi dans la phase cristalline. Cette relaxation, située à très basse température, n'interviendra pas lors de la caractérisation de nos produits.

b) Relaxation  $\beta$ 

Cette relaxation, très large, est située aux environs de  $-20^\circ\text{C}$ . On suppose que l'amortissement  $\beta$  est sûrement engendré par des phénomènes de relaxation intervenant dans la phase amorphe du PEbd ramifié. Elle est bien représentée dans le cas du PEbd radicalaire et son intensité augmente avec le taux de ramification (Voir Figure 3.25), alors qu'elle est quasiment inexistante dans les PEhd et les PEbd linéaires. Son origine n'est cependant pas complètement établie :

- Boyd, (Boyd, 1985b), pense qu'il s'agirait de la transition vitreuse du PE. Il a montré que les isothermes de contraction du volume spécifique dans la région  $\beta$  présentent les caractéristiques d'une recouvrance structurale connue pour les systèmes vitreux.
- Alberola, (Alberola, 1989), associe la relaxation  $\beta$  à une deuxième transition vitreuse caractéristique des interactions de van der Waals entre les groupements latéraux ( $\text{CH}_3$ ) et les groupements ( $\text{CH}_2$ ) des chaînes principales.

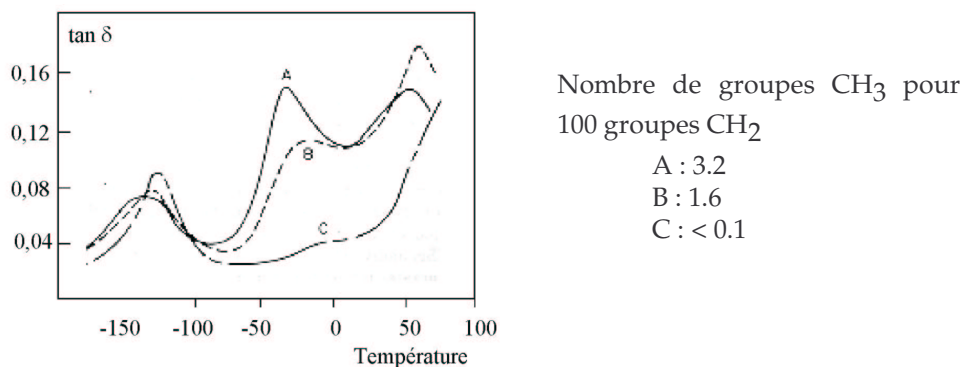


Figure 3.25 : évolution de  $\tan \delta$  en fonction du taux de ramification. (Ward, 1971)

c) Relaxation  $\alpha$ 

La relaxation  $\alpha$  est située dans l'intervalle de  $60$  à  $120^\circ\text{C}$  et serait composée de plusieurs sous relaxations. Elle est forcément associée à la présence d'une phase cristalline : l'amplitude du pic  $\alpha$  est une fonction croissante du taux de cristallinité et n'existe pas dans les matériaux amorphes. Cette relaxation existe dans le cas d'agrégats de monocristaux et apparaît également lors d'essais diélectriques représentatifs des mécanismes dans la phase cristalline. Néanmoins dans les semi-cristallins, il est désormais admis que le mécanisme met en jeu les deux phases : amorphe et cristalline.

La relaxation  $\alpha$  dépend de l'épaisseur des lamelles cristallines et de l'orientation des échantillons. Ces dépendances varient suivant le type de polyéthylène et suivant le mode de cristallisation (isotherme, recuit). Mc Crum et Morris montrent une variation de la relaxation si on usine les surfaces extérieures des échantillons obtenus sous presse (Figure 3.26). Cette relaxation est donc fortement dépendante de l'histoire thermomécanique du matériau.

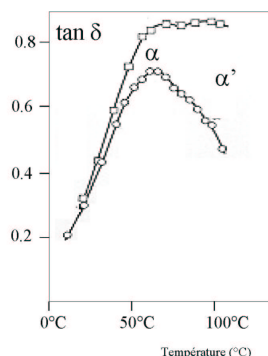


Figure 3.26 : influence des couches externes. (McCrum et Morris, 1966). :avant usinage, après usinage

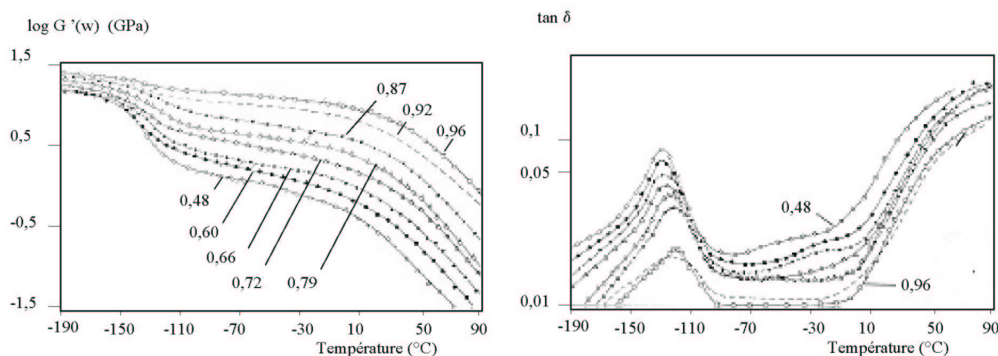
Alberola pense que l'existence de deux relaxations ( $\alpha$  et  $\alpha'$ ) est liée à la présence de deux populations de lamelles cristallines. Leurs positions en température sont corrélées à l'épaisseur la plus probable des petites et des grandes lamelles cristallines.

La relaxation  $\alpha$  ne suit pas le principe d'équivalence temps-température des matériaux thermo-rhéologiquement simples. Il est possible que pour le spectre de relaxation lié à la population des petites lamelles cristallines, cela soit dû à la fusion des lamelles lors de l'essai. Pour la population des grandes lamelles cela pourrait être dû à des variations du taux de cristallinité et à des modifications du module d'élasticité caoutchoutique de la phase amorphe (voir Jourdan (Jourdan, 1987)).

L'origine de la relaxation proviendrait de la diffusion de défauts thermiquement activés au sein des lamelles cristallines. Ce mécanisme élémentaire correspondrait à la relaxation diélectrique  $\alpha$ . La diffusion des défauts dans la phase cristalline va créer un niveau de contraintes locales au niveau des interfaces, les lamelles ayant tendance à se déformer. La déformation globale ne sera obtenue qu'après accommodation dans la phase amorphe environnante permettant le relâchement des contraintes internes engendrées.

### 3.3.2 Influence du taux de cristallinité

Les Figures 3.27 présentent les résultats d'Illers (Illers, 1973) obtenus pour des polyéthylènes basse densité linéaires sur une gamme importante de taux de cristallinité, de 0,48 à 0,96. Les modules  $G'$  et  $G''$  ont été mesurés sur un pendule de torsion lors de tests isochrones à 1Hz. La dépendance de  $\log G'$  en fonction du taux de cristallinité, représentée Figure 3.28, est presque linéaire pour des taux de cristallinité inférieurs à 0,80. L'impossibilité d'obtenir des polyéthylènes à faibles taux de cristallinité ne permet pas de prolonger les valeurs expérimentales à des taux plus faibles.



Figures 3.27 : évolution de  $G'$  et  $\tan \delta$  en fonction de la température pour différents taux de

crystallinité. Essai de torsion à 1Hz.

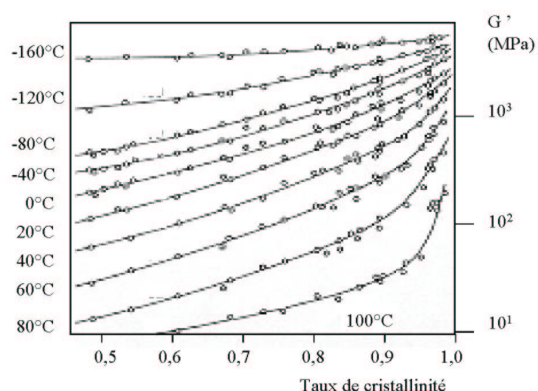


Figure 3.28 : évolution de  $G'$  en fonction du taux de cristallinité

Illers, (Illers, 1973), a comparé le comportement en fonction du taux de cristallinité des polyéthylènes linéaires avec celui des polyéthylènes radicalaires (Figure 3.29). Les résultats obtenus pour les polyéthylènes linéaires ne semblent pas être utilisables pour les radicalaires. La linéarité de  $\log G'$  en fonction du taux de cristallinité entre 0,5 et 0,8 obtenue précédemment n'est plus valable.

Dans le processus de formation des contraintes résiduelles, le matériau passe progressivement d'un état amorphe fondu à une structure de 50 à 60% cristalline. Afin de bien représenter le comportement mécanique du matériau il est donc nécessaire de tenir compte de la dépendance des modules vis à vis du taux de cristallinité.

L'étroit domaine de taux de cristallinité qu'il est possible d'obtenir pour les polyéthylènes radicalaires rend difficile toute extrapolation. Afin d'étendre ce domaine aux plus faibles taux de cristallinité, il faudrait pouvoir faire les mesures lors de la cristallisation. Ceci est possible pour les fréquences élevées et de faibles taux de cristallinité lors d'essais en cisaillement à partir de l'état fondu, mais uniquement pour de faibles surfusions à cause de la cinétique de cristallisation rapide des polyéthylènes.

#### Remarque

Le taux de cristallinité des matériaux étudiés a été déterminé à température ambiante par des tests de densitométrie. Illers n'a donc pas accès à la variation possible du taux de cristallinité lors d'un réchauffement. De plus, les essais n'ont pas été réalisés sur le même matériau ; il n'est pas possible avec un polyéthylène de faire varier le taux de cristallinité sur une telle gamme en modifiant uniquement les conditions de refroidissement. Il se peut donc que les variations mesurées ne soient pas uniquement dues aux taux de cristallinité.

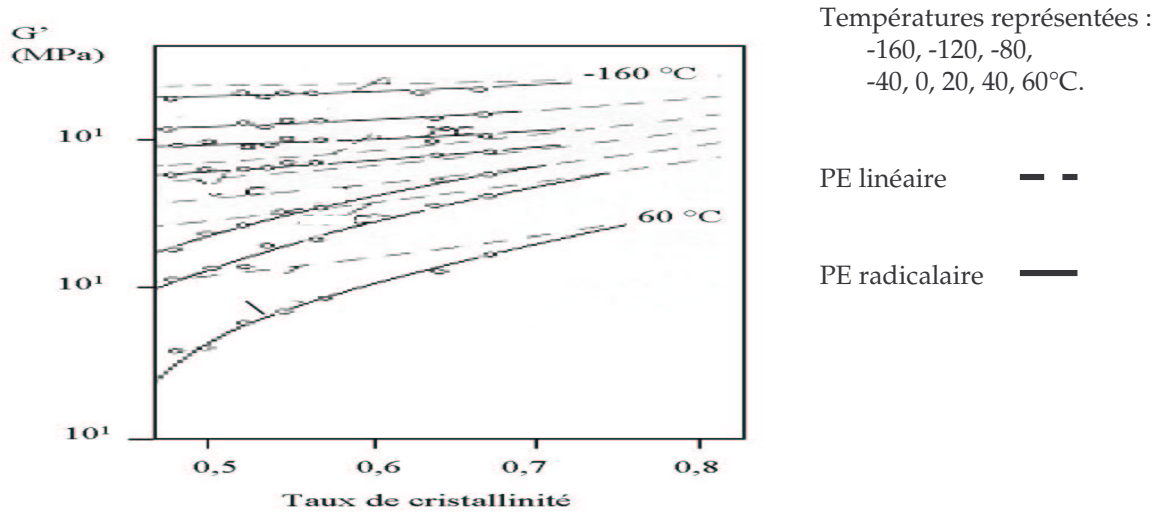


Figure 3.29 : différences de comportement entre les polyéthylènes linéaires et radicalaires

### 3.3.3 Modélisation du comportement viscoélastique

#### a) Modèle basé sur les phénomènes de relaxation

Boyd, (Boyd, 1984), propose une modélisation viscoélastique empirique à partir des essais de Illers, (Illers, 1973), (Figures 3.27) pour décrire l'influence du taux de cristallinité. Il représente chaque relaxation ( $\gamma, \beta, \alpha$ ) à l'aide du modèle de Cole-Cole parabolique introduit au paragraphe 3.2.1c). Il introduit une thermo-dépendance des paramètres de ce modèle telle que

$$G^*(\omega) - G_r = (G_u - G_r) \frac{(i\omega\tau^0)^h}{1 + (i\omega\tau^0)^h} \quad (3.32)$$

$$\log G_u = \log G_u^0 + S_u (T - T_0)$$

$$\log G_r = \log G_r^0 + S_r (T - T_0) \quad \text{relaxation } \alpha, \beta \text{ et } \gamma$$

$$\log \tau^0 = \frac{A}{T - T_\infty} + B$$

$$h = h_0 + h' (T - T_0) \quad \text{relaxation } \alpha, \beta \text{ et } \gamma$$

$T_0, T_\infty$  sont des températures arbitraires et  $S_u, S_r, h'$  sont les coefficients de proportionnalité par rapport à la température.

Chaque relaxation possède ses propres caractéristiques. Dans le cas de notre matériau comportant trois phénomènes de relaxation,  $G^*$  est égal à la somme des trois termes correspondant à chaque relaxation (Equation ci-dessous et Figure 3.30).



$$\begin{aligned}
 G^*(\omega) - G_r(\alpha) &= \left[ \begin{array}{c} (G_u(\alpha) - G_r(\alpha)) \frac{(i\omega\tau)^{h(\alpha)}}{1 + (i\omega\tau)^{h(\alpha)}} \\ (G_u(\beta) - G_r(\beta)) \frac{(i\omega\tau)^{h(\beta)}}{1 + (i\omega\tau)^{h(\beta)}} \\ (G_u(\gamma) - G_r(\gamma)) \frac{(i\omega\tau)^{h(\gamma)}}{1 + (i\omega\tau)^{h(\gamma)}} \end{array} \right] \begin{array}{l} (\alpha) \\ (\beta) \\ (\gamma) \end{array} \\
 G_u(\beta) &= G_r(\gamma) \quad ; \quad G_u(\alpha) = G_r(\beta)
 \end{aligned}
 \tag{3.33}$$

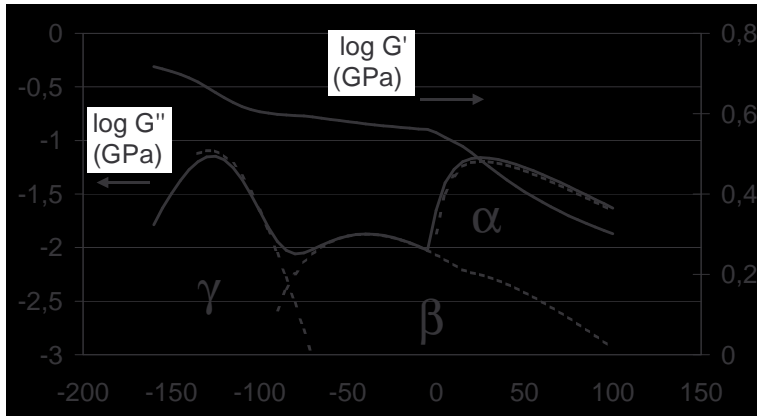


Figure 3.30 : prise en compte des trois mécanismes de relaxation

L'addition des mécanismes de relaxation est justifiée en considérant le spectre de relaxation du polyéthylène comme étant composé de trois sous-spectres indépendants chacun relié à un des mécanismes. Ces sous-spectres ont une thermo-dépendance qui leur est propre, ce qui explique que nous ne puissions pas effectuer de superposition temps-température du comportement global.

Boyd a identifié numériquement les paramètres ci-dessus à partir des résultats obtenus par Illers (Figures 3.27, Figure 3.28). Il teste ses résultats en reconstruisant à partir des spectres de relaxation obtenus des essais de fluage et dynamiques. Il obtient des résultats relativement satisfaisants en recalculant à posteriori un essai de relaxation sauf pour les longs temps de relaxation car il ne peut pas prendre en compte la relaxation  $\alpha'$ , n'ayant pas de données expérimentales dans ce domaine. Pour les essais dynamiques isothermes, il a été obligé de modifier légèrement ses paramètres initiaux afin de retrouver les résultats expérimentaux, la gamme de température utilisée est cependant trop faible pour pouvoir vérifier complètement le modèle. Les résultats obtenus sont néanmoins en bon accord avec l'expérience.

#### b) Méthodes d'homogénéisation - Modèles composites

Un polymère semi-cristallin est constitué d'une phase cristalline bien caractérisée et d'une phase amorphe moins bien connue. La réponse du matériau pourrait donc s'apparenter à celle d'un composite. Le polymère semi-cristallin est alors considéré comme un système hétérophasé constitué d'une matrice amorphe et d'inclusions cristallines. La phase cristalline est considérée comme une inclusion non sphérique dans une matrice. Néanmoins, les modèles classiques (Eshelby, Halpin-Tsai) ne peuvent rendre compte de la géométrie tridimensionnelle de la structure cristalline, très différente des ellipsoïdes, et de sa forte anisotropie. Afin de rendre compte de l'expérience, les auteurs ont été amenés à déterminer un facteur de forme ajustable permettant de se positionner entre les deux situations extrêmes de Voigt et Reuss.

Halpin et Kardos, (Halpin et Kardos, 1972), ont proposé de considérer les polymères semi-cristallins comme un matériau composite stratifié « quasi isotrope », c'est-à-dire constitué d'une superposition de plis dans lesquels les inclusions ont toutes la même orientation. Les plis sont ensuite disposés avec des orientations différentes. Plusieurs méthodes sont alors proposées pour le calcul des modules dans chaque pli.

La modélisation viscoélastique du matériau est obtenue suivant les mêmes lois que la modélisation élastique en remplaçant les grandeurs élastiques caractéristiques des phases par les grandeurs viscoélastiques.

Cependant, étant donné les fortes interactions physiques qui existent entre les phases, le matériau n'est pas un composite au sens habituel. Pour modéliser le comportement du matériau il faut étudier l'influence de la phase cristalline sur la phase amorphe. Si on considère une chaîne appartenant à la fois à la phase amorphe et à la phase cristalline, celle-ci est réticulée par la phase cristalline et n'a donc plus la même mobilité. Le module de la phase amorphe liée est alors beaucoup plus élevé que dans le cas purement amorphe. De plus, il faut considérer que l'influence de la phase cristalline n'est pas homogène dans la phase amorphe, les zones interfaciales étant beaucoup plus affectées.

Ainsi, pour rendre compte de l'expérience, les différents modèles sont obligés de modifier la valeur des modules de la phase amorphe en fonction du taux de cristallinité. Il n'est donc plus possible pour le polyéthylène d'obtenir ces valeurs à partir de la rhéologie à l'état fluide : le module de la phase amorphe est une inconnue du problème.

Jourdan, (Jourdan, 1987), cherche à séparer le comportement de la phase amorphe et de la phase cristalline du polypropylène. La seule inconnue est soit le module cristallin, soit le module amorphe selon le domaine de température concerné.

Dans la zone de relaxation  $\beta$  (phase amorphe), on peut effectivement considérer que la phase cristalline a un module constant et réel si les domaines de transition sont bien distincts. Cette hypothèse deviendra fautive à haute température ou basse fréquence. Les modules de la phase cristalline sont alors évalués à partir de données bibliographiques et les dimensions des lamelles cristallines à partir de mesures de rayons X aux petits angles. Elle déduit des résultats expérimentaux le comportement de la phase amorphe en se servant la relation 3D d'Halpin Kardos, (Halpin et Kardos, 1972), et montre que l'on peut en modéliser le comportement avec un modèle biparabolique.

Parallèlement, le comportement de la phase cristalline est appréhendé à partir de la mobilité de ses défauts. En se servant du modèle simplifié 2D de Halpin Tsai, (Tsai et al., 1968), elle peut alors reconstruire le comportement global du matériau.

Les résultats présentés rendent bien compte de l'expérience. Il faut néanmoins préciser que ces résultats ne permettent pas de prendre en compte l'influence d'un taux de cristallinité variable sur les propriétés de la matrice. Il faudrait aussi avoir accès à l'évolution du module de la phase amorphe avec le taux de cristallinité. De plus, le comportement de la phase cristalline est assez simplifié et ne prend pas en compte les interactions avec la phase amorphe.

Cette approche n'est possible que si les relaxations ( $\alpha, \beta, \gamma$ ) sont bien discernables dans l'évolution de  $G'$  et  $G''$  en fonction de la fréquence. Elle reste donc délicate d'utilisation pour les polyéthylènes.

### 3.4 Application : Comportement mécanique des polyéthylènes lors du refroidissement :

Les résultats présentés ci-dessus mettent en avant la complexité des mécanismes dont dépend le comportement global du matériau ainsi que l'influence du taux de cristallinité. Ces résultats ont été obtenus sur des matériaux à taux de cristallinité constant dont la structure avait été stabilisée par des recuits proches de la température de cristallisation. Or, le calcul des contraintes résiduelles nécessite de déterminer le comportement viscoélastique pendant le refroidissement. Pour notre étude, nous avons besoin de l'évolution des propriétés mécaniques lors de la cristallisation, le taux de cristallinité évoluant de 0 à 50% et la structure devant être la même que pendant le refroidissement des tubes. Avant d'aborder l'évolution du comportement mécanique, nous allons analyser succinctement la cristallisation et la fusion du PEbd à 1°C/min en utilisant des résultats obtenus par DSC. Ceci nous permettra de comparer l'évolution du comportement mécanique au taux de cristallinité.

Le comportement mécanique dans le domaine fluide (polymère non cristallisé) a été étudié uniquement en cisaillement entre plans parallèles. La modélisation du comportement est relativement classique (§ 3.4.3). Le traitement des résultats est similaire pour les polyéthylènes haute et basse densité.

Afin de déterminer l'évolution des propriétés mécaniques lors de la transition fluide - solide, nous avons effectué des mesures de cisaillement entre plans parallèles lors de la cristallisation et de la fusion (cf.§ 3.4.4). Cette caractérisation a pour objectif de relier les lois de comportement obtenues dans le domaine solide et le domaine fluide.

#### 3.4.1 Influence du taux de cristallinité

Les résultats présentés dans la partie 3.3 montrent que le comportement mécanique des polyéthylènes solides peut être décrit à partir de trois paramètres : le temps, la température et le taux de cristallinité. Nous avons vu que ce dernier est fortement dépendant de la température et de l'évolution de la température. Ainsi, étant donné l'influence du taux de cristallinité (voir 3.3.2), nous ne devrions pas avoir le même comportement en fusion et en cristallisation. Ceci pose un problème pour la détermination du comportement mécanique lors de la cristallisation, les méthodes expérimentales dans le fluide ne pouvant être poursuivies dans le solide et vice versa.

Si le temps et le taux de cristallinité étaient les deux paramètres principaux, nous pourrions simplement décaler les températures d'essai de la valeur de la surfusion, celle-ci pouvant être déterminée par DSC (nous appelons surfusion la différence entre les températures de fusion et de cristallisation expérimentales). Nous verrons au § 3.4.4 que ceci est valable au début de la cristallisation.

Cependant, nous savons que la température, en dehors de son influence sur le taux de cristallinité, a également une influence importante sur la relaxation des contraintes. Ceci ne nous permet pas d'effectuer aussi simplement le glissement des résultats expérimentaux sur l'ensemble du domaine de température étudié. Afin de quantifier l'influence de la différence du taux de cristallinité entre la fusion et la cristallisation, nous avons effectué le cycle de température de la Figure 3.31 lors d'essais de torsion à 1 rad/s. Même si cette méthode n'est pas équivalente à des mesures lors de la cristallisation, elle peut permettre d'estimer l'influence de la cristallisation secondaire. Les résultats sont identiques pour les deux matériaux (Figure 3.32) :

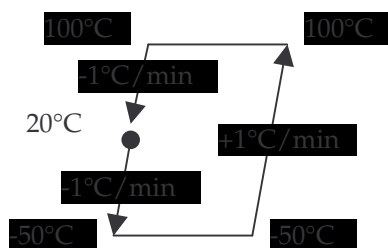
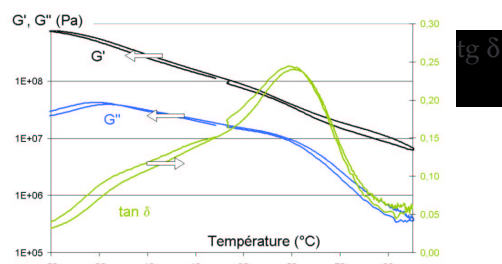


Figure 3.31 : cycle de température


 Figure 3.32 : évolutions des modules  $G'$  et  $G''$  lors d'un cycle de température

Nous commençons par faire un cycle en refroidissant l'échantillon de 20°C jusqu'à -50°C et en le réchauffant à nouveau à 20°C. Cette première étape permet de quantifier l'erreur expérimentale due au gradient thermique présent dans l'échantillon. L'échantillon est ensuite chauffé jusqu'à 100°C, température à laquelle 50% de la structure cristalline a fondu, puis est à nouveau refroidi jusqu'à 20°C. Nous constatons pour les deux matériaux que la différence entre les courbes de fusion et de recristallisation est équivalente à l'erreur mesurée entre 20°C et -50°C.

Nous pouvons donc conclure que la surfusion n'a que peu d'influence sur le comportement mécanique dans ce domaine de température ; le comportement mécanique est donc indépendant de la vitesse de refroidissement. Nous remarquons également que le taux de cristallinité évoluant lors des mesures, son influence sur le comportement mécanique est déjà incluse dans les résultats expérimentaux. Nous pouvons donc, en première approximation, déterminer un modèle n'incluant pas le taux de cristallinité, l'influence de celui-ci étant prise en compte dans l'influence de la température. Néanmoins ce modèle n'aura pas le sens physique des modèles basés sur les phénomènes de relaxation ou des modèles composites. Une modification sera apportée à ce modèle lors de l'étude de la zone de transition fluide - solide correspondant au début de la cristallisation (§ 3.4.4).

### 3.4.2 Comportement mécanique en cisaillement

#### a) Comportement viscoélastique linéaire

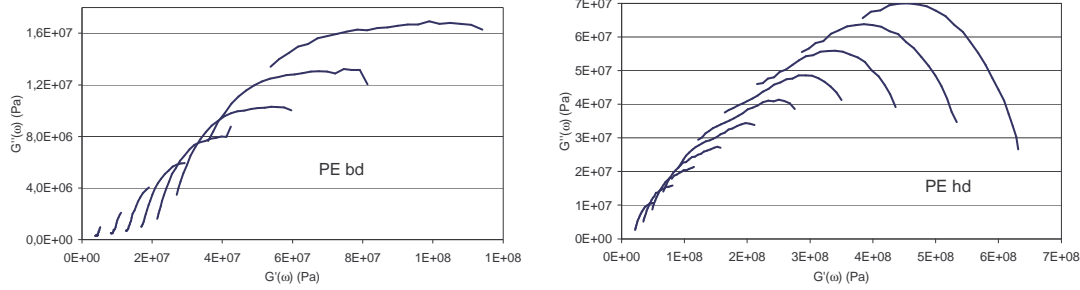
Le premier test consiste à vérifier les hypothèses de linéarité entre les déformations et les contraintes qui seront à la base de toute l'analyse suivante. Les polymères semi-cristallins sont connus pour avoir un étroit domaine de linéarité et il est conseillé de ne pas utiliser des déformations supérieures à 1%, (Boyd, 1985a). A température et fréquence constantes, on mesure les modules de cisaillement en fonction de la déformation : tant que le module reste constant nous sommes dans le domaine linéaire. Dans les expériences suivantes nous avons choisi une déformation de 0,5% afin de garantir la linéarité.

#### b) Choix du mode de superposition temps-température

Les thermo-dépendances que nous avons introduites au § 3.2.2 sont assez simplificatrices du comportement général des polyéthylènes détaillé au § 3.3. Or, comme nous l'avons signalé, les résultats peuvent facilement sembler satisfaisants du fait des grandes échelles logarithmiques et de la pente de  $G'(\omega)$  qui est faible et régulière. Ces comportements simplifiés, principe de superposition temps-température avec ou sans glissement vertical, impliquent également des évolutions particulières des grandeurs mécaniques.

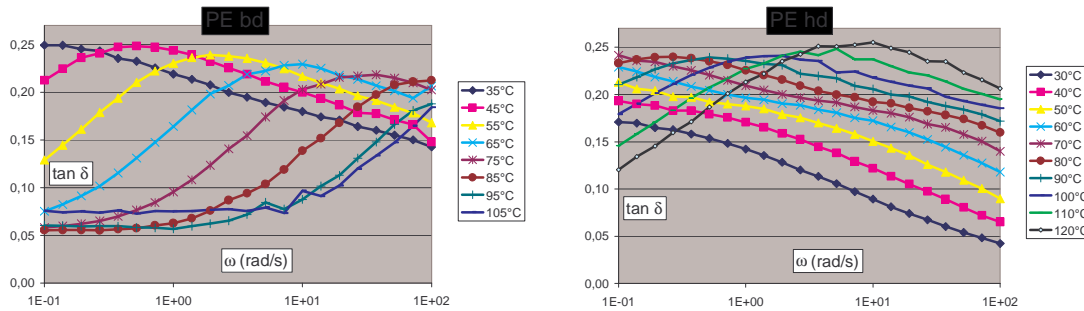
- Principe de superposition temps-température simple : nous avons déjà montré que dans ce cas les résultats représentés dans un diagramme de Cole-Cole  $G''(G'(\omega, T))$

doivent se superposer en une courbe unique. Ce n'est clairement pas le cas pour nos matériaux (Figures 3.33).



Figures 3.33 : diagramme de Cole-Cole, vérification du principe de superposition temps-température

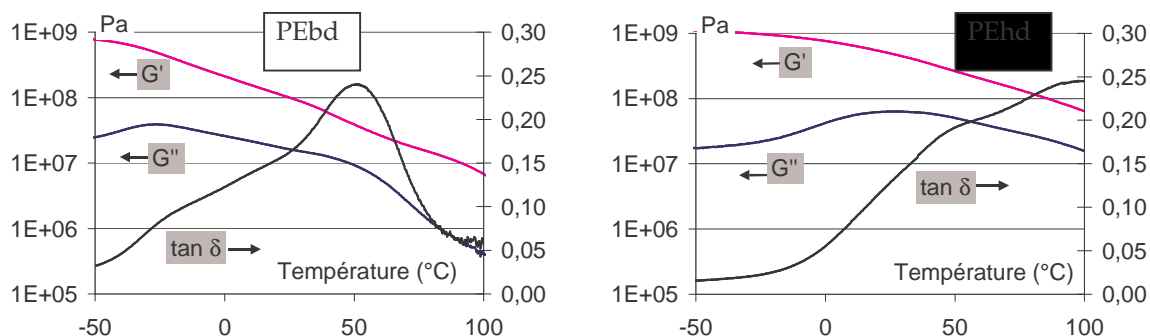
- Principe de superposition temps-température avec glissement vertical : nous avons remarqué au § 13.2.2b ) que le décalage vertical n'a pas d'influence sur les valeurs de  $\tan \delta$ . Un décalage vertical des courbes de modules n'affecte donc pas la valeur du maximum de  $\tan \delta$ . Ce maximum étant visible dans la plage de fréquence expérimentale pour les polyéthylènes, cette méthode est un moyen simple de vérifier ce principe de superposition temps-température.



Figures 3.34 : évolution de  $\tan \delta$  ; valeur des maxima

On observe ainsi que le principe de superposition avec décalage vertical est valable pour le PEhd pour des températures comprises entre 80 et 110°C. En dessous de 80°C le maximum de  $G''$  n'est pas observable dans la fenêtre expérimentale et au dessus de 110°C le maximum a tendance à augmenter légèrement, c'est aussi le domaine où les hypothèses précédentes sur le rôle de la cristallinité ne sont certainement plus valables.

Par contre, ce principe ne correspond pas exactement au comportement des PEbd radicalaires. Nous avons vu au § 3.3 que les relaxations  $\alpha$  et  $\beta$  se manifestaient de façon différente dans les polyéthylènes basse et haute densité. Ces différences se retrouvent dans l'évolution de  $\tan \delta$  lors d'un essai isochrone (Figures 3.35). Pour les PEhd, la relaxation  $\beta$  située entre -20 et 0°C est inexistante et les relaxations  $\alpha$  et  $\alpha'$  sont visibles à plus haute température (Figures 3.35). Pour les PEbd, les relaxations  $\alpha$  et  $\beta$  se superposent, la relaxation  $\alpha$  ayant néanmoins une influence prédominante dans l'évolution de  $\tan \delta$ . Ces deux relaxations n'ayant pas la même dépendance temps-température, cela peut être la cause de la déviation du principe de superposition temps-température (voir § 13.2.2c)). Une caractérisation plus complète de la thermo-dépendance du PEbd n'a pour l'instant pas été traitée.



Figures 3.35 : essai isochrone (1Hz)

Remarque :

Dans le domaine de température pour lequel nous déterminons ci-dessus le comportement mécanique, le taux de cristallinité n'intervient pas comme paramètre. Son influence, déjà présente dans les résultats expérimentaux, est incluse dans le glissement vertical nécessaire pour représenter la thermo-dépendance des matériaux

Si les maximums de  $\tan \delta$  ou  $G''$  ne sont pas observables, il est moins évident de juger de la pertinence de la superposition temps-température, dans ce cas Mc Crum et Morris, (McCrum et Morris, 1966), proposent une méthode plus appropriée.

### c) Détermination des coefficients de glissement

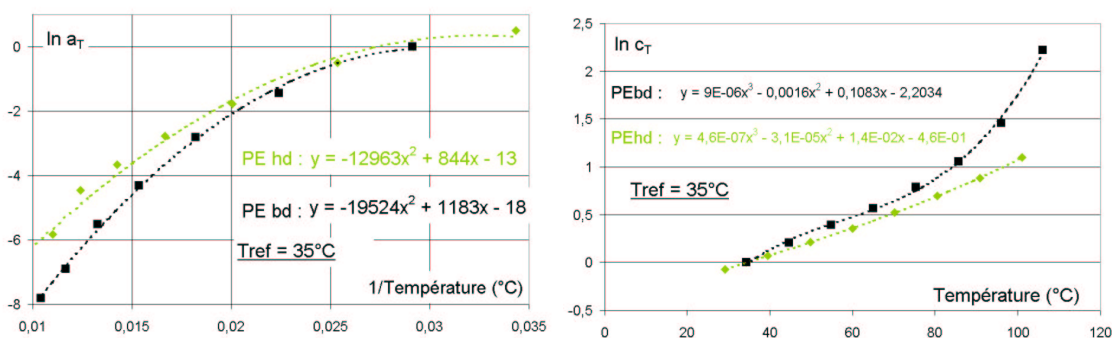
Si le matériau est thermo-rhéologiquement simple, le coefficient de superposition horizontal est obtenu en glissant horizontalement les courbes de module jusqu'à ce qu'elles se superposent. Si un décalage vertical est nécessaire nous proposons la méthode suivante :

Coefficient horizontal  $a_T$  : lors de la superposition temps-température les courbes des modules  $G'(\omega, T)$ ,  $G''(\omega, T)$  et de  $\tan \delta(\omega, T)$  doivent chacune se confondre en une seule courbe. Les valeurs de  $\tan \delta$  n'étant pas modifiées par le glissement vertical, le facteur de glissement horizontal se détermine en faisant glisser les courbes de  $\tan \delta$  jusqu'à ce qu'elles se superposent avec la courbe de référence à  $T_0$ . La présence d'un maximum simplifie le traitement, le décalage horizontal étant égal au rapport des fréquences des maximums de  $\tan \delta(\omega, T_0)$  et de  $\tan \delta(\omega, T)$ . Si le principe de superposition est valable, cette méthode est aussi possible avec les maximums de  $G''$  et l'on doit retrouver les mêmes facteurs de glissement. Nous avons préféré travailler avec les maximums de  $\tan \delta$ , car ils sont observables dans la fenêtre expérimentale pour les deux matériaux.

Coefficient vertical  $c_T$  : il est déterminé après avoir effectué le décalage horizontal, en faisant glisser verticalement les courbes  $G'$  ou  $G''$  jusqu'à ce qu'elles se superposent. Si les maximums de  $G''$  sont observables,  $c_T$  est alors égale au rapport des maxima de  $G''(\omega, T)$  et de  $G''(\omega, T_0)$ .

### d) Résultats obtenus :

Les glissements horizontaux et verticaux sont représentés Figures 3.36, les comportements des 2 polymères ont une dépendance temps-température très similaire. La comparaison des résultats est délicate puisque ce principe ne correspond pas exactement au comportement du PEBd. En effectuant les glissements horizontaux en se servant des maxima de  $\tan \delta$ , nous décrivons la thermo-dépendance de la relaxation  $\alpha$ , celle-ci étant prédominante dans l'évolution de  $\tan \delta$ . Nous observons que cette relaxation a la même thermo-dépendance pour les deux polyéthylènes.

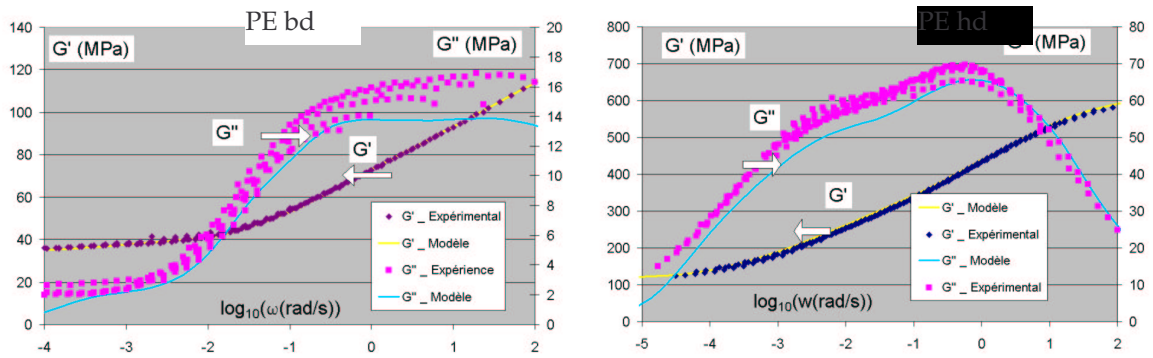
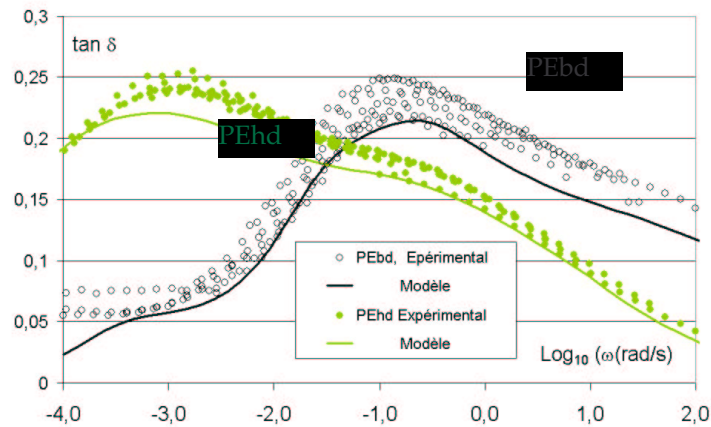


Figures 3.36 : coefficients de glissement horizontal et vertical

Le décalage vertical des 2 polymères est également similaire depuis les basses températures jusqu'à  $70^\circ\text{C}$ . Au dessus, il y a une augmentation significative du coefficient  $c_T$  pour le polyéthylène basse densité. Cette température est proche de celle observé pour le maximum de la relaxation  $\alpha$  à la Figures 3.35. La fusion partielle de la structure cristalline, commençant à plus basse température pour le PEbd que pour le PEhd, peut aussi expliquer cette différence d'évolution.

Les courbes maîtresses obtenues pour les deux polyéthylènes sont reportées Figures 3.37 et Figure 3.38, la température de référence est de  $35^\circ\text{C}$ .

- Pour le PEhd les points expérimentaux se superposent correctement en une courbe unique, sauf les résultats obtenus à  $120^\circ\text{C}$  comme nous l'avions précisé. Le glissement horizontal effectué à partir des valeurs de  $\tan \delta$  est équivalent à celui de  $G''$ , les maximums des courbes après glissement étant bien situés aux mêmes fréquences. On observe sur les courbes maîtresses de  $G''$  et  $\tan \delta$  la présence des deux relaxations  $\alpha$  et  $\alpha'$ . Les relaxations correspondant à ce domaine fréquence - température sont décrites complètement puisque les courbes de  $G''$  et  $\tan \delta$  semblent tendre vers 0 aux limites du domaine de fréquence. Ceci est confirmé par les évolutions du module  $G'$  aux hautes et basses fréquences qui semblent tendre vers des asymptotes horizontales, correspondant à des domaines élastiques assimilables aux comportements vitreux et caoutchoutique. D'autres relaxations existent mais sont distinctes et extérieures au domaine fréquence-température étudié (par exemple la relaxation  $\gamma$  à très basse température, mais qui ne nous intéresse pas pour modéliser notre procédé).
- Pour le PEbd, on vérifie que même si l'évolution de  $G'$  semble correcte, les points expérimentaux de  $G''$  et  $\tan \delta$  pour différentes températures ne se superposent pas. Nous remarquons ici à nouveau l'intérêt du traitement de la loi de comportement à l'aide de toutes les grandeurs dynamiques. Celles-ci sont bien adaptées et peuvent permettre d'éviter les erreurs lors des traitements de superposition temps-température. Afin de représenter le comportement du PEbd, il est nécessaire de déterminer la thermo-dépendance de chacune des relaxations  $\alpha$  et  $\beta$ . Pour séparer les deux domaines, il serait utile d'avoir accès à des fréquences plus élevées. Or, les essais ont déjà été réalisés jusqu'à  $100 \text{ rad/s}$ , les domaines de plus hautes fréquences restent difficilement accessibles.


 Figures 3.37 : courbes maîtresses  $G'$ ,  $G''$ . Température de référence = 35°C

 Figure 3.38 : courbes maîtresses,  $\tan \delta$ . Température de référence = 35°C

### e) Détermination du spectre de Maxwell multimode discret

Afin de modéliser la formation des contraintes résiduelles nous avons besoin de connaître le comportement en relaxation des polyéthylènes étudiés. Nous avons noté au § 3.2.1c) que le module de relaxation,  $E(t)$ , dépend, au temps  $t$ , de la même fraction du spectre de relaxation que  $G'(\omega)$  pour  $\omega=1/t$ . Nous interpolerons donc les paramètres du modèle afin de représenter au mieux l'évolution de  $G'$  et nous contrôlerons sa pertinence en fonction de la restitution de  $G''$  et de  $\tan \delta$ .

Les caractéristiques mécaniques des matériaux peuvent être modélisées à l'aide d'un modèle de Maxwell multimode. Un des éléments ayant un temps de relaxation infini, il est équivalent au modèle de Zener. Le comportement du matériau est bien défini uniquement à l'aide d'un spectre de relaxation continu, soit avec un nombre d'éléments infini. En utilisant un spectre de relaxation discret, les valeurs de  $G_i$  et la précision vont dépendre des valeurs choisies de  $\tau_i$  et du nombre d'éléments. Il est important de situer les temps de relaxation dans les domaines où l'on observe des variations importantes du module  $G'(\omega)$  (équivalent à  $G''(\omega)$  passe par un maximum).

La valeur de  $G'(\omega)$  est peu influencée par les temps de relaxation inférieurs à  $1/\omega$ . Les éléments du spectre de relaxation sont donc déterminés du temps le plus long au temps le plus court en interpolant le module  $G'(\omega)$  des basses aux hautes fréquences. Les résultats obtenus sont reportés dans le Tableau 3.1 et les évolutions de  $G'$ ,  $G''$  et  $\tan \delta$ , reconstruites à partir de ce modèle, sont superposées aux courbes maîtresses (Figures 3.37 et Figure 3.38). Nous constatons que la modélisation de  $G''$  et  $\tan \delta$  pour le PEhd suit l'évolution des résultats expérimentaux, mais donne des valeurs légèrement inférieures aux basses fréquences. Ceci doit être dû à la détermination du module de l'élément élastique, élément ayant un temps de relaxation infini. La description de la relaxation



n'étant pas complète sur le domaine de fréquence on surestime celui-ci. Pour le PEbd, nous ne pouvons pas construire aussi précisément les courbes maîtresses, mais nous retrouvons également la tendance des résultats expérimentaux.

N° de l'élément	PE bd		PE hd	
	$\tau_i$ (s)	$G_i$ (MPa)	$\tau_i$ (s)	$G_i$ (MPa)
1	0,001	10	0,0605	20
2	0.0032	10	0,019	20
3	0,01	10	0,605	43
4	0,032	10,8	0,19	45
5	0,1	9,9	6,05	55
6	0,32	10	3,2	55
7	1	10	60,5	50
8	3,2	12	19	43
9	10	7,5	605	43
10	32	7,5	190	42
11	100	1,5	6 050	37
12	320	1,2	1 900	30
13	1 000	1,5	60 500	24
14	3 200	2	19 100	15
15	infini	35	infini	130

Tableau 3.1 : Couples ( $G_i, \tau_i$ ) décrivant le comportement à l'état solide

Les modules de relaxation déduits du modèle sont représentés Figure 3.39. L'évolution de la relaxation du PEbd est décalée d'une décade vers les faibles temps de relaxation, les contraintes dans ce matériau vont donc se relaxer 10 fois plus vite. Les modules du PEhd sont 5 fois supérieurs au module du PEbd. Le haute densité est plus rigide que le basse densité.

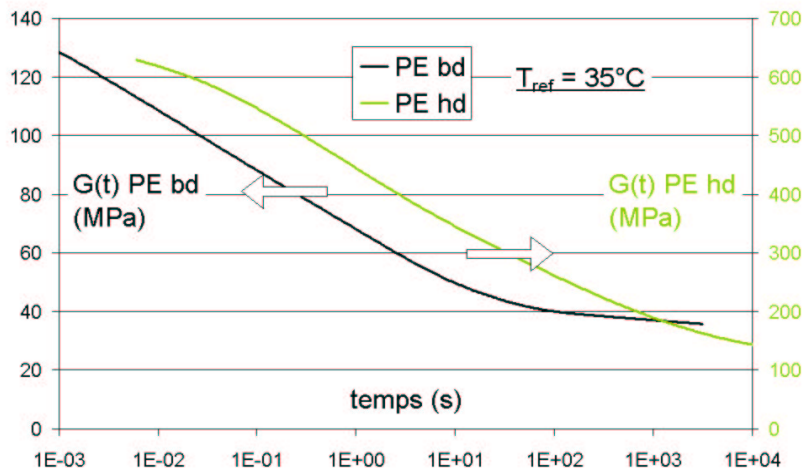


Figure 3.39 : différence d'évolution des modules de relaxation des polyéthylènes haute et basse densité

### 3.4.3 Etat fluide

Les courbes de  $G''(G')$  effectuées à différentes températures se superposent en courbe unique (Figure 3.40) : la loi de comportement au dessus de la température de fusion obéit au principe de superposition temps-température simple. Les mesures ont été réalisées entre plans parallèles sur l'intervalle de fréquence 0,01 à 100 rad/s. Le domaine de température est compris entre la température de début de cristallisation ( PEbd :110°C,

PEhd :130°C) et 190°C à cause de problèmes de réticulation aux températures supérieures.

La méthode de superposition temps-température a été précisée lors du traitement à l'état solide. Nous ne présenterons ici que les courbes maîtresses et l'évolution des coefficients de glissement.

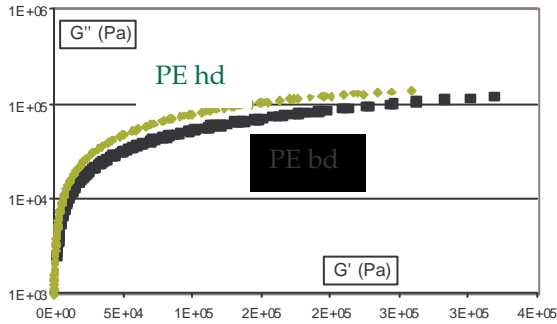


Figure 3.40 : courbes de Cole-Cole à l'état fluide

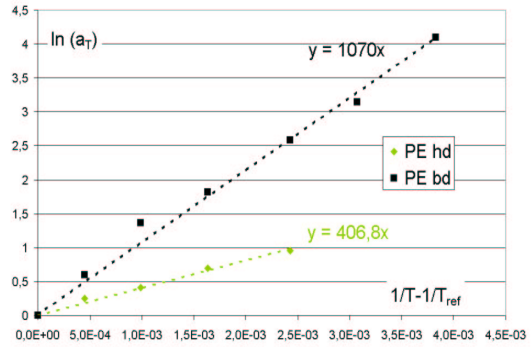
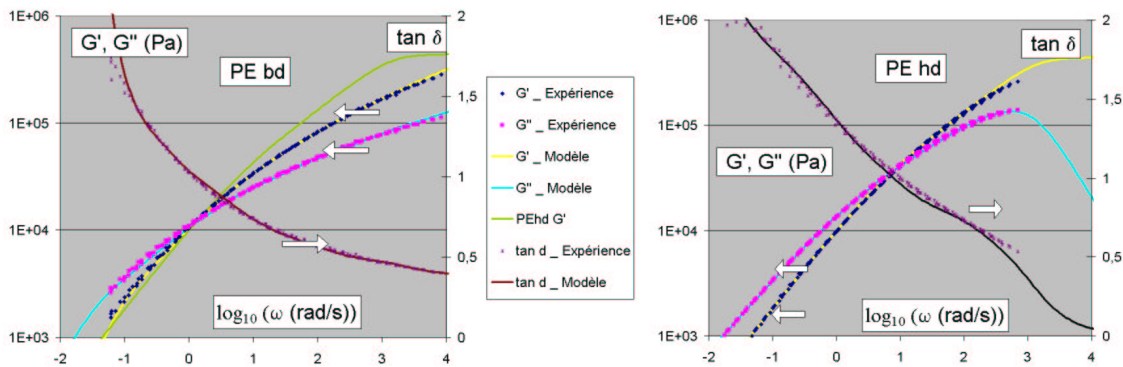


Figure 3.41 : facteurs de glissement  $T_{ref}=190^{\circ}C$

L'évolution des facteurs de glissement est représenté sur la Figure 3.41. Pour les deux matériaux  $\ln(a_T)$  peut être interpolé par une droite passant par l'origine : la thermo-dépendance obéit à une loi d'Arrhenius. La pente, représentant l'énergie d'activation de la viscosité, est environ deux fois plus élevée pour le PEbd. Figures 3.42, le module  $G'$  du PEhd est également reporté sur la figure de gauche afin de pouvoir comparer les comportements des deux polyéthylènes. Les courbes maîtresses des deux matériaux sont similaires aux basses fréquences (hautes températures), mais aux hautes fréquences, à 1000 rad/s, le module  $G'$  du PEhd est deux fois plus élevé. Le comportement des deux matériaux est donc équivalent aux hautes températures (190°C) mais une différence sensible apparaît lorsque l'on s'approche de la température de cristallisation. La différence de thermo-dépendance permet de décrire un domaine de fréquence plus important pour le PEbd.



Figures 3.42 : courbes maîtresses,  $T_0=190^{\circ}C$

Le comportement du matériau peut être modélisé par une loi de Maxwell multimode représentée en trait continu sur les Figures 3.42. La modélisation rend bien compte du comportement des matériaux, il est néanmoins important de noter que ce modèle n'est valable que dans le domaine de fréquence élargi par la superposition temps-température. Au delà de ce domaine, les modules sont nuls aux basses fréquences et le comportement est purement élastique aux hautes fréquences. Les paramètres des modèles sont précisés dans le Tableau 3.2, ils permettent de déduire des mesures réalisées en dynamique les modules de relaxation (Figure 3.43). Nous retrouvons les résultats constatés sur les

courbes maîtresses en considérant  $t=1/\omega$ , les temps courts correspondent aux hautes fréquences et vice versa.

N° de l'élément	PE bd		PE hd	
	$\tau_i$ (s)	$G_i$ (kPa)	$\tau_i$ (s)	$G_i$ (kPa)
1	$1,0 \cdot 10^{-5}$	170	0,001	160
2	$2,5 \cdot 10^{-5}$	120	0,0025	90
3	$6,2 \cdot 10^{-5}$	80	0,0063	70
4	$2,0 \cdot 10^{-4}$	75	0,0158	40
5	$6,0 \cdot 10^{-4}$	68	0,04	28
6	$1,9 \cdot 10^{-3}$	43	0,1	23
7	$5,8 \cdot 10^{-3}$	37,8	0,25	12
8	$1,8 \cdot 10^{-2}$	27,5	0,63	8
9	$5,6 \cdot 10^{-2}$	19	1,58	4
10	0,17	15	4	2
11	0,54	8	10	1
12	1,68	5	25,1	0,5
13	5,25	2,1	63	0,35
14	13,3	2,1	158,5	0,15

Tableau 3.2 : Valeurs des éléments de Maxwell  $T_0=190^\circ\text{C}$ .

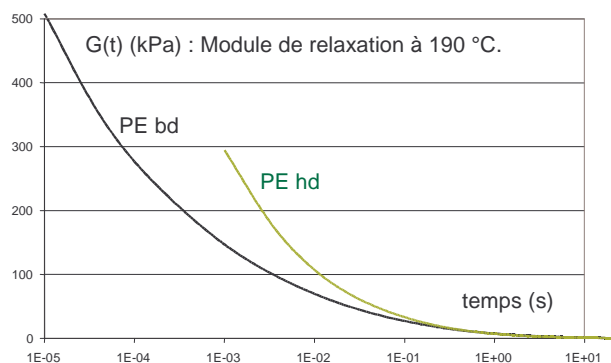


Figure 3.43 : différence d'évolution des modules de relaxation des polyéthylènes haute et basse densité

### 3.4.4 Transition fluide solide

La cristallisation induit une brusque variation du volume spécifique du matériau. La différence de comportement mécanique et de volume spécifique dans l'épaisseur étant les causes essentielles de la formation des contraintes résiduelles d'origine thermique, il est nécessaire de mieux déterminer le comportement dans cette zone de transition.

Afin de pouvoir modéliser l'évolution du comportement mécanique lors de la cristallisation, nous avons réalisé un essai de cisaillement entre plans parallèles, à une fréquence fixée, en imposant un cycle de température (Figure 3.44). Les vitesses de refroidissement et de chauffage utilisées lors de l'analyse de la cinétique de cristallisation par DSC ont été reprises.

Le refroidissement n'étant pas appliqué par palier, la fréquence fixée doit être suffisamment élevée afin de réaliser la mesure dans un faible intervalle de température : le temps de mesure pour une fréquence de 10 rad/s est de 6s, à 0,1rad/s il est de 128s et à 0,001 rad/s il est de 1260s. Le retrait thermique de l'échantillon est compensé en imposant une faible force axiale constante de 0,1N. L'essai de cisaillement plan-plan est normalement utilisé pour la caractérisation des fluides de faible module, il n'est donc pas possible de déterminer le comportement jusqu'à température ambiante, le matériau étant trop rigide. Néanmoins il peut fournir des informations au début de la cristallisation. Ces

résultats sont superposés Figure 3.45 aux résultats de torsion précédents obtenus à la même fréquence.

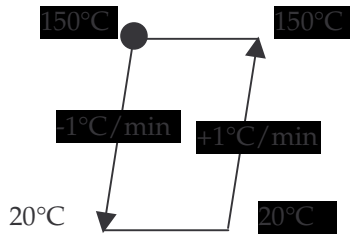


Figure 3.44 : cycle de température

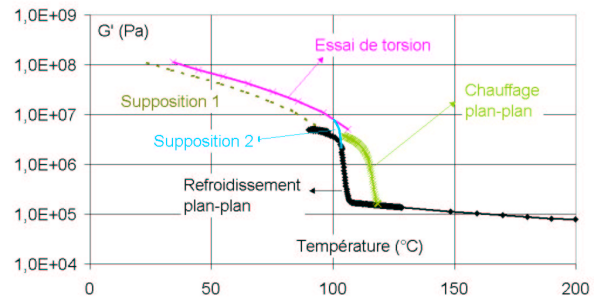


Figure 3.45 : évolution de  $G'$  lors de la cristallisation et de la fusion

Les températures de début de cristallisation et de fin de fusion sont identiques à celles mesurées par DSC et nous retrouvons le même phénomène de surfusion que précédemment. En effet, la mesure des modules lors du refroidissement peut être utilisée pour caractériser les cinétiques de cristallisation, (Boutahar et al., 1998). L'influence du taux de cristallinité sur les propriétés mécaniques est bien du premier ordre au début de la cristallisation.

Les résultats obtenus dans le solide sont alignés avec les résultats obtenus lors de la fusion. On remarque sur la Figure 3.45 que la mesure entre plans parallèles est valable jusqu'à des modules d'environ 2 MPa. On peut alors se poser la question du décalage des modules lors de la fusion et de la cristallisation. Faut-il décaler les courbes obtenues dans tout le domaine solide de la valeur de la surfusion (supposition 1 ; Figure 3.45) ? Ou considérer que la mesure des modules entre plans parallèles n'étant plus valable au dessus de 2 MPa, on peut prolonger les résultats jusqu'aux résultats obtenus dans le solide (supposition 2, Figure 3.45) ?

Les résultats présentés au § 13.4.1, nous ont amenés à préférer la deuxième de ces solutions. Nous considérons une zone de transition entre l'état fluide et 25% de taux de cristallinité. Le taux de cristallinité de 25% correspond à un changement de pente dans l'évolution de la structure cristalline, c'est la fin de la cristallisation primaire (Figure 3.4). Dans cette zone, le module est déterminé par une loi de mélange entre le comportement fluide et le comportement solide, ayant comme paramètre le taux de cristallinité,  $\chi_c$ .

$$G'(\omega, T) = ((0.25 - \chi_c) G'_{\text{fluide}} + \chi_c G'_{\text{solide}}) / 0.25 \quad (3.34)$$

Le taux de cristallinité est modélisé par une loi de type Ozawa. L'utilisation de ce modèle dans cette zone permet de prendre en compte la surfusion. Par rapport aux autres modèles, la température de figeage, correspondant au passage liquide – solide, est alors dépendante de la vitesse de refroidissement.

Le modèle de Maxwell multimode conserve la « mémoire » du chargement mécanique. Si la déformation vient juste de se produire, elle se traduit par un chargement de tous les éléments du modèle. Si elle s'est produite il y a un temps  $t$ , elle n'aura une influence que sur les éléments ayant un temps de relaxation supérieur à  $t$ .

Or, lors de la cristallisation la matière se fige et « oublie » ainsi son chargement mécanique précédent tant qu'elle n'est pas réchauffée au dessus de la température de cristallisation. Les temps de relaxation liquide et solide ne sont pas continus lors la transition. Nous ne décrivons dans ce chapitre que les propriétés mécaniques du

matériau, il nous faudra donc affiner la transition fluide-solide. Ce traitement correspond davantage à l'étude mécanique du procédé qui sera traité au chapitre 5.

### 3.5 Conclusion

Dans les trois premiers paragraphes ont été rappelées les notions nécessaires à une description satisfaisante du comportement mécanique des polyéthylènes. Nous allons conclure cette analyse en rappelant les points clé du dernier paragraphe concernant l'étude des polyéthylènes pendant le refroidissement. Pour ceci nous reprendrons les comportements mécaniques que nous avons définis dans l'ordre où ils apparaissent durant le procédé :

- Le comportement à l'état fluide vérifie le principe de superposition temps-température. Il est correctement représenté par un modèle de Maxwell multimode.
- Le comportement lors de la transition fluide - solide est principalement dépendant du taux de cristallinité. Les modules seront déterminés par une loi de mélange simple avec le taux de cristallinité comme paramètre. Celui-ci sera déterminé en intégrant les résultats obtenus en DSC dans une loi de type Ozawa représentant la cinétique de cristallisation anisotherme.
- Le comportement à l'état solide est plus complexe à cause de la présence de plusieurs phases et de l'instabilité de la structure. La variation du taux de cristallinité n'interviendra pas directement comme paramètre dans la modélisation des grandeurs mécaniques, puisqu'elle est déjà présente dans les résultats expérimentaux, intégrée dans la thermo-dépendance du matériau.

Le comportement des polyéthylènes solides ne suit pas le principe de superposition temps-température simple. Pour représenter l'influence de la température sur le comportement mécanique du PEhd, l'introduction d'un glissement vertical est nécessaire. Pour le PEbd, il faudrait déterminer le comportement propre des deux relaxations  $\alpha$  et  $\beta$ . Ce traitement est assez délicat, celles-ci se superposant dans le domaine temps - température nécessaire à l'étude du processus. Néanmoins la relaxation  $\alpha$  étant dominante dans le procédé de relaxation, nous pouvons approcher le comportement du PEbd en utilisant un glissement vertical. Nous constatons alors que la thermo-dépendance des deux matériaux est similaire.

Les courbes maîtresses obtenues à l'état fluide et à l'état solide peuvent ensuite être interpolées correctement par un modèle de Maxwell multimode. La différence essentielle entre les deux matériaux est la plus grande rigidité du polyéthylène haute densité à l'état solide. Pour interpréter cette différence, on peut considérer deux matériaux fictifs identiques, l'un étant cinq fois plus rigide. Dans ce cas le retrait thermique hétérogène dans l'épaisseur introduit des contraintes résiduelles 5 fois plus importantes et la dépression nécessaire à maintenir le tube contre la chambre de calibrage doit également être 5 fois supérieure. C'est effectivement la différence la plus remarquable entre ces deux matériaux lors du calibrage du tube. L'influence des autres paramètres est moins intuitive, et sera décrite lors de l'étude mécanique du procédé.

(Alberola, 1989)

N. Alberola, "Spectrométrie mécanique et mobilité moléculaire dans le polyéthylène, Application : nouvelle approche microstructurale", thèse de Doctorat, Université Claude Bernard - Lyon I, (1989).

(Boutahar et al., 1998)

K. Boutahar, C. Carrot and J. Guillet, "Crystallisation of polyolefins from rheological measurements - Relations between the transformed fraction and the dynamic moduli", *Macromolecule*, vol. 31, pp. 1921-1929 (1998).

(Boyd, 1984)

R. H. Boyd, "Strengths of the mechanical alpha, beta, gamma relaxations processes in linear polyethylene", *Macromolécules*, vol. 7, pp. 903-911 (1984).

(Boyd, 1985a)

R. H. Boyd, "Relaxation processes in crystalline polymers : experimental behaviour, a review", *Polymer*, vol. 26, pp. 323-347 (1985a).

(Boyd, 1985b)

R. H. Boyd, "Relaxation processes in crystalline polymers : Molecular interpretation, a review", *Polymer*, vol. 26, pp. 1123-1133 (1985b).

(Decroix, 1974)

J. Y. Decroix, "Contribution à l'étude des propriétés viscoélastiques et électriques de quelques polyoléfines, recherche d'un modèle analogique", thèse de Doctorat, Université Claude Bernard - Lyon I, (1974).

(Ferry, 1970)

Ferry, *Viscoelastic properties of polymers*, Wiley - interscience, New York (1970).

(Halpin et Kardos, 1972)

J. C. Halpin and J. L. Kardos, "Moduli of crystalline polymers employing composite theory", *Journal of applied physique*, vol. 43, pp. 2235-2241 (1972).

(Haudin, )

J.-M. Haudin, "???", ).

(Illers, 1973)

K. H. Illers, "Die Kristallinabhängigkeit der dynamisch - mechanischen Eigenschaften von linearem polyäthylen", *Koll. Z. und Z. Polymere*, vol. 251, pp. 394-401 (1973).

(Jourdan, 1987)

C. Jourdan, "Etude par spectrométrie mécanique d'alliages hétérophasés de polymères : applications à des systèmes base polypropylène", thèse de Doctorat, Université Claude Bernard - Lyon I, (1987).

(Martin, 1999)

C. Martin, "Intérêt de la dérivation fractionnaire pour une théorie unifiée de la viscoélasticité des matériaux", thèse de Doctorat, Université de Franche-Comté, (1999).

(McCrum et Morris, 1966)

N. G. McCrum and E. L. Morris, "Lamellar boundary slip in polyethylene", *Proc. Roy. Soc. (London)*, vol. A292, pp. 506-529 (1966).

(Ozawa, )

Ozawa, "???", ).

(Richardson et al., 1963)

M. J. Richardson, P. J. Flory and J. B. Jackson, "Crystallisation and Melting of copolymers of polymethylene", *Polymer*, vol. 4, pp. 221 (1963).

(Tsai et al., 1968)

S. W. Tsai, J. C. Halpin and N. J. Pagano, "\*\*\*\*", (1968).

(Ward, 1971)

I. M. Ward, *Mechanical properties of solid polymers*, Interscience, New York (1971).

(Wunderlich, 1980)

B. Wunderlich, *Macromolecular Physics*, vol. 3, Academic press, New York (1980).

<b>CHAPITRE 4 - MODELE THERMO – MECANIQUE – COMPORTEMENT ELASTIQUE.....</b>	<b>115</b>
1 METHODE DE TRANCHES.....	116
2 MODELISATION DU REFROIDISSEMENT .....	117
2.1 Equation de la thermique et simplifications :.....	117
2.2 Conditions aux limites : .....	118
2.3 Discrétisation .....	119
2.4 Résultats .....	119
2.4.1 Paramètres du procédé et caractéristiques des matériaux .....	119
2.4.2 Influence de la cristallisation.....	120
2.4.3 Comparaison à l'expérience .....	121
2.4.4 Evolution des températures dans l'épaisseur .....	122
3 EQUATIONS MECANQUES GENERALES .....	123
3.1 Equations d'équilibre .....	123
3.2 Hypothèses cinématiques .....	123
3.3 Conditions aux limites .....	124
3.3.1 Conditions aux limites dans le sens radial : .....	124
3.3.2 Conditions aux limites dans le sens axial : .....	125
3.3.3 Conditions aux limites du refroidissement libre : .....	126
4 MODELE THERMO – ELASTIQUE .....	127
4.1 Relations contrainte – déformation en Thermo - élasticité .....	127
4.2 Détermination du champ des contraintes .....	128
4.3 Comportement liquide – solide élastique indépendant de la température .....	129
4.3.1 Détermination du champ de contraintes .....	129
4.3.2 Influence des conditions aux limites axiales .....	131
a ) Pression extérieure constante.....	131
b ) Conditions aux limites radiales en déplacement.....	131
4.3.3 Détermination du champ de contraintes lors de la solidification.....	131
4.3.4 Formation des contraintes résiduelles – Comportement liquide – solide élastique .....	133
a ) Paramètres utilisés pour la modélisation des contraintes .....	133
b ) Refroidissement libre : .....	133
c ) Influence de la dépression .....	136
d ) Influence des frottements.....	144
4.4 Comportement liquide – solide élastique dépendant de la température .....	147
4.4.1 Détermination du champ de contraintes .....	147
4.4.2 Formation des contraintes résiduelles – Comportement liquide – solide élastique .....	149
a ) Thermo-dépendance du module élastique.....	149
b ) Evolution des conditions aux limites.....	150
c ) Refroidissement libre par les deux surfaces.....	151
5 CONCLUSION .....	152





## Chapitre 4 - Modèle Thermo – mécanique – Comportement élastique

Trois modèles ont été élaborés successivement afin de se rapprocher du comportement des polymères. Les deux premiers utilisent des lois de comportement du type liquide – solide élastique alors que le troisième est basé sur des lois de comportement viscoélastique linéaire. Hors de la zone d'étirage entre la filière et le conformateur, zone où le tube est encore à l'état fondu, les déformations sont faibles et nous permettent d'utiliser des modèles incrémentaux, basés sur le principe de superposition de Boltzmann.

Dans le présent chapitre nous allons développer les approches mécaniques basées sur les lois de comportement liquide – solide élastique afin d'expliquer quantitativement la formation des contraintes résiduelles.

En premier, nous allons décrire la simulation thermique du refroidissement des tubes. Afin de pouvoir comparer les différents modèles, nous figurons les paramètres thermiques. Le refroidissement sera identique pour tous les modèles. Une seule phase de refroidissement sera simulée, correspondant au cas où le tube est en contact avec la chambre de calibrage tout au long du refroidissement. Le tube se refroidissant peu lors de l'étirage (temps de séjour ~1s) ceci n'aura pas d'influence sur les résultats.

Le premier modèle mécanique a été mené en utilisant une loi de comportement liquide – solide élastique indépendante de la température (cf. chapitre 1). Ce modèle est bien adapté par sa simplicité pour comprendre la formation des contraintes résiduelles dues à la variation du volume spécifique et le rôle de certains paramètres tel la dépression dans le conformateur. Néanmoins cette loi de comportement ne représente pas le comportement mécanique des polymères et ne permet pas de prendre en compte les conditions aux limites réelles du procédé. Comme nous l'avons remarqué au premier chapitre, nous ne pouvons donc pas décrire complètement tous les mécanismes de formation des contraintes résiduelles en utilisant cette loi de comportement.

Nous avons ensuite développé un modèle liquide – solide élastique dont les caractéristiques mécaniques dépendent de la température si le matériau est à l'état solide. Ce modèle permet de mettre en place les équations pour calculer les contraintes dans un matériau ayant des caractéristiques mécaniques hétérogènes dans l'épaisseur. Il correspond à une étape intermédiaire avant l'introduction d'une loi de comportement viscoélastique thermo-dépendante qui sera développé au chapitre 5. Les exemples présentés pour les différents modèles seront réalisés avec les mêmes conditions ce qui permettra de détailler l'influence du choix du modèle dans la formation des contraintes résiduelles. Le matériau sera identique dans les deux cas et son comportement s'approchera de celui du polyéthylène basse densité radicalaire.

## 1 Méthode de tranches

Dans le conformateur, le tube étant plaqué contre la chambre de calibrage par la dépression, sa géométrie va très peu évoluer. L'étude cinématique peut être alors simplifiée en considérant le problème dual d'une tranche se situant dans la partie centrale d'un tube de grande longueur dont le refroidissement ne dépendrait que du rayon et du temps. Nous faisons ainsi l'hypothèse que les déformations des autres tranches n'interviennent pas sur la tranche étudiée.

Le procédé étant stationnaire, il est équivalent de découper le tube en N tranches que de suivre l'évolution des contraintes dans une même tranche au cours de N étapes de refroidissement. La détermination par une méthode de tranches du champ de contrainte (r,  $\theta$ , z) dans le tube est équivalente à la détermination du champ de contrainte (r,  $\theta$ , t) dans une tranche.

Une méthode de tranches est ainsi utilisée afin de calculer l'évolution des contraintes résiduelles au cours du procédé. La mise en œuvre de la méthode consiste à isoler une tranche perpendiculaire à l'axe du tube et d'écrire l'équilibre des forces qui lui sont appliquées par le milieu extérieur, y compris par le reste du tube.

Le tube n'étant pas encore solidifié lors de l'étirage dans l'air, nous ne considérerons cette partie que lorsque le comportement viscoélastique du matériau fluide sera pris en compte au chapitre 5. La géométrie du tube étant axisymétrique, les calculs sont menés dans un repère cylindrique dont l'origine se trouve à l'entrée du conformateur. Les hypothèses cinématiques et mécaniques détaillées ci-dessous ne sont valables que pour cette partie

Les équations décrivant la formation des contraintes résiduelles seront écrites sous forme incrémentale et la construction des contraintes sera scindée en une succession d'étapes correspondant chacune à un incrément de temps  $\Delta t$  (Figure 4.1). La variation de température dans l'épaisseur du tube,  $\Delta T(r)$ , sera déterminée par le programme Therm 4.0 développé précédemment au CEMEF (Cotto, 1984, Duffo, 1990). La variation de température combinée au chargement extérieur sur la tranche permettra suivant la loi de comportement de déterminer les incréments de déformations  $\Delta \epsilon(r)$  et de contrainte  $\Delta \sigma(r)$ . Ce calcul a fait l'objet d'un développement dans Therm 4.0.

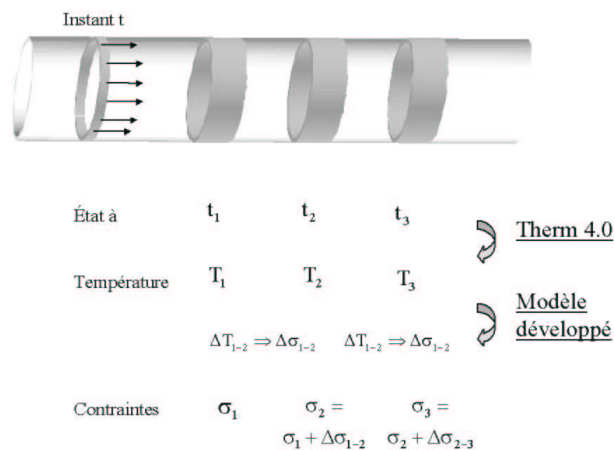


Figure 4.1 : modèle incrémental

## 2 Modélisation du refroidissement

Les modèles mécaniques développés ci-dessous ont été implémentés dans le code de calcul de température THERM 4.0. Ce logiciel, développé au CEMEF (Cotto, 1984, Duffo, 1990), servait initialement à modéliser le champ de température et l'évolution du taux de cristallinité dans le procédé de mise en œuvre de film à plat. L'épaisseur du tube étant 100 fois plus faible que le diamètre, la variation de température dans l'épaisseur est équivalente à celle obtenue dans une plaque de 0,5 mm ayant les mêmes conditions aux limites thermiques.

Le procédé est défini par  $N_p$  phases de refroidissement, chaque phase étant définie par sa longueur et les conditions aux limites sur chaque face du tube.

La chaleur de changement d'état est prise en compte dans le modèle en calculant à chaque incrément le taux de transformation d'après la loi de cristallisation d'Ozawa. La modélisation permet ainsi de déterminer l'évolution du taux de transformation dans l'épaisseur. Ce paramètre sera nécessaire pour piloter l'évolution des propriétés mécaniques lors du refroidissement.

### 2.1 Equation de la thermique et simplifications :

Nous décrivons ci-dessous l'équation de la chaleur et les simplifications apportées dans un repère cartésien. Le repère  $(x, y, z)$  correspond respectivement au repère cylindrique  $(r, \theta, z)$ . Cette approximation est justifiée par le grand rapport entre le diamètre du tube et son épaisseur (rapport 100). Sous sa forme générale, l'équation de la thermique s'écrit

$$\rho C \frac{dT}{dt} = \text{div}(k \text{ grad } T) + \dot{W} \quad (4.1)$$

$\rho$	Masse volumique ( $\text{kg.m}^{-3}$ )
$C$	Chaleur massique ( $\text{J} \cdot (\text{kg.K})^{-1}$ )
$k$	Conductivité thermique ( $\text{W} \cdot (\text{m.K})^{-1}$ )
$\dot{W}$	Energie dissipée par unité de temps et de volume

Si la conductivité  $k$  est supposée constante, l'équation (4.1) devient

$$\rho C \frac{dT}{dt} = k \Delta T + \dot{W} \quad (4.2)$$

Soit en coordonnées cartésiennes ( $u, v, w$  étant les composantes du vecteur vitesse.)

$$\underbrace{\rho C \frac{\partial T}{\partial t}}_{\text{Variation en un point fixe}} + \underbrace{\rho C \left( u \frac{\partial T}{\partial x} + v \frac{\partial T}{\partial y} + w \frac{\partial T}{\partial z} \right)}_{\text{Terme de convection}} = \underbrace{k \left( \frac{\partial^2 T}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 T}{\partial y^2} + \frac{\partial^2 T}{\partial z^2} \right)}_{\text{Terme de conduction}} + \underbrace{\dot{W}}_{\text{Création d'énergie}} \quad (4.3)$$

Variation en un point fixe      Terme de convection      Terme de conduction      Création d'énergie

Les principales hypothèses de calcul que nous pouvons effectuer pour le refroidissement du tube sont :

- Le procédé est supposé stationnaire et le régime thermique est permanent, d'où  $\frac{\partial T}{\partial t} = 0$ .
- L'écoulement se faisant suivant la direction  $z$ , les vitesses  $u$  et  $v$  sont nulles. En revanche la convection selon  $z$  joue un rôle important, prépondérant par rapport à celui

de la conduction dans cette direction. Le nombre de Peclet qui exprime le rapport du terme de convection au terme de conduction () est égale à ce qui permet de justifier que nous négligeons le terme de conduction.

- Dans le problème qui nous intéresse,  $\dot{W}$  correspondra à la chaleur dégagée au cours de la cristallisation. La puissance de déformation dissipée dans le fluide en écoulement, encore appelée terme de dissipation visqueuse, sera négligée dans le conformateur. L'influence de la cristallisation a été prise en compte par une méthode de perturbation du profil thermique. Ceci consiste à modifier le profil thermique, déterminé sans tenir compte de la cristallisation, par la variation de température causée par le dégagement de chaleur latente au cours de la cristallisation. Une itération sur ces résultats permettant de déterminer un point d'équilibre. Dans ces conditions  $\dot{W} = 0$ . L'équation de la thermique se réduit alors à

$$w(x) \frac{\partial T(x, z)}{\partial z} = \frac{k}{\rho C} \frac{\partial^2 T(x, z)}{\partial x^2} \quad (4.4)$$

L'analyse mécanique étant traitée par une méthode de tranches, nous avons besoin de l'évolution des températures suivant le rayon, r, et le temps t. La carte 2D (x, z) des températures obtenues par l'équation (4.4) sera transformée en utilisant la relation (4.5) entre la position de la tranche et le temps.

$$z = \bar{w} \cdot t \quad (4.5)$$

## 2.2 Conditions aux limites :

Nous ne considérons pour l'instant que la phase de refroidissement à partir de l'entrée dans le conformateur ce qui permettra de comparer les modèles élastiques et viscoélastiques. Les conditions aux limites réelles seront prises en compte dans la 2<sup>ème</sup> partie du chapitre suivant en considérant la phase d'étirage dans l'air. Les résultats obtenus avec une seule phase de refroidissement restent cependant très voisins de l'expérience puisque la phase d'étirage dans l'air a peu d'influence sur la thermique.

Le profil initial de température,  $T_0$ , est défini constant dans l'épaisseur et est égal à la température initiale du polymère fondu à la sortie de la filière. Nous avons choisi  $T_0=220^\circ\text{C}$ .

Au cours du procédé, les deux surfaces du tube sont refroidies soit par convection (4.6). Nous avons ajusté le coefficient de transfert de la surface extérieure,  $h_{ext}$ , afin que les profils thermiques calculés coïncident avec les profils mesurés (cf. chapitre 2).

$$-h(T_{surface} - T_{eau}) = k \left( \frac{\partial T}{\partial x} \right)_{x=e/2} \quad (4.6)$$

Les coefficients de transfert h sont ajustés pour tenir compte à la fois de la convection et du rayonnement.

### 2.3 Discrétisation

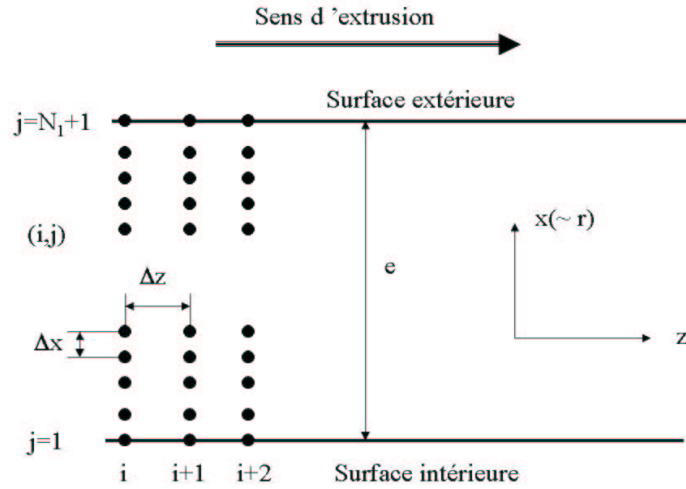


Figure 4.2 : maillage de l'épaisseur du tube.

Les équations de la thermique définies au paragraphe précédent sont résolues selon une méthode de différences finies explicite. On effectue un maillage bidimensionnel du film selon  $x$  et  $z$  (soit  $r$  et  $z$  pour le tube) (cf. Figure 4.2). Les divers profils inconnus ( $T(x,z)$ ,  $\chi_c(x,z), \dots$ ) sont discrétisés dans l'épaisseur en  $N_1+1$  valeurs nodales. Les températures de surface sont déterminées par les équations (4.7) faisant intervenir une dérivée non centrée du deuxième ordre et on résout ensuite l'équation de la chaleur (4.8) afin de déterminer le profil intérieur de température.

$$\begin{aligned}
 k \frac{3T(N_1+1,i) - 4T(N_1,i) + T(N_1-1,i)}{2 \Delta x} &= h_{ext} (T_{cc} - T(N_1+1,i)) \\
 k \frac{-3T(1,i) + 4T(2,i) - T(3,i)}{2 \Delta x} &= h_{int} (-T(1,i) - T_{air})
 \end{aligned}
 \tag{4.7}$$

$$T(j,i+1) = \frac{k}{\rho C} \frac{\Delta z}{w \Delta x^2} [T(j-1,i) - 2T(j,i) + T(j+1,i)] + T(j,i)
 \tag{4.8}$$

### 2.4 Résultats

#### 2.4.1 Paramètres du procédé et caractéristiques des matériaux

Les valeurs de coefficient de transfert et les caractéristiques thermiques utilisées sont précisées tableau ci dessous. Les paramètres du procédé sont en accord avec la bibliographie (Goslinga, 1980).

Paramètres du procédé	
Vitesse	6m/min
Coefficient de transfert extérieur	1000 (W(m <sup>2</sup> .K) <sup>-1</sup> )

Température extérieure	16°C	
Coefficient de transfert intérieur	20 (W(m <sup>2</sup> .K) <sup>-1</sup> )	
Température intérieure	16°C	
Paramètres matériau		
	PE bd	PE hd
Chaleur massique C (J(kg.K) <sup>-1</sup> )	2000	
Conductivité k (W(m.K) <sup>-1</sup> )	Phase cristallines => k= -0,0013.T(°C) + 0,325 Phase amorphe => k=0,2	
Enthalpie de cristallisation (J.kg <sup>-1</sup> )	30	60

#### 2.4.2 Influence de la cristallisation

Nous évaluons ci-dessous l'influence de la cristallisation lors du refroidissement (Figure 4.3). Les résultats correspondent à un tube en polyéthylène basse densité radicalaire d'une épaisseur de 0,65 mm. Les évolutions de température de la Figure 4.3 ont été obtenues pour trois modélisations différentes de la cristallisation :

- en négligeant l'influence de la cristallisation.
- en décrivant l'évolution de la cristallisation à partir des résultats expérimentaux obtenu par DSC. C'est à dire sans passer par l'intermédiaire d'une loi décrivant la cinétique de cristallisation telle la loi d'Ozawa.
- en décrivant l'évolution de la cristallisation par la loi d'Ozawa. Nous ne prenons alors pas en compte l'enthalpie de la cristallisation secondaire, soit 50% de l'enthalpie totale de cristallisation.

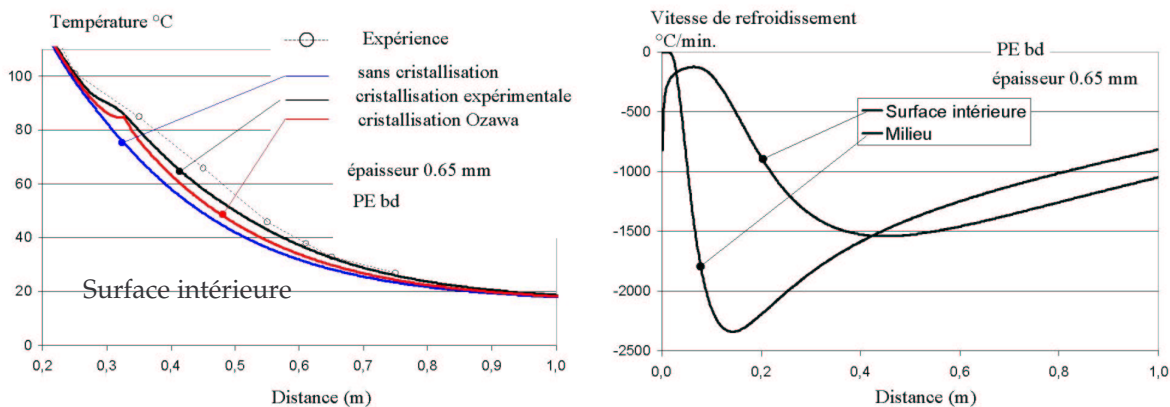


Figure 4.3 : influence de la cristallisation lors du refroidissement et vitesses de refroidissement sur la surface intérieure et au milieu

Nous constatons sur la Figure 4.3 ci dessus que :

- négliger la cristallisation du polyéthylène basse densité entraîne une différence de 20°C par rapport à la courbe expérimentale.

- la loi d'évolution de la cristallisation d'Ozawa ne pouvant prendre en compte que la cristallisation primaire, celle-ci concentre le phénomène de cristallisation aux environs de 90°C et ne permet pas de prendre en compte l'évolution de la cristallisation jusqu'à température ambiante.

- l'effet de la cristallisation secondaire que l'on peut supposer grâce aux mesures expérimentales de température, semble plus importante que celui calculé à partir des expériences de DSC. En pratiquant de cette manière, nous ne pouvons pas tenir compte de l'importante influence de la vitesse de refroidissement sur les cinétiques de cristallisation.

Pour l'instant, c'est en calculant la chaleur dégagée par cristallisation directement par les expériences de DSC, que nous obtenons les résultats les plus proches de l'expérience. Cependant, modéliser la cristallisation directement à partir des résultats de DSC ne permet pas de prendre en compte l'importante influence de la vitesse de refroidissement.

Les vitesses de refroidissement calculés par Therm4.0 au milieu de l'épaisseur et sur la surface intérieure sont représentées Figure 4.3, celles-ci sont très hétérogènes suivant le rayon et le temps, or les vitesses sont encore 10x supérieures près de la surface extérieure.

Cette méthode ne constitue donc simplement qu'une première approche du problème. L'évolution de la cristallisation doit être décrite en utilisant des lois d'évolution, telles que celles d'Ozawa, mais pour les polyéthylènes cela nécessite encore actuellement des développements permettant :

- de prendre en compte les cinétiques secondaires.
- d'assurer la stabilité des résultats lors de l'extrapolation à des cinétiques de refroidissement 100 fois plus rapides que celles expérimentales en DSC [0.1 ;50°C/min].

### 2.4.3 Comparaison à l'expérience

Les évolutions des températures calculées par le programme THERM4.0 sur la surface intérieure sont comparées Figure 4.4 aux résultats expérimentaux (cf. chapitre 2). Ceux-ci ont été obtenus à différentes épaisseurs pour les polyéthylènes basse et haute densité à une vitesse de 6m/min.

Les résultats de la simulation thermique sont en bon accord avec l'expérience. La prise en compte de trois épaisseurs différentes est nécessaire puisque nous ne pouvons mesurer expérimentalement la température que sur la surface intérieure. Les résultats numériques étant représentatifs de l'expérience pour les trois épaisseurs, nous pouvons affirmer que le gradient dans l'épaisseur est également bien décrit.

Afin d'obtenir ces résultats, nous avons utilisé pour décrire l'évolution de la cristallisation (cf. chapitre 3) les résultats expérimentaux obtenus par DSC. Pour l'instant les lois du type Ozawa ne permettent pas de prendre en compte intégralement la cristallisation des polyéthylènes. La variation de pente constatée pour les 3 épaisseurs aux environs de 90°C correspond à la chaleur dégagée par la cristallisation.



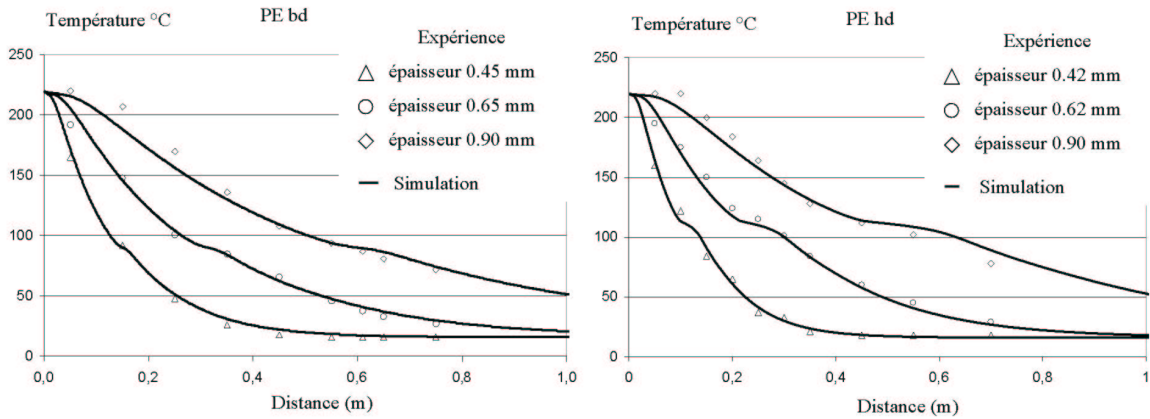


Figure 4.4 : évolution des températures à la surface intérieure. Comparaison calcul/expérience

### 2.4.4 Evolution des températures dans l'épaisseur

Les évolutions des températures sur les surfaces intérieure, extérieure et à cœur sont représentées Figure 4.5 (a) en fonction de la position de la tranche dans le conformateur. Le profil de température dans l'épaisseur est représenté Figure 4.5 (b) pour plusieurs positions correspondant à des instants remarquables du refroidissement. Dans la suite, nous détaillerons la formation des contraintes à ces mêmes instants. La vitesse du tube dans le conformateur est désormais de 12m/min.

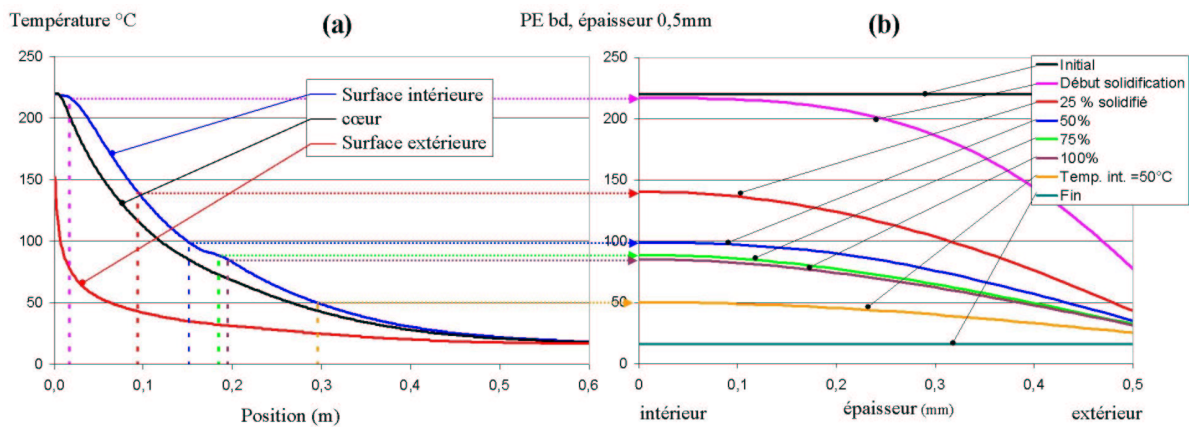


Figure 4.5 : évolution des températures lors du refroidissement

Nous constatons Figure 4.5 (a) que le matériau est complètement refroidi au bout de 0,6m (pour une épaisseur de 0,5mm et une vitesse égale à 12m/min), ce qui correspond à la longueur des chambres de calibrage utilisées à cette vitesse d'extrusion. La formation des contraintes résiduelles due aux effets thermiques sera donc déjà terminée à la sortie de la chambre de calibrage.

### 3 Equations mécaniques générales

#### 3.1 Equations d'équilibre

Puisque les équations d'équilibre de thermo – élasticité proviennent uniquement de considérations mécaniques, celles-ci sont identiques à celles d'élasticité isotherme. Les équations d'équilibre sont exprimées ci-dessous en coordonnées cylindrique en négligeant les forces de volumes et d'inertie(4.9).

$$\begin{aligned} \frac{\partial \sigma_{rr}}{\partial r} + \frac{1}{r} \frac{\partial \sigma_{r\theta}}{\partial \theta} + \frac{\partial \sigma_{rz}}{\partial z} + \frac{\sigma_{rr} - \sigma_{\theta\theta}}{r} &= 0 \\ \frac{\partial \sigma_{r\theta}}{\partial r} + \frac{1}{r} \frac{\partial \sigma_{\theta\theta}}{\partial \theta} + \frac{\partial \sigma_{\theta z}}{\partial z} + 2 \frac{\sigma_{r\theta}}{r} &= 0 \\ \frac{\partial \sigma_{rz}}{\partial r} + \frac{1}{r} \frac{\partial \sigma_{\theta z}}{\partial \theta} + \frac{\partial \sigma_{zz}}{\partial z} + \frac{\sigma_{rz}}{r} &= 0 \end{aligned} \quad (4.9)$$

Les contraintes de cisaillement  $\Delta\sigma_{r\theta}$ ,  $\Delta\sigma_{\theta z}$  sont nulles. Ces hypothèses combinées aux hypothèses d'axisymétrie ( $\partial/\partial\theta = 0$ ) permettent de simplifier les équations d'équilibre et d'obtenir les relations (4.11) (a) et (b).

$$\begin{aligned} \left| \frac{\partial \sigma_{rr}}{\partial r} + \frac{\sigma_{rr} - \sigma_{\theta\theta}}{r} = 0 \right. &\Leftrightarrow \boxed{\frac{d}{dr}(r \sigma_{rr}) = \sigma_{\theta\theta}} \quad (a) \\ \left| \frac{\partial \sigma_{rz}}{\partial r} + \frac{\partial \sigma_{zz}}{\partial z} + \frac{\sigma_{rz}}{r} = 0 \right. &\quad (b) \end{aligned} \quad (4.10)$$

#### Remarque 4.1

Les équations d'équilibre écrites ci dessus pour les contrainte  $\sigma_{ij}(r,z)$  doivent également être respectées par les incréments de contraintes  $\Delta\sigma_{ij}(r,z)$ .

$$\begin{aligned} \left| \frac{\partial \Delta\sigma_{rr}}{\partial r} + \frac{\Delta\sigma_{rr} - \Delta\sigma_{\theta\theta}}{r} = 0 \right. &\Leftrightarrow \boxed{\frac{d}{dr}(r \Delta\sigma_{rr}) = \Delta\sigma_{\theta\theta}} \quad (a) \\ \left| \frac{\partial \Delta\sigma_{rz}}{\partial r} + \frac{\partial \Delta\sigma_{zz}}{\partial z} + \frac{\Delta\sigma_{rz}}{r} = 0 \right. &\quad (b) \end{aligned} \quad (4.11)$$

#### 3.2 Hypothèses cinématiques

Le problème est axisymétrique, la composante orthoradiale,  $\theta\theta$ , du champ de vitesse est nulle ainsi que toutes les dérivées suivant la composante  $\theta$ .

$$U = \begin{vmatrix} u(r) \\ 0 \\ w(r,z) \end{vmatrix} \quad \boxed{\frac{\partial}{\partial \theta} = 0} \quad (4.12)$$

Les déformations sont reliées aux déplacements par les mêmes relations qu'en élasticité isotherme, ces relations étant uniquement dues à des considérations géométriques. Les hypothèses d'axisymétrie permettent de simplifier le tenseur des déformations en la relation (4.13).

$$\begin{aligned}
 [\varepsilon] &= \frac{1}{2}([\nabla(\Delta U)] + [(\Delta U)\nabla]) \\
 &= \begin{bmatrix} \frac{\partial \Delta u}{\partial r} & \frac{1}{2}\left(\frac{1}{r}\frac{\partial \Delta u}{\partial \theta} + \frac{\partial \Delta v}{\partial r} - \frac{\Delta v}{r}\right) & \frac{1}{2}\left(\frac{\partial \Delta u}{\partial z} + \frac{\partial \Delta w}{\partial r}\right) \\ \frac{1}{2}\left(\frac{1}{r}\frac{\partial \Delta u}{\partial \theta} + \frac{\partial \Delta v}{\partial r} - \frac{\Delta v}{r}\right) & \frac{\Delta u}{r} + \frac{1}{r}\frac{\partial \Delta v}{\partial \theta} & \frac{1}{2}\left(\frac{\partial \Delta v}{\partial z} + \frac{1}{r}\frac{\partial \Delta w}{\partial \theta}\right) \\ \frac{1}{2}\left(\frac{\partial \Delta u}{\partial z} + \frac{\partial \Delta w}{\partial r}\right) & \frac{1}{2}\left(\frac{\partial \Delta v}{\partial z} + \frac{1}{r}\frac{\partial \Delta w}{\partial \theta}\right) & \frac{\partial \Delta w}{\partial z} \end{bmatrix} \\
 &= \begin{bmatrix} \frac{\partial \Delta u}{\partial r} & 0 & \frac{1}{2}\frac{\partial \Delta w}{\partial r} \\ 0 & \frac{\Delta u}{r} & 0 \\ \frac{1}{2}\frac{\partial \Delta w}{\partial r} & 0 & \frac{\partial \Delta w}{\partial z} \end{bmatrix} \tag{4.13}
 \end{aligned}$$

Les déformations  $\Delta \varepsilon_{rr}$  et  $\Delta \varepsilon_{\theta\theta}$  étant indépendantes de  $z$ , nous en déduisons après intégration l'équation de la composante axiale du champ des vitesses (4.14) (a). Les tranches de la partie centrale ont toutes des déformations identiques ce qui implique pour assurer la continuité du matériau que les déformations soient indépendantes de  $r \Rightarrow f(r)$  et  $g(r) = \text{constante} \Rightarrow$  (4.14) (b).

$$\begin{aligned}
 \Delta \varepsilon_{zz} = \frac{\partial \Delta w}{\partial z} = f(r) &\Rightarrow \Delta w = f(r)z + g(r) \quad (a) \\
 \Delta w = A_1 z + A_2 &\rightarrow \begin{cases} \Delta \varepsilon_{rz} = \frac{1}{2}\frac{\partial \Delta w}{\partial r} = 0 \\ \Delta \varepsilon_{zz} = A_1 \end{cases} \quad (b) \tag{4.14}
 \end{aligned}$$

Les constantes  $A_1$  et  $A_2$  seront déterminées suivant les conditions aux limites axiales du cylindre.

De l'équation (4.13) nous déduisons également l'équation de compatibilité suivante :

$$\begin{aligned}
 \Delta \varepsilon_{rr} = \frac{\partial \Delta u}{\partial r} & \quad \left. \begin{array}{l} \Rightarrow \frac{\partial \Delta \varepsilon_{\theta\theta}}{\partial r} = \frac{1}{r}\frac{\partial \Delta u}{\partial r} - \frac{\Delta u}{r^2} \Rightarrow r\frac{\partial \Delta \varepsilon_{\theta\theta}}{\partial r} = \Delta \varepsilon_{rr} - \Delta \varepsilon_{\theta\theta} \\ \Delta \varepsilon_{\theta\theta} = \frac{\Delta u}{r} \Rightarrow \frac{\partial(r\Delta \varepsilon_{\theta\theta})}{\partial r} = \Delta \varepsilon_{rr} \end{array} \right\} \tag{4.15}
 \end{aligned}$$

### 3.3 Conditions aux limites

Nous ne nous intéressons dans cette partie qu'aux conditions aux limites dans la chambre de calibrage. Les conditions aux limites dans les directions radiales et axiales sont traitées séparément.

#### 3.3.1 Conditions aux limites dans le sens radial :

Les conditions aux limites dans le sens radial sont différentes sur les surfaces intérieure et extérieure du tube.

- La surface intérieure est libre et la pression est égale à la pression atmosphérique.

$$\sigma_{rr}(R_i) = P_{\text{atmosphérique}} \quad (4.16)$$

- Pour la surface extérieure nous avons vu au 1<sup>er</sup> chapitre que deux conditions aux limites devaient être envisagées :

⊗ La dépression est suffisante pour plaquer la surface extérieure contre la chambre de calibrage : le déplacement radial de la surface extérieure est égal à 0.

$$\Delta u(R_e) = 0 \quad (4.17)$$

⊗ Le tube n'est plus en contact avec la chambre de calibrage :

$$\sigma_{rr}(R_e) = -P_{\text{conformateur}} \quad (4.18)$$

Afin d'avoir le même type de conditions aux limites pendant tout le procédé, il est préférable de ne travailler qu'avec des conditions aux limites en pression sur les deux surfaces. Avant le décollement, l'incrément de pression extérieure,  $\Delta P_i^e$ , nécessaire à ce que la condition de contact soit vérifiée, sera déterminée à chaque pas de temps par la relation (4.17).

### 3.3.2 Conditions aux limites dans le sens axial :

Les conditions aux limites axiales du procédé sont des conditions aux limites en effort. Nous avons indiqué au 1<sup>er</sup> chapitre qu'il était nécessaire pour prendre en compte les contraintes dans la partie fluide d'utiliser une loi de comportement viscoélastique. Dans les modèles élastiques, nous utiliserons une condition aux limites en déplacement ou une condition aux limites en effort nul si le tube est encore complètement à l'état liquide.

- Condition aux limites en déplacement : nous considérons que les extrémités du tubes sont encastrées ( Figure 4.6 (a)). Dans ces conditions, il n'y a aucun déplacement suivant la composante axiale :

$$\Delta w(r, z) = \text{constante} \Rightarrow \Delta \varepsilon_{zz} = \frac{\partial \Delta w}{\partial z} = A_1 = 0 \quad (4.19)$$

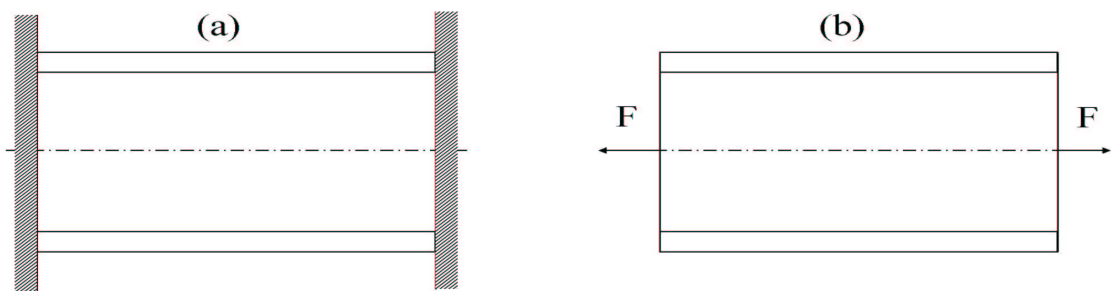


Figure 4.6 : conditions aux limites axiales

- Condition aux limites en effort : Les contraintes axiales doivent équilibrer la force nécessaire à étirer le tube dans l'air et les forces de frottement entre le tube et la chambre de calibrage. Soit F cette force :

$$\int_{R_i}^{R_e} r \sigma_{zz} dr = \frac{F}{2\pi} \quad (4.20)$$

Pour les modèles élastiques, cette condition correspond à une condition aux limites en effort nulle au niveau de l'incrément puisque la force  $F$  est équilibrée par les contraintes formées aux temps précédents.

### 3.3.3 Conditions aux limites du refroidissement libre :

Afin de comprendre le rôle de la dépression dans la formation des contraintes résiduelles, nous calculerons également le profil des contraintes résiduelles lors d'un refroidissement libre, c'est à dire sans dépression dans le conformateur. Le tube sera encastré ou libre dans le sens axial. Nous verrons après avoir explicité les lois de comportement que dans ce cas les conditions aux limites axiales n'ont pas d'influence sur les contraintes radiales et orthoradiales. Les relations (4.21) (b) définissent les conditions aux limites dans le sens axial avec respectivement le tube libre de se rétracter et le tube encastré suivant la direction axiale.

$$\sigma_{rr}(R_i) = \sigma_{rr}(R_e) = P_{atmosphérique} \quad (a) \quad (4.21)$$

$$\int_{R_i}^{R_e} r \sigma_{zz} dr = 0 \quad \text{ou} \quad A_1 = 0 \quad (b)$$

#### Remarque 4.2 :

La pression étant définie à une constante près, nous prendrons la pression atmosphérique égale à 0. Dans ces conditions, la dépression dans le conformateur est égale à une pression négative.

## 4 Modèle thermo – élastique

### 4.1 Relations contrainte – déformation en Thermo - élasticité

La relation entre les contraintes et les déformations étant linéaire, on peut appliquer le principe de superposition et additionner les effets mécaniques et thermiques. La déformation totale d'un corps chauffé est constituée en chaque point de deux parties :

- La première est une expansion uniforme proportionnelle à la variation de température. Si le matériau est isotrope, cette expansion est identique dans toutes les directions. Il ne résulte que des déformations normales et égales à  $\alpha_T \Delta T$ ,  $\alpha_T$  correspondant au coefficient de dilataion linéaire.
- La seconde comprend les déformations nécessaires pour maintenir la continuité du milieu ainsi que les déformations dues aux chargement extérieurs. Ces déformations sont reliés aux contraintes par la théorie de l'élasticité en condition isotherme.

La déformation totale est la somme de ces deux déformations, reliée aux contraintes et au champ de température par les relations suivantes

$$\begin{aligned} \Delta \varepsilon_{rr} &= \frac{1}{E} (\Delta \sigma_{rr} - \nu (\Delta \sigma_{\theta\theta} + \Delta \sigma_{zz})) + \alpha_T \Delta T & (a) \\ \Delta \varepsilon_{\theta\theta} &= \frac{1}{E} (\Delta \sigma_{\theta\theta} - \nu (\Delta \sigma_{rr} + \Delta \sigma_{zz})) + \alpha_T \Delta T & (b) \\ \Delta \varepsilon_{zz} &= \frac{1}{E} (\Delta \sigma_{zz} - \nu (\Delta \sigma_{rr} + \Delta \sigma_{\theta\theta})) + \alpha_T \Delta T & (c) \\ \Delta \varepsilon_{r\theta} &= \frac{1}{2G} \Delta \sigma_{r\theta} \quad \Delta \varepsilon_{rz} = \frac{1}{2G} \Delta \sigma_{rz} \quad \Delta \varepsilon_{\theta z} = \frac{1}{2G} \Delta \sigma_{\theta z} \quad G = \frac{E}{2(1+\nu)} \end{aligned} \quad (4.22)$$

Pour certaines applications, il peut être plus intéressant d'exprimer les contraintes en fonction des déformations. Ces relations peuvent être obtenues à partir des équations (4.22) ou en appliquant le principe de superposition comme précédemment :

Une variation de température ne fait intervenir qu'une augmentation de volume  $\Delta V = \beta_T \Delta T \approx 3\alpha_T \Delta T$ . Si on chauffe le corps en bloquant ses déformations, il naît uniquement une pression hydrostatique égale à  $p = K 3\alpha_T \Delta T = (3\lambda + 2\mu)\alpha_T \Delta T$  qu'il faut ajouter à la loi de comportement isotherme.  $K$  correspond au module de dilataion volumique (bulk modulus) et  $\lambda, \mu$  aux coefficients de Lamé. Ces grandeurs sont reliées au module d'Young et au coefficient de Poisson par les relations (4.24). La loi de comportement est alors :

$$\begin{aligned} [\Delta \sigma] &= (\lambda \text{Trace}(\Delta \varepsilon) - (3\lambda + 2\mu)\alpha_T \Delta T)[1] + 2\mu [\Delta \varepsilon] \\ &= [\Delta s] + \frac{1}{3} \text{Trace}(\Delta \sigma)[1] = [\Delta s] - \Delta p[1] \end{aligned} \quad (4.23)$$

$$\begin{cases} [\Delta s] = 2G [\Delta e] & [\Delta e] = [\Delta \varepsilon] - \frac{1}{3} \text{Trace}(\Delta \varepsilon)[1] \\ \Delta p = -K \text{Trace}(\Delta \varepsilon) \end{cases}$$

$$\left| \begin{array}{ll} \lambda = \frac{\nu E}{(1+\nu)(1-2\nu)} & \mu = \frac{E}{2(1+\nu)} \\ 3K = 3\lambda + 2\mu = \frac{E}{(1-2\nu)} & G = \mu \\ E = \frac{9KG}{3K+G} & \nu = \frac{3K-2G}{2(3K+G)} \end{array} \right. \quad (4.24)$$

## 4.2 Détermination du champ des contraintes

Nous allons maintenant déduire les relations permettant d'obtenir les contraintes à partir de l'équation de compatibilité (4.15). Différents auteurs ont établi ces relations précédemment pour des matériaux ayant des caractéristiques indépendantes de la température (Noda, 1986). Nous utilisons ci-dessous la méthode de Trostel (Trostel, 1958) permettant d'obtenir également le champ des contraintes si le module E est thermo-dépendant :

$$r \frac{\partial \Delta \varepsilon_{\theta\theta}}{\partial r} = \Delta \varepsilon_{rr} - \Delta \varepsilon_{\theta\theta} \quad (\text{rappel (4.15)})$$

De la déformation radiale (4.22) (c) combinée à la simplification du champ des vitesses axiales (4.14), nous obtenons la composante axiale des contraintes :

$$\Delta \sigma_{zz} = \nu(\Delta \sigma_{rr} + \Delta \sigma_{\theta\theta}) + A_1 E - E \alpha_T \Delta T \quad (4.25)$$

Nous pouvons ainsi éliminer les contraintes axiales,  $\Delta \sigma_{zz}$ , en utilisant les relations de déformation dans les directions radiale,  $rr$ , et circonférentielle,  $\theta\theta$ , (4.22) (a+b) :

$$\Delta \varepsilon_{rr} = \frac{\partial \Delta u}{\partial r} = \frac{1}{E} \left[ (1-\nu^2) \Delta \sigma_{rr} - \nu(1+\nu) \Delta \sigma_{\theta\theta} - \nu A_1 E \right] + (1+\nu) \alpha_T \Delta T \quad (4.26)$$

$$\Delta \varepsilon_{\theta\theta} = \frac{\Delta u}{r} = \frac{1}{E} \left[ (1-\nu^2) \Delta \sigma_{\theta\theta} - \nu(1+\nu) \Delta \sigma_{rr} \right] - \nu A_1 + (1+\nu) \alpha_T \Delta T \quad (4.27)$$

$$\Delta \varepsilon_{\theta\theta} - \Delta \varepsilon_{rr} = \frac{1+\nu}{E} (\Delta \sigma_{\theta\theta} - \Delta \sigma_{rr}) \quad (4.28)$$

Nous notons que le module d'Young dépend de la température :  $E = E(T) = E(T(r, t))$ . L'équation (4.27) permet de déterminer le terme de gauche de l'équation (4.15) :

$$\begin{aligned} \frac{\partial \Delta \varepsilon_{\theta\theta}}{\partial r} = & -\frac{1}{E^2} \frac{dE}{dr} \left[ (1-\nu^2) \Delta \sigma_{\theta\theta} - \nu(1+\nu) \Delta \sigma_{rr} \right] \\ & + \frac{1-\nu^2}{E} \frac{\partial \Delta \sigma_{\theta\theta}}{\partial r} - \frac{\nu(1+\nu)}{E} \frac{\partial \Delta \sigma_{rr}}{\partial r} + (1+\nu) \frac{d(\alpha_T \Delta T)}{dr} \end{aligned} \quad (4.29)$$

La contrainte résultante,  $\sigma$ , et l'incrément de contrainte,  $\Delta \sigma$ , devant vérifier les équations d'équilibre (4.11) (a) :

$$\underline{r \frac{\partial \Delta \sigma_{rr}}{\partial r} = \Delta \sigma_{\theta\theta} - \Delta \sigma_{rr}} \quad (\text{rappel (4.11) (a)})$$

Nous obtenons :

$$\begin{aligned}
 r \frac{\partial \Delta \varepsilon_{\theta\theta}}{\partial r} = & -\frac{r}{E^2} \frac{dE}{dr} \left[ (1-\nu^2) \Delta \sigma_{\theta\theta} - \nu(1+\nu) \Delta \sigma_{rr} \right] \\
 & + (1-\nu^2) \frac{r}{E} \frac{\partial \Delta \sigma_{\theta\theta}}{\partial r} - \nu(1+\nu) \frac{1}{E} (\Delta \sigma_{\theta\theta} - \Delta \sigma_{rr}) + (1+\nu) r \frac{d(\alpha_T \Delta T)}{dr}
 \end{aligned} \quad (4.30)$$

En substituant les équations (4.28) et (4.29) dans l'équation de compatibilité (4.15) :

$$\begin{aligned}
 -r \frac{dE}{dr} \left( \Delta \sigma_{\theta\theta} - \frac{\nu}{1-\nu} \Delta \sigma_{rr} \right) + r E \frac{\partial \Delta \sigma_{\theta\theta}}{\partial r} + E (\Delta \sigma_{\theta\theta} - \Delta \sigma_{rr}) \\
 + \frac{1}{1-\nu} r E^2 \frac{d(\alpha_T \Delta T)}{dr} = 0
 \end{aligned} \quad (4.31)$$

Nous définissons une fonction  $\psi(r)$ , minimum de classe  $C^2$ , telle que  $\sigma_{rr} = \frac{\psi}{r}$ . Ainsi de l'équation (4.11) (a) nous déduisons :

$$\Delta \sigma_{rr} = \frac{\psi}{r}; \quad \Delta \sigma_{\theta\theta} = \frac{d\psi}{dr}; \quad \frac{d\Delta \sigma_{\theta\theta}}{dr} = \frac{d^2\psi}{dr^2}; \quad (\Delta \sigma_{\theta\theta} - \Delta \sigma_{rr}) = \frac{d\psi}{dr} - \frac{\psi}{r} \quad (4.32)$$

En remplaçant ces expressions dans la relation (4.31) :

$$\boxed{r E \frac{d^2\psi}{dr^2} + \left( E - r \frac{\partial E}{\partial r} \right) \frac{d\psi}{dr} + \left( \frac{\nu}{1-\nu} r \frac{\partial E}{\partial r} - E \right) \frac{\psi}{r} = -\frac{1}{1-\nu} r E^2 \frac{d(\alpha_T \Delta T)}{dr}} \quad (4.33)$$

### 4.3 Comportement liquide – solide élastique indépendant de la température

#### 4.3.1 Détermination du champ de contraintes

Nous déterminons dans un premier temps le champ des contraintes lorsque toute l'épaisseur du tube est solidifiée. Ceci afin que les propriétés mécaniques soient constantes dans l'épaisseur (équation (4.34)) :

$$\boxed{\frac{\partial E}{\partial r} = 0} \quad (4.34)$$

Dans ces conditions l'équation (4.33) se simplifie en :

$$\begin{aligned}
 \frac{d^2\psi}{dr^2} + \frac{1}{r} \frac{d\psi}{dr} - \frac{\psi}{r^2} &= \frac{d}{dr} \left( \frac{1}{r} \frac{d(r\psi)}{dr} \right) = \frac{d}{dr} \left( \frac{1}{r} \frac{d(r^2 \Delta \sigma_{rr})}{dr} \right) = -\frac{E}{1-\nu} \frac{d(\alpha_T \Delta T)}{dr} \\
 \Rightarrow \frac{d(r^2 \Delta \sigma_{rr})}{dr} &= -\frac{E}{1-\nu} r \alpha_T \Delta T + C_1 r
 \end{aligned}$$

Après intégration, nous en déduisons l'expression de la contrainte radiale :

$$\boxed{\Delta \sigma_{rr}(r) = -\frac{E}{r^2(1-\nu)} \int_{Ri}^r \rho \alpha_T \Delta T \cdot d\rho + C_1 + \frac{C_2}{r^2}} \quad (4.35)$$

L'équation d'équilibre (4.11) (a) permet de déduire la contrainte orthoradiale :



$$\Delta\sigma_{\theta\theta}(r) = \frac{d(r\Delta\sigma_{rr})}{dr} = \frac{E}{r^2(1-\nu)} \int_{Ri}^r \rho \alpha_T \Delta T \cdot d\rho - \frac{E \alpha_T \Delta T}{1-\nu} + C_1 - \frac{C_2}{r^2} \quad (4.36)$$

Les constantes  $C_1$  et  $C_2$  seront déterminées en appliquant les conditions aux limites. A partir de l'équation (4.27), nous sommes également en mesure de déterminer le déplacement radial :

$$\begin{aligned} \frac{\Delta u}{r} &= \frac{1}{E} \left[ (1-\nu^2) \Delta\sigma_{\theta\theta} - \nu(1+\nu) \Delta\sigma_{rr} \right] - \nu A_1 + (1+\nu) \alpha_T \Delta T \\ &= \left[ \frac{(1+\nu)}{r^2(1-\nu)} \int_{Ri}^r \rho \alpha_T \Delta T \cdot d\rho - (1+\nu) \alpha_T \Delta T + (1-\nu-2\nu^2) \frac{C_1}{E} - (1+\nu) \frac{C_2}{E r^2} \right] \\ &\quad - \nu A_1 + (1+\nu) \alpha_T \Delta T \\ \Delta u(r) &= \frac{(1+\nu)}{r(1-\nu)} \int_{Ri}^r \rho \alpha_T \Delta T \cdot d\rho - \nu A_1 r + \frac{(1+\nu)}{E r} \left( (1-2\nu) C_1 r^2 - C_2 \right) \end{aligned} \quad (4.37)$$

détermination des constantes  $C_1$  et  $C_2$  :

- Conditions aux limites radiales en pression :  $\sigma_{rr}(Ri) = 0$ ;  $\sigma_{rr}(Re) = -\Delta P_i^e (\geq 0)$

En introduisant ces conditions dans l'équation (4.35) puis dans l'équation (4.36), nous obtenons un système à 2 équations permettant de déterminer  $C_1$  et  $C_2$ .

$$\begin{aligned} \sigma_{rr}(Ri) = 0 &\Rightarrow C_2 = -Ri^2 C_1 \\ \sigma_{rr}(Re) = -\Delta P_i^e &\Rightarrow C_1 = \frac{E}{(Re^2 - Ri^2)(1-\nu)} \int_{Ri}^{Re} \rho \alpha_T(\rho) \Delta T(\rho) d\rho \\ &\quad - \frac{\Delta P_i^e Re^2}{Re^2 - Ri^2} \end{aligned} \quad (4.38)$$

$$\Delta\sigma_{rr}(r) = \frac{E}{r^2(1-\nu)} \left( \frac{r^2 - Ri^2}{Re^2 - Ri^2} \int_{Ri}^{Re} \rho \alpha_T \Delta T(\rho) d\rho - \int_{Ri}^r \rho \alpha_T \Delta T(\rho) d\rho \right) - \frac{\Delta P_i^e Re^2 (r^2 - Ri^2)}{r^2 (Re^2 - Ri^2)} \quad (4.39)$$

$$\Delta\sigma_{\theta\theta}(r) = \frac{E}{r^2(1-\nu)} \left( \frac{r^2 + Ri^2}{Re^2 - Ri^2} \int_{Ri}^{Re} \rho \alpha_T \Delta T(\rho) d\rho + \int_{Ri}^r \rho \alpha_T \Delta T(\rho) d\rho \right) - \frac{E \alpha_T \Delta T(r)}{1-\nu} - \frac{\Delta P_i^e Re^2 (r^2 + Ri^2)}{r^2 (Re^2 - Ri^2)} \quad (4.40)$$

$$\Delta\sigma_{zz}(r) = \frac{2\nu E}{(Re^2 - Ri^2)(1-\nu)} \int_{Ri}^{Re} \rho \alpha_T \Delta T(\rho) d\rho - \frac{E \alpha_T \Delta T(r)}{1-\nu} - \frac{2\nu \Delta P_i^e Re^2}{Re^2 - Ri^2} + A_1 E \quad (4.41)$$

$$\Delta u(r) = \frac{(1+\nu)}{r(1-\nu)} \left( \int_{Ri}^r \rho \alpha_T \Delta T(\rho) d\rho + \frac{Ri^2 + (1-2\nu)r^2}{Re^2 - Ri^2} \int_{Ri}^{Re} \rho \alpha_T \Delta T(\rho) d\rho \right) - \frac{\Delta P_i^e (1+\nu)}{E} \left( \frac{Re^2 (Ri^2 + (1-2\nu)r^2)}{r (Re^2 - Ri^2)} \right) - \nu A_1 r \quad (4.42)$$

- Conditions aux limites radiales mixtes :  $\sigma_{rr}(Ri) = 0; u(Re) = 0$

La condition de contact,  $u(Re) = \Delta u(Re) = 0$ , correspond à un incrément de pression particulier que l'on peut déterminer à partir de la relation (4.42)

$$u(Re) = 0 \Rightarrow \Delta P_i^e = -\Delta \sigma_{rr}(Re) = \frac{2E}{(Ri^2 + (1-2\nu)Re^2)} \left( \int_{Ri}^{Re} \rho \alpha_T \Delta T(\rho) d\rho \right) - \frac{(Re^2 - Ri^2) \nu E A_1}{(1+\nu)(Ri^2 + (1-2\nu)Re^2)} \quad (4.43)$$

La constante  $A_1$  correspond à l'incrément de déformation axial qui dépend des conditions aux limites axiales. Si les conditions aux limites radiales sont en pression  $\sigma_{rr}$  et  $\sigma_{\theta\theta}$  sont indépendantes de  $A_1$ .

#### 4.3.2 Influence des conditions aux limites axiales

##### a) Pression extérieure constante

Si les conditions aux limites radiales sont des pressions constantes, les incréments de contraintes  $\Delta \sigma_{rr}$  et  $\Delta \sigma_{\theta\theta}$  sont indépendants des conditions aux limites imposées dans la direction axiale.

##### b) Conditions aux limites radiales en déplacement

Si les conditions aux limites dans le sens radial sont en déplacement, par exemple  $u(Re)=0$ , alors la pression que ressent la surface extérieure,  $P_i^e$ , est dépendante de la déformation axiale de la tranche  $\Delta \epsilon_{zz} = A_1$ . Les incréments de contraintes  $\Delta \sigma_{rr}$  et  $\Delta \sigma_{\theta\theta}$  sont donc aussi dépendants des conditions aux limites imposées dans la direction axiale.

Une déformation axiale positive entraîne un incrément négatif de la pression dans le conformateur (équivalent à un vide plus important) et donc un incrément positif des contraintes  $\Delta \sigma_{rr}$  et  $\Delta \sigma_{\theta\theta}$ .

#### 4.3.3 Détermination du champ de contraintes lors de la solidification

Le développement mené ci-dessus n'est valable que pour un tube ayant des propriétés mécaniques homogènes dans l'épaisseur ((4.34),  $\partial E/\partial r = 0$ ). Or lors de la solidification, les couches extérieures sont solides et ont un module  $E$ , alors que les couches intérieures encore à l'état liquide ont un module nul.

Lors de l'introduction de la loi de comportement liquide – solide élastique (cf. chapitre 1 - 1.1.1 Loi de comportement liquide solide), nous avons vu que si une pression isotrope ne se développe pas dans les couches à l'état liquide, celles-ci n'interviennent pas et donc nous pouvons ignorer leur existence. Cette hypothèse ne permet de calculer les contraintes que dans des tubes refroidis par une seule surface car nous ne pouvons pas calculer la

pression qui se développerait dans des couches liquides (cf. exemple de la sphère se refroidissant).

A chaque incrément, nous ne considérons donc pas les couches à l'état liquide et nous calculons les contraintes se formant dans un tube dont le rayon intérieur correspond au rayon du front de solidification  $r_s$  (Figure 4.7). L'incrément de contrainte est nul dans les couches à l'état liquide. La position du front de solidification ne coïncidant pas en général avec un point de la discrétisation dans l'épaisseur, il est nécessaire de l'interpoler à chaque pas de temps. Les pas de temps étant très courts (modèle thermique explicite), nous avons par contre fait l'hypothèse que le rayon de solidification était constant par incrément de temps.

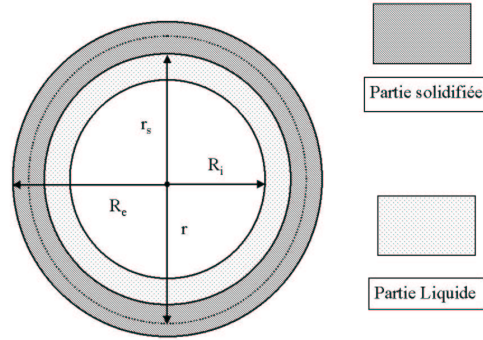


Figure 4.7 : définition des rayons lors de la solidification

Lors de la solidification, les conditions aux limites sur la tranche à l'incrément  $i$  sont :

$$\left\{ \begin{array}{l} \bullet \Delta\sigma_{rr}(R_e) = \Delta P_i^e \\ \bullet \sigma_{rr}(R_i) = \sigma_{rr}(r_s) = P_i = 0 \\ \bullet \varepsilon_{zz} = A_1 \quad \text{ou} \quad \int_{R_i}^{R_e} r \sigma_{zz}(r) dr = 0 \end{array} \right. \quad (4.44)$$

Lors de la solidification, l'incrément de contrainte à chaque pas de temps dans les couches solides est donc déterminé en remplaçant le rayon  $R_i$  par le rayon de solidification  $r_s$  : (4.45).

$$\Delta\sigma_{rr}(r) = \frac{E}{r^2(1-\nu)} \left( \frac{r^2 - r_s^2}{Re^2 - r_s^2} \int_{r_s}^{Re} \rho \alpha_T \Delta T(\rho) d\rho - \int_{r_s}^r \rho \alpha_T \Delta T(\rho) d\rho \right) - \frac{\Delta P_i^e Re^2 (r^2 - r_s^2)}{r^2 (Re^2 - r_s^2)} \quad (a)$$

$$\Delta\sigma_{\theta\theta}(r) = \frac{E}{r^2(1-\nu)} \left( \frac{r^2 + r_s^2}{Re^2 - r_s^2} \int_{r_s}^{Re} \rho \alpha_T \Delta T(\rho) d\rho + \int_{r_s}^r \rho \alpha_T \Delta T(\rho) d\rho \right) - \frac{\alpha_T E \Delta T(r)}{1-\nu} - \frac{\Delta P_i^e Re^2 (r^2 + r_s^2)}{r^2 (Re^2 - r_s^2)} \quad (b)$$

$$\Delta\sigma_{zz}(r) = \frac{2\nu E}{(Re^2 - r_s^2)(1-\nu)} \int_{r_s}^{Re} \rho \alpha_T \Delta T(\rho) d\rho - \frac{\alpha_T E \Delta T(r)}{1-\nu} - \frac{2\nu \Delta P_i^e Re^2}{Re^2 - r_s^2} \quad (c)$$

$$\Delta u(r) = \frac{(1+\nu)}{r(1-\nu)} \left( \int_{r_s}^r \rho \alpha_T \Delta T(\rho) d\rho + \frac{r_s^2 + (1-2\nu)r^2}{Re^2 - r_s^2} \int_{r_s}^{R_s} \rho \alpha_T \Delta T(\rho) d\rho \right) - \frac{\Delta P_i^e (1+\nu)}{E} \left( \frac{Re^2 (r_s^2 + (1-2\nu)r^2)}{r(Re^2 - r_s^2)} \right) - \nu A_1 r \quad (d)$$

#### 4.3.4 Formation des contraintes résiduelles – Comportement liquide – solide élastique

##### a) Paramètres utilisés pour la modélisation des contraintes

	Etat liquide	Etat solide
Température de transition liquide - solide	92,5 °C	
Module élastique E	0	215 MPa
Coefficient de Poisson $\nu$	0.5	0.3
Coefficient de dilatation $\alpha_T$	150.10 <sup>-6</sup> K <sup>-1</sup>	
Rayon intérieur/extérieur	24.5/25 mm	
Température finale	16°C	
Vitesse en sortie de conformateur	12m/min	

La température de transition liquide – solide correspond au début de la cristallisation.

Le module élastique, E, ne correspond pas au module élastique défini lors de l'étude des propriétés viscoélastiques linéaires au chapitre précédent qui correspondait alors au module à l'état vitreux pour les très hautes fréquences. La valeur de 215MPa est donnée dans la fiche technique du produit.

L'évolution de la température correspond à celle décrit précédemment Figure 4.5.  $\alpha_T$ , le coefficient de dilatation linéaire, est constant dans ce chapitre et égal à 150.10<sup>-6</sup> K<sup>-1</sup>. Nous ne prenons pas en compte la forte variation du volume spécifique au moment de la cristallisation primaire, ce qui permet d'atténuer l'hypothèse du module E indépendant de la température. Le coefficient de dilatation dépendra du taux de cristallinité dans le prochain chapitre.

##### b) Refroidissement libre :

Rappel : Lors du refroidissement libre, le tube est libre de se rétracter dans la direction radiale,  $\Delta P_i^e = 0$  . Les conditions aux limites axiales n'interviennent pas dans la formation des contraintes radiales,  $\sigma_{rr}$ , et circonférentielles,  $\sigma_{\theta\theta}$ .

Pendant la solidification, la formation des contraintes résiduelles est due à l'hétérogénéité du refroidissement et des caractéristiques mécaniques dans l'épaisseur. Lorsque toute l'épaisseur est solidifiée, la formation des contraintes résiduelles est alors uniquement due au gradient de température dans l'épaisseur et peut être déterminée en une seule étape.

##### Incrément de contrainte

Les incréments de contrainte  $\Delta\sigma_{rr}$  et  $\Delta\sigma_{\theta\theta}$  sont superposés Figure 4.8 et Figure 4.9 à la variation de température au cours d'un incrément  $\Delta T$ , et ce ; à deux instants lorsque le front de solidification est compris entre  $Re$  et  $Ri$  et lorsque il est égal à  $Ri$ .

- Nous confirmons que les incréments de contrainte radiale  $\Delta\sigma_{rr}$  sont très petits par rapport aux contraintes circonférentielles  $\Delta\sigma_{\theta\theta}$ , on aurait donc pu faire l'hypothèse des contraintes planes et considérer la formation des contraintes dans une plaque de faible épaisseur. Si nous considérons que  $Ri \sim Re \sim r \gg (Re - Ri)$  et si  $\alpha_T$  est constant alors l'équation (4.40) se simplifie en la relation (4.46)

$$\Delta\sigma_{\theta\theta}(r) \approx \frac{E \alpha_T}{r^2(1-\nu)} \left( \frac{r}{(Re - Ri)} \int_{Ri}^{Re} \rho \Delta T(\rho) d\rho + \int_{Ri}^r \rho \Delta T(\rho) d\rho - r^2 \Delta T(r) \right)$$

$$\frac{r}{(Re - Ri)} \int_{Ri}^{Re} \rho \Delta T(\rho) d\rho \gg \int_{Ri}^r \rho \Delta T(\rho) d\rho \quad ; \quad \frac{r}{(Re - Ri)} \int_{Ri}^{Re} \rho \Delta T(\rho) d\rho \approx r^2 \Delta T_{moyen}$$

$$\Delta\sigma_{\theta\theta} \approx \frac{\alpha_T E}{(1-\nu)} (\Delta T_{moyen} - \Delta T(r)) \quad (4.46)$$

L'incrément de contrainte, et donc les contraintes, sont proportionnels au module E et au coefficient de dilatation linéaire  $\alpha_T$ .

En ne faisant pas cette simplification, nous avons accès aux contraintes radiales dont les valeurs  $\sigma_{rr}(Ri)$  (ou  $\Delta\sigma_{rr}(r_s)$ ) et  $\Delta\sigma_{rr}(Re)$  correspondent aux conditions aux limites. Nous vérifions qu'à l'intersection liquide - solide  $\Delta\sigma_{rr}(r_s) = 0$ .

- (4.46) -> Si  $\Delta T(r) < \Delta T_{moyen} \Rightarrow \Delta\sigma_{\theta\theta}(r) > 0$  : La couche à la position (r) voudrait se rétracter davantage que le reste du tube, mais puisque la déformation est homogène il s'y forme des contraintes de traction.

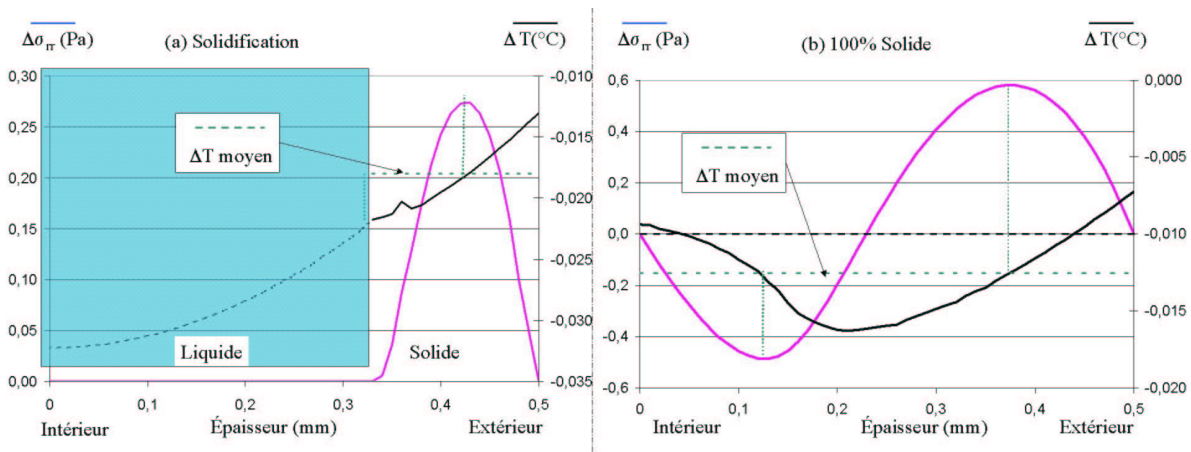


Figure 4.8: incrément des contraintes  $\Delta\sigma_{rr}$  au cours du refroidissement. Refroidissement libre (a) épaisseur liquide – solide ; (b) épaisseur 100% solide

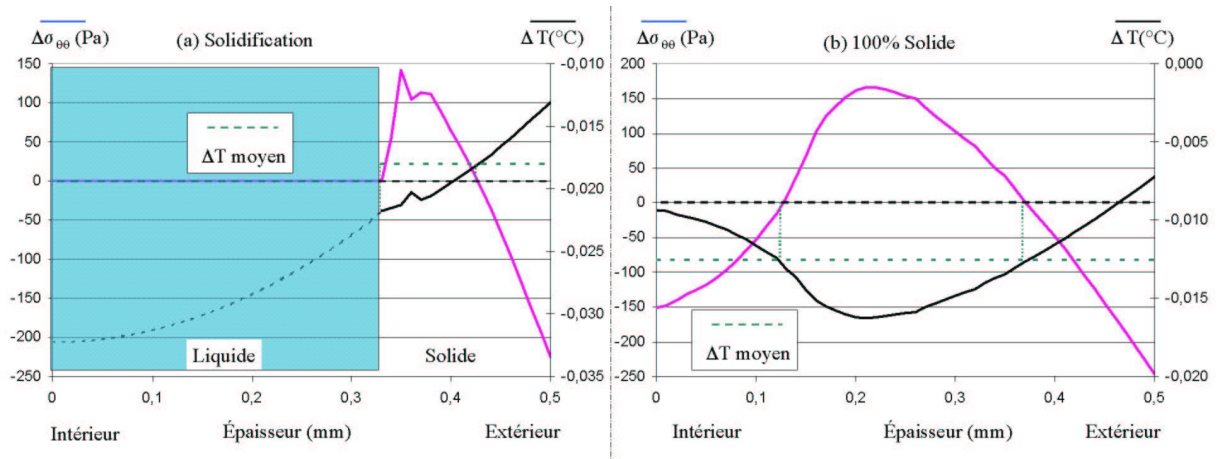


Figure 4.9 : incrément des contraintes  $\Delta\sigma_{\theta\theta}$  au cours du refroidissement. Refroidissement libre  
 (a) Lorsque le rayon du front de solidification est à 0,32mm de la paroi interne;  
 (b) Lorsque le front de solidification vient d’atteindre la paroi interne

Remarque 4.3 : L’incrément de la Figure 4.9 (b) se produit un peu après la fin de la solidification. La variation de température dans les couches situées près de la surface intérieure est faible en raison de la chaleur dégagée par la cristallisation. Ceci a pour conséquence d’induire des incréments de contraintes de compression dans les couches intérieures au moment de la solidification. Cet effet est fortement accentué par l’hypothèse de module élastique solide indépendant de la température.

Remarque 4.4 : L’épaisseur du tube étant très faible par rapport au rayon (rapport 50), la formation des contraintes dans le tube est équivalente à celle dans le plan. Si les extrémités du tube sont libres, la formation des contraintes  $\sigma_{zz}$  est équivalente à celle de  $\sigma_{\theta\theta}$ .

Profil de contrainte au cours du refroidissement

Les profils de contrainte  $\sigma_r$  et  $\sigma_{\theta\theta}$  pendant le refroidissement sont représentés à différents instants du refroidissement Figure 4.10 et Figure 4.11. Les champs de température correspondant aux instants choisis sont ceux représentés Figure 4.5 (b). Nous constatons qu’à la fin du refroidissement les couches intérieures sont en traction et les couches extérieures en compression ce qui est conforme à la bibliographie (par exemple (Struik, 1978, Goslinga, 1980)). Si nous découpons le tube suivant sa génératrice, ce profil de contrainte ferait s’enrouler le tube sur lui-même. Les contraintes  $\sigma_{\theta\theta}$  sont proportionnelles au coefficient de dilatation linéaire  $\alpha_r$  et au module élastique solide  $E$  (relation (4.46)).

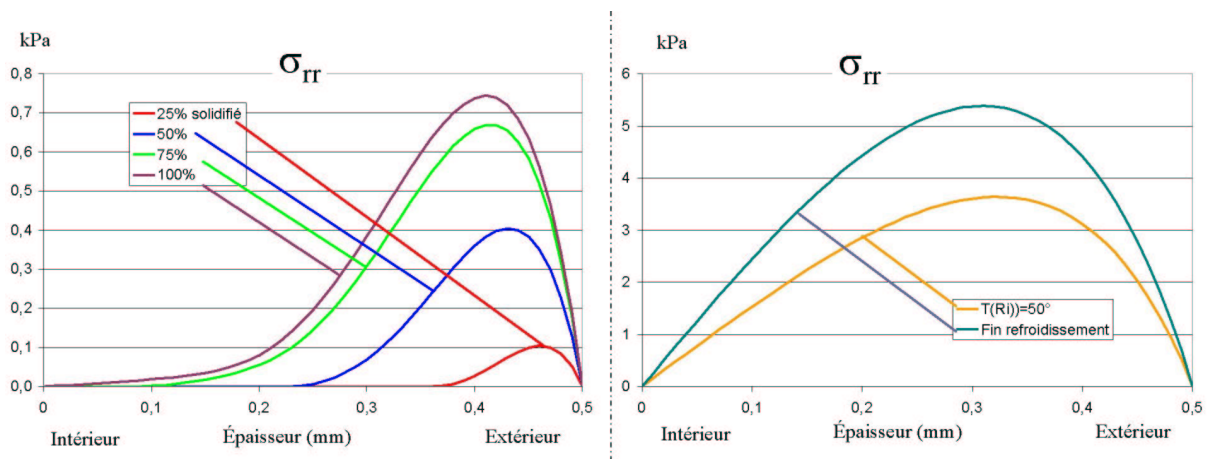
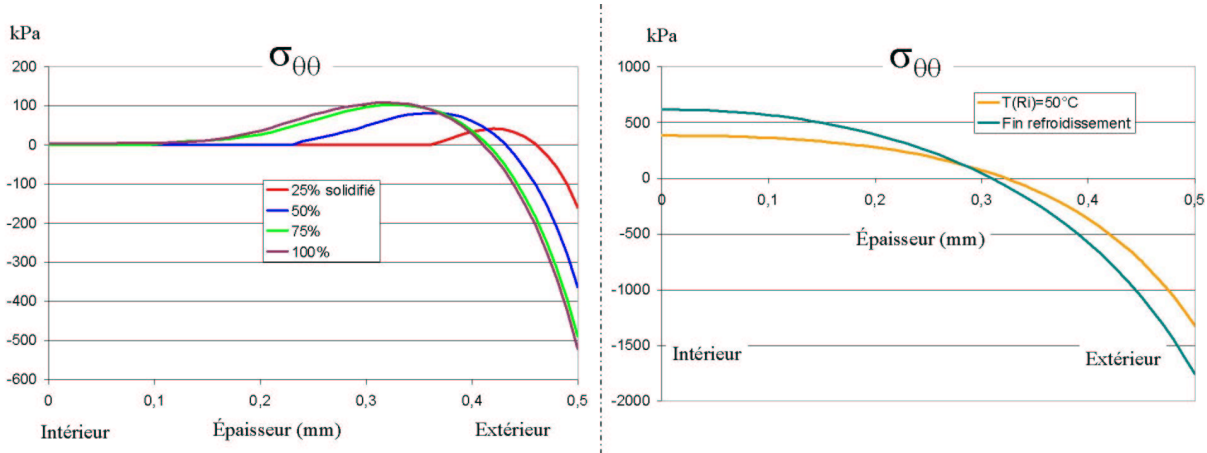


Figure 4.10 : profil des contraintes  $\sigma_{rr}$  pendant le refroidissement


 Figure 4.11 : profil des contraintes  $\sigma_{\theta\theta}$  pendant le refroidissement

Ces résultats ont été validés au cours du développement en les comparant à une solution analytique obtenue par Struik (Struik, 1978). Ceci nécessite d'imposer un champ particulier de refroidissement ne correspondant pas au procédé.

### c) Influence de la dépression

#### Incrément de contrainte

Si la condition aux limites appliquée à la surface extérieure est  $\Delta u(R_e) = 0$ , la pression à l'extérieur du tube n'est plus nulle. On impose cette condition aux limites en déterminant  $\Delta P_i^e$  à chaque incrément à partir de l'équation (4.45) (d) ou (4.43).

A partir du moment où la dépression du conformateur,  $P_{conf}$  est atteinte, le tube se décolle, les contraintes  $\sigma_r$  équilibrant la dépression. Ces contraintes ne se relaxant pas, on prendra comme conditions aux limites pour les incréments suivants  $\Delta P_i^e = 0$ . La dépression n'a alors plus influence sur les incréments de contraintes suivants qui se construisent comme lors du refroidissement libre.

Conditions aux limites :

Avant le décollement (cf.(4.43)) :

$$\begin{aligned}
 u(R_e) &= 0 \\
 \Rightarrow \Delta P_i^e &= -\Delta \sigma_{rr}(R_e) = \frac{2E}{(r_s^2 + (1-2\nu)Re^2)} \left( \int_{r_s}^{Re} \rho \alpha_T \Delta T(\rho) d\rho \right) \\
 &\quad - \frac{(Re^2 - r_s^2) \nu E A_1}{(1+\nu)(r_s^2 + (1-2\nu)Re^2)}
 \end{aligned} \tag{4.47}$$

Après le décollement :  $\Delta P_i^e = 0$

Les conditions aux limites axiales (constante  $A_1 = \epsilon_{zz}$ ) interviennent dans la formation des contraintes  $\sigma_r$  et  $\sigma_{\theta\theta}$  à travers l'incrément de dépression nécessaire pour maintenir le tube en contact avec la chambre de calibrage (4.47). Nous considérerons les deux conditions aux limites axiales suivantes :

- soit le tube est encastré à ses extrémités et donc  $A_1 = 0$

- soit le tube est libre de se rétracter et la constante  $A_1$  est déterminée tel que

$$\int_{R_i}^{R_e} r \sigma_{zz}(r) dr = 0 .$$

L'incrément de contrainte représenté Figure 4.12 correspond au même instant que celui décrit Figure 4.8(a) et Figure 4.9(a), mais la condition aux limites est  $u(R_e)=0$ . Aux contraintes dues au refroidissement hétérogène s'ajoutent celles dues à la condition de contact entre le tube et la chambre de calibrage. Si on fait l'hypothèse des contraintes planes,  $R_i \sim R_e \sim r \gg (R_e - R_i)$ , l'incrément de contraintes  $\Delta\sigma_{\theta\theta}$  est défini dans les couches à l'état solide par l'équation (4.48). Les contraintes se forment dans chaque couche indépendamment les unes des autres. Alors que dans le cas du refroidissement libre, l'incrément de contrainte était dû à la différence entre le refroidissement de la couche considérée et le refroidissement moyen dans l'épaisseur (cf.(4.46)). Si  $A_1=0$  :

$$\underline{u(R_e)=0} \quad + \quad \underline{\Delta T \text{ hétérogène}}$$

$$\sigma_{\theta\theta} \approx -\frac{\alpha_T E}{(1-\nu)} \Delta T_{moyen} + \frac{\alpha_T E}{(1-\nu)} (\Delta T_{moyen} - \Delta T(r))$$

$$\sigma_{\theta\theta} \approx -\frac{\alpha_T E}{(1-\nu)} \Delta T(r) \tag{4.48}$$

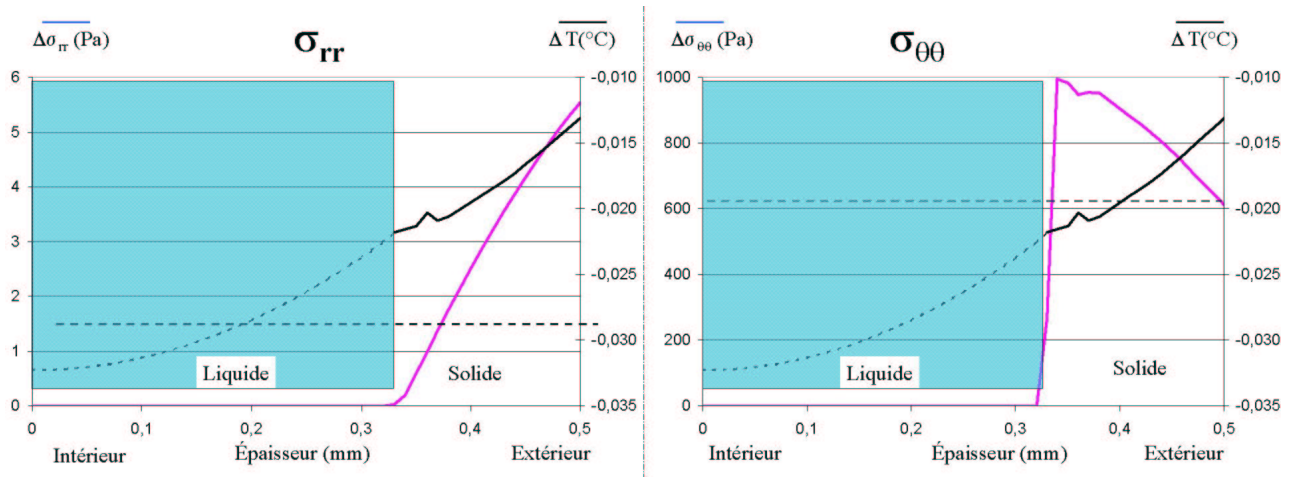


Figure 4.12 : incrément de contrainte au cours du refroidissement. Tube en contact avec la chambre de calibrage

Remarque 4.5 : Les équations (4.47) et (4.53) correspondent, pour une plaque, aux équations du premier chapitre qui nous avaient permis de faire une première estimation de la formation des contraintes résiduelles dans une barre. (Equation plaque = Equation barre/(1-ν))

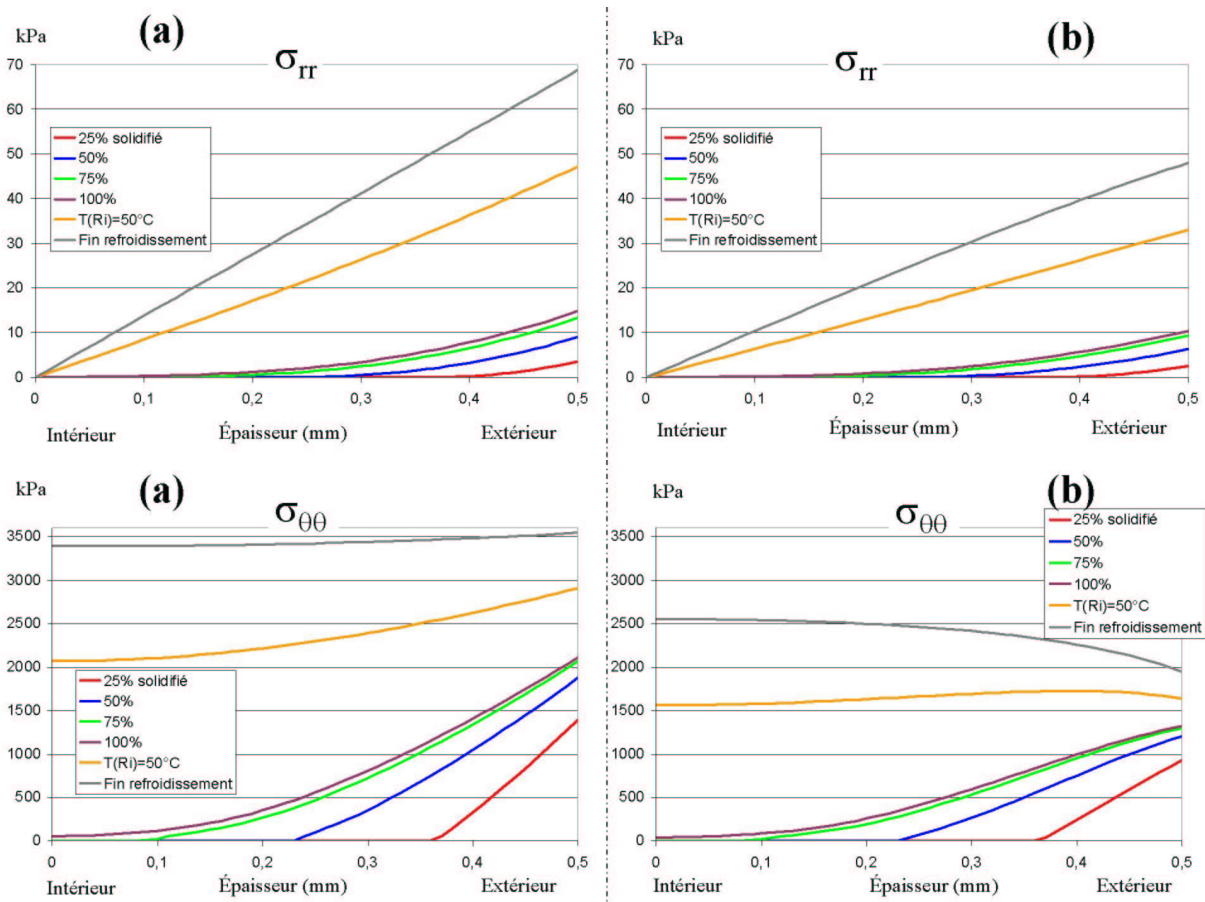
Profils des contraintes pendant le refroidissement (Figure 4.13)

- § Les contraintes radiales  $\sigma_{rr}$  sont très faibles par rapport à  $\sigma_{\theta\theta}$  et  $\sigma_{zz}$ . Nous aurions pu effectuer les hypothèses de contraintes planes.
- § Pour la condition aux limites axiales  $A_1=0$ , les contraintes  $\sigma_{\theta\theta}$  et  $\sigma_{zz}$  dépendent uniquement de  $(T_{solidification} - T(r))$ . Nous n'avons donc pas besoin de faire un calcul incrémental pour obtenir le profil de contrainte résiduelle. Le profil final de contrainte n'est donc pas dépendant de la vitesse de refroidissement.



§ Les conditions aux limites axiales ont une influence importante sur la formation des contraintes résiduelles. On remarque que les contraintes  $\sigma_{\theta\theta}$  sont plus importantes si le tube est encasté. Ceci est à relier à l'explication que nous avons donnée au 1<sup>er</sup> chapitre : *en appliquant une elongation axiale à un tube, on provoque une diminution du diamètre*. Ainsi bloquer les extrémités du tube est équivalent à appliquer une force axiale dont l'évolution au cours du refroidissement est représentée Figure 4.14. Ces deux exemples de condition aux limites montrent l'influence de la force d'étirage et donc que le frottement peut avoir.

§ Les profils des contraintes  $\sigma_{zz}$  correspondent aux deux types de profil de contrainte  $\sigma_{\theta\theta}$  obtenu pour les conditions aux limites de refroidissement libre et de contact. Puisque nous pouvons faire l'hypothèse des contraintes planes, les mécanismes de formation des contraintes dans les directions axiales et circonférentielles est équivalente (les contraintes  $\sigma_{\theta\theta}$  (b) sont données avant le relâchement de la dépression).



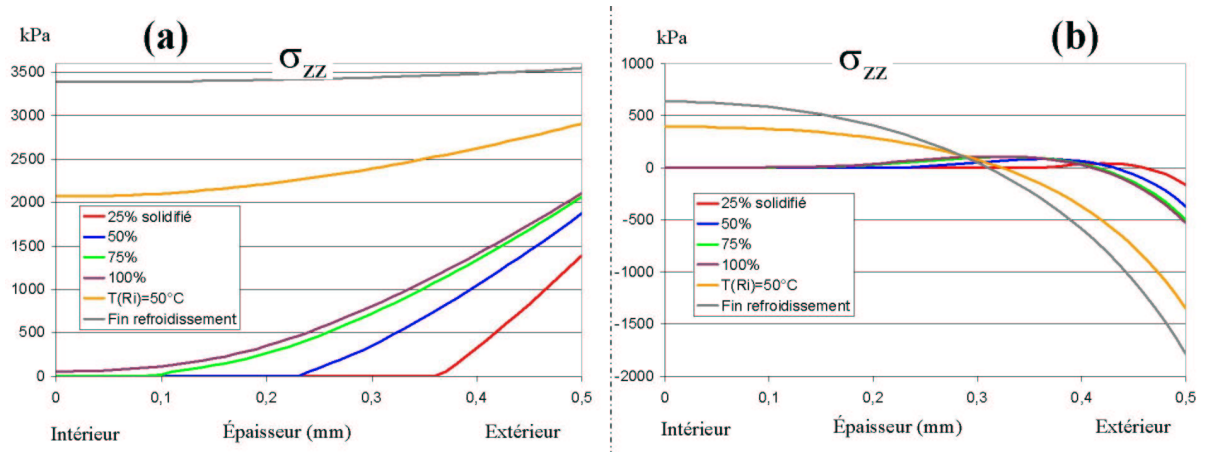


Figure 4.13 : profil des contraintes pendant le refroidissement ( $u(Re)=0$ ) pour les deux conditions aux limites axiales. (a)  $A_1=0$ , bords encastés ; (b)  $F_{\text{étirage}}=0$  bords libres

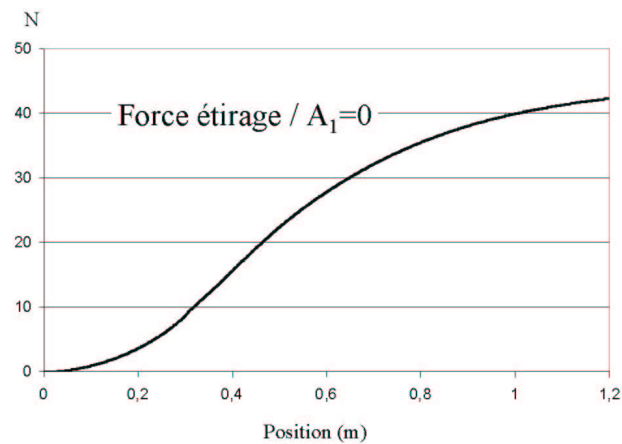


Figure 4.14 : évolution de la force axiale permettant de satisfaire la condition  $A_1=0$

- $\sigma_{rr}(Re)$  correspond à la pression,  $P^e$ , nécessaire pour maintenir le tube en contact avec la chambre de calibrage. Son évolution au cours du refroidissement est représentée Figure 4.15 pour les deux types de conditions aux limites axiales. Dans les deux cas, il est nécessaire d'avoir des dépressions plus élevées que celles du procédé qui pour ce matériau sont de l'ordre de 150mbars (15kPa) ( $50 \text{ kPa} = 0,5 \text{ bars}$ ), il y aura donc une perte de contact au cours du refroidissement.

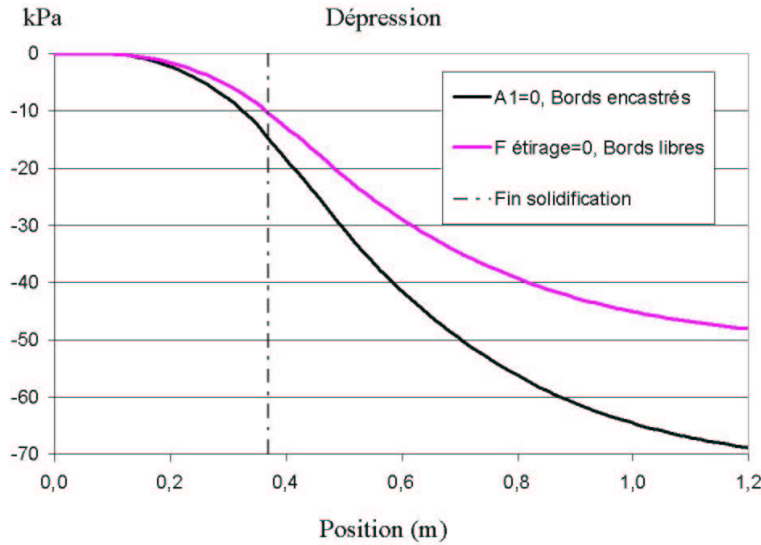


Figure 4.15 : pression nécessaire pour maintenir le tube en contact avec la chambre de calibrage

**Remarque 4.6 :** Les contraintes se forment dans chaque couche indépendamment les unes des autres. Ainsi si on intègre au cours du temps tous les incréments de contraintes (équation (4.48)), on trouverait avec les hypothèses des contraintes planes et  $A_1=0$  les résultats ci-dessous validant la simulation.

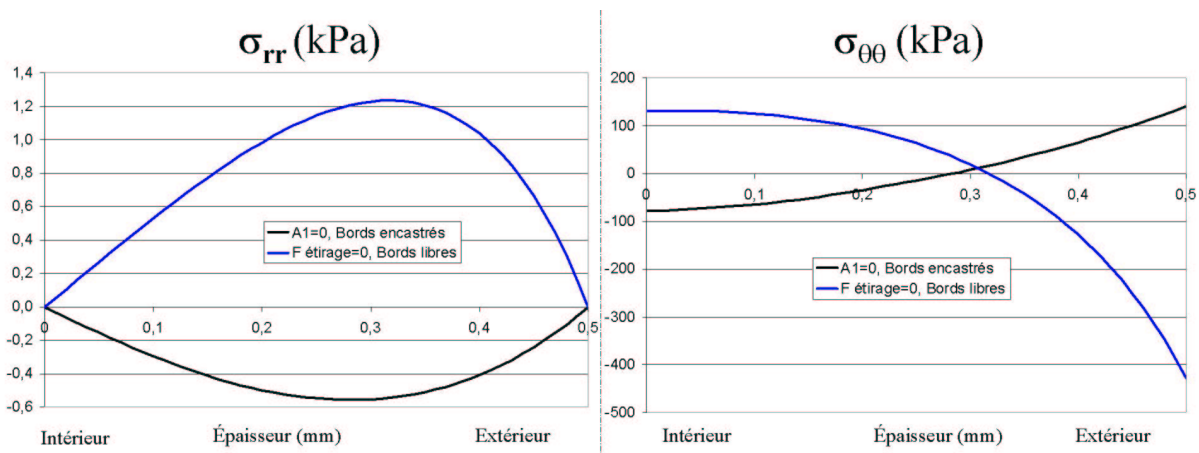
$$\sigma_{\theta\theta} = \frac{\alpha_T E}{1-\nu} (T_{\text{solidification}} - T_{\text{final}}) = \frac{150 \cdot 10^{-6} \cdot 215 \cdot 10^{-6}}{0,7} (92 - 16) = 3,52 \cdot 10^6 \text{ Pa}$$

soit une pression pour maintenir le contact  $-\sigma_{rr}(Re) = Pe = -\sigma_{\theta\theta} (Re - Ri) / Re = 70,4 \text{ kPa}$

#### Profil des contraintes à l'équilibre

En sortant du conformateur, la pression à l'extérieur du tube redevient égale à la pression atmosphérique. Ceci revient à appliquer une pression sur la surface extérieure égale à l'opposé de la dépression du conformateur,  $P_{\text{conf}}$  : équation (4.49). Le profil des contraintes  $\sigma_{rr}$  et  $\sigma_{\theta\theta}$  final est représenté Figure 4.16.

$$\Delta\sigma_{rr}(r) = -\frac{P_{\text{conf}} Re^2 (r^2 - Ri^2)}{r^2 (Re^2 - Ri^2)} \quad \Delta\sigma_{\theta\theta}(r) = -\frac{P_{\text{conf}} Re^2 (r^2 + Ri^2)}{r^2 (Re^2 - Ri^2)} \quad (4.49)$$


 Figure 4.16 : profil des contraintes  $\sigma_{rr}$  et  $\sigma_{\theta\theta}$  à l'équilibre

En comparant les profils de contrainte obtenus pour les conditions de refroidissement libre et pour les conditions de contact, nous constatons que la dépression a pour effet de diminuer le profil des contraintes et même de l'inverser si on impose une force axiale afin de simuler l'encastrement des extrémités. La condition aux limites  $u(Re)=0$  n'est pas représentative du procédé pendant tout le refroidissement car elle nécessiterait une dépression beaucoup trop élevée. Une combinaison des deux conditions aux limites est donc plus réaliste :

- au début du procédé le tube est en contact avec la chambre de calibrage. Les incréments de contrainte se forment comme décrit ci-dessus.
- puis lorsque la pression qui serait nécessaire à maintenir le contact est supérieure à la dépression dans le conformateur, le tube peut se rétracter et les incréments de contrainte suivants se construisent comme lors du refroidissement libre.

Nous allons voir ci-dessous que l'influence de l'évolution des conditions aux limites sur le profil final des contraintes dépendra du moment où celle-ci se produit par rapport à l'avancée de la solidification.

#### Evolution des conditions aux limites avant la fin de la solidification

La Figure 4.17 montre la différence de formation des contraintes entre les couches solidifiées avant ou après l'évolution des conditions aux limites :

- Avant l'évolution des conditions aux limites, les contraintes se forment suivant la condition aux limites  $u(Re)=0$ . Les contraintes de traction se figent uniquement dans les couches déjà solidifiées.
- Après, les contraintes  $\sigma_{\theta\theta}$ , qui se sont formées équilibrent la dépression extérieure et les incréments de contraintes suivants se forment comme lors du refroidissement libre.

Les contraintes finales sont égales à la somme de l'ensemble. Nous remarquons sur les profils obtenus pour différentes dépressions Figure 4.18, que la première partie revient uniquement à fixer des contraintes de traction dans les couches qui étaient solidifiées avant l'évolution des conditions aux limites. Le point singulier dans le profil des contraintes correspond à l'emplacement du front de solidification au moment de l'évolution des conditions aux limites.

L'influence de la dépression sur le profil final des contraintes est représentée avant de rétablir l'équilibre Figure 4.18 et après Figure 4.19. On remarque Figure 4.18 comment les contraintes de traction  $\sigma_{\theta\theta}$  se figent dans les couches solidifiées avant l'évolution des conditions aux limites et Figure 4.19 comment celles-ci font s'annuler et s'inverser le profil des contraintes après avoir rétabli l'équilibre.

A la fin du refroidissement, lorsque l'on applique une pression extérieure permettant de rétablir l'équilibre des contraintes, toutes les couches sont solidifiées. Ainsi la pression qui équilibrait les contraintes de traction et qui était concentrée dans les couches extérieures est répartie sur l'ensemble des couches.

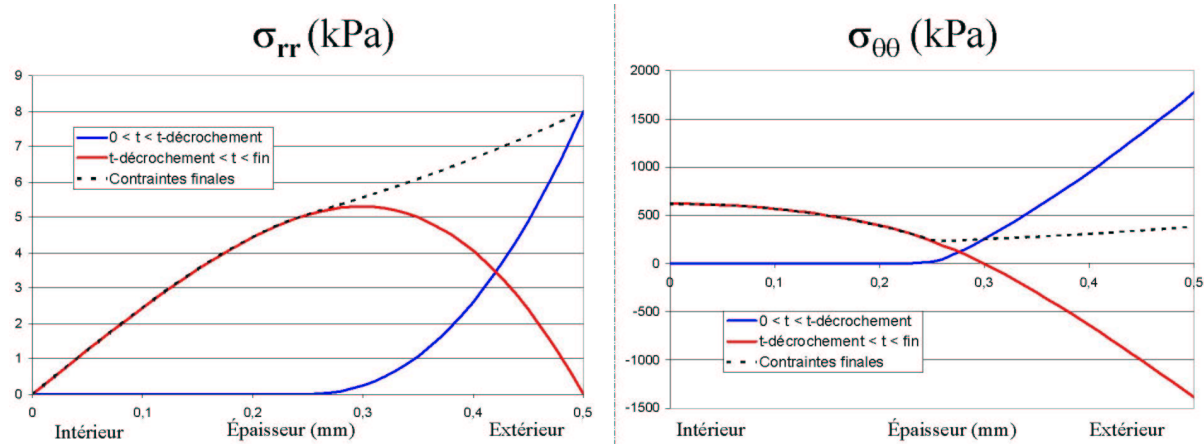


Figure 4.17 : contraintes se formant avant et après la perte de contact pendant la solidification. Dépression  $Pe=8\text{kPa}$

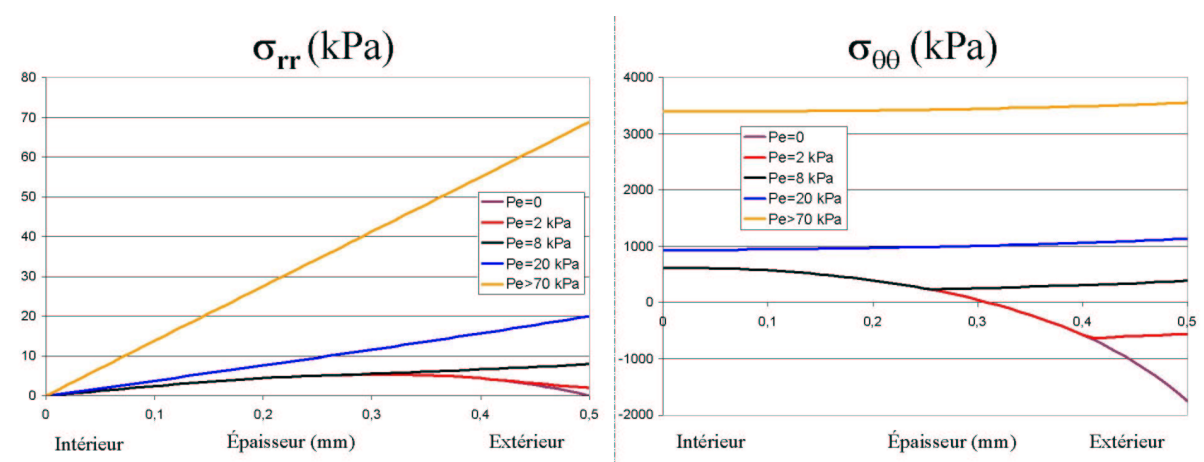


Figure 4.18 : contraintes  $\sigma_{rr}$  et  $\sigma_{\theta\theta}$  dans le conformateur pour différentes dépressions avant de rétablir l'équilibre

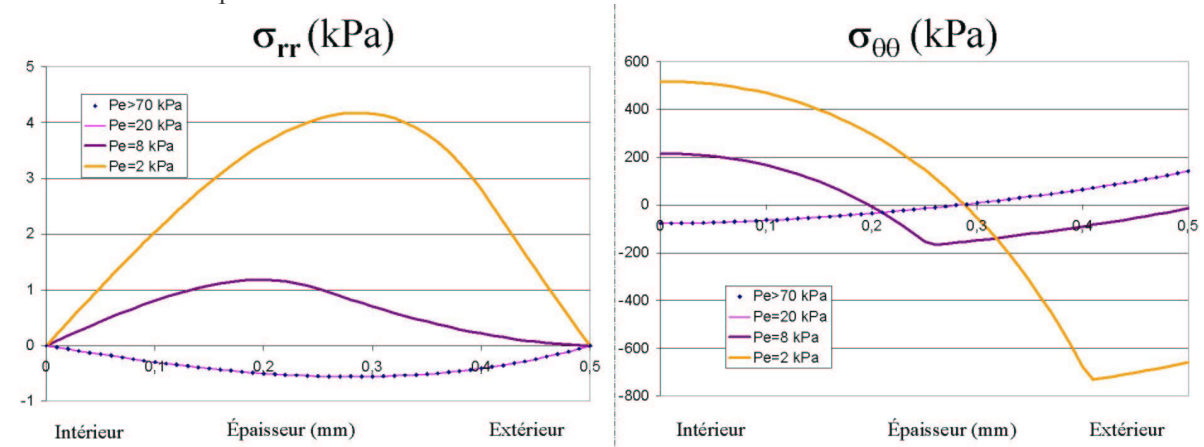


Figure 4.19 : contraintes  $\sigma_{rr}$  et  $\sigma_{\theta\theta}$  à l'équilibre pour différentes dépressions après avoir rétabli l'équilibre

#### Evolution des conditions aux limites après la fin de la solidification

Pour les dépressions de 20 et 70 kPa, l'évolution des conditions aux limites se produit après la fin de la solidification (Figure 4.19). Les profils de contraintes correspondant aux dépressions 20 et 70 kPa sont superposés. Nous remarquons Figure 4.19 que la dépression n'a alors plus d'influence sur le profil des contraintes après avoir rétabli l'équilibre. Si le passage de l'état liquide à l'état solide est terminé, le moment où se produit l'évolution des

conditions aux limites n'a plus aucune influence. Ceci est facilement démontré par les calculs ci-dessous pour  $\sigma_{\theta\theta}$ .

Entre la fin de la solidification et la fin du refroidissement, nous séparons le refroidissement  $\Delta T_{sol}^f$  en deux incréments.

- De la fin de la solidification à l'évolution des conditions aux limites, le tube se refroidit de  $\Delta T_{sol}^{ev}$  et il est nécessaire d'appliquer l'incrément de pression  $\Delta P_{sol}^{ev}$ .
- De l'évolution des conditions aux limites à la fin du refroidissement, le tube se refroidit de  $\Delta T_{ev}^f$  et l'incrément de pression est nul.

Soit donc  $\Delta T_{sol}^f = \Delta T_{sol}^{ev} + \Delta T_{ev}^f$

La formation des contraintes est également séparée en deux étapes  
 $\Delta_{sol}^f \sigma_{\theta\theta} = \Delta_{sol}^{ev} \sigma_{\theta\theta} + \Delta_{ev}^f \sigma_{\theta\theta}$  :

- 1<sup>ère</sup> étape : formation des contraintes résiduelles entre la fin de la solidification et l'évolution des conditions aux limites. D'après (4.40) :

$$\Delta_{sol}^{ev} \sigma_{\theta\theta}(r) = \frac{E}{r^2(1-\nu)} \left( \frac{r^2 + Ri^2}{Re^2 - Ri^2} \int_{Ri}^{Re} \rho \alpha_T \Delta_{sol}^{ev} T(\rho) d\rho + \int_{Ri}^r \rho \alpha_T \Delta_{sol}^{ev} T(\rho) d\rho \right) - \frac{E \alpha_T \Delta_{sol}^{ev} T(r)}{1-\nu} - \frac{\Delta_{sol}^{ev} P^e Re^2 (r^2 + Ri^2)}{r^2 (Re^2 - Ri^2)}$$

- 2<sup>ème</sup> étape : entre l'évolution des conditions aux limites et la fin du refroidissement. D'après (4.40) :

$$\Delta_{ev}^f \sigma_{\theta\theta}(r) = \frac{E}{r^2(1-\nu)} \left( \frac{r^2 + Ri^2}{Re^2 - Ri^2} \int_{Ri}^{Re} \rho \alpha_T \Delta_{ev}^f T(\rho) d\rho + \int_{Ri}^r \rho \alpha_T \Delta_{ev}^f T(\rho) d\rho \right) - \frac{E \alpha_T \Delta_{ev}^f T(r)}{1-\nu}$$

Avant de rétablir l'équilibre, l'incrément de contrainte de la fin de la solidification à l'état final est égal à l'expression (4.50). Seule la pression  $\Delta_{sol}^{ev} P^e$  dépend du moment où intervient la modification des conditions aux limites:

$$\Delta_{sol}^f \sigma_{\theta\theta}(r) = \frac{E}{r^2(1-\nu)} \left( \frac{r^2 + Ri^2}{Re^2 - Ri^2} \int_{Ri}^{Re} \rho \alpha_T \Delta_{sol}^f T(\rho) d\rho + \int_{Ri}^r \rho \alpha_T \Delta_{sol}^f T(\rho) d\rho \right) - \frac{E \alpha_T \Delta_{sol}^f T(r)}{1-\nu} - \frac{\Delta_{sol}^{ev} P^e Re^2 (r^2 + Ri^2)}{r^2 (Re^2 - Ri^2)} \quad (4.50)$$

Pour rétablir l'équilibre, il est nécessaire d'appliquer une pression sur la surface extérieure égale à la dépression du conformateur  $P_{conf}$ . Cette dépression peut aussi être décomposée en deux parties : la pression nécessaire à maintenir le tube en contact pendant la solidification  $\Delta P_{solidification}$  et l'incrément de pression  $\Delta_{sol}^{ev} P^e$ .

$$\Delta \sigma_{\theta\theta} \text{ équilibre} = \frac{Re^2 (r^2 + Ri^2)}{r^2 (Re^2 - Ri^2)} (\Delta P_{solidification} + \Delta_{sol}^{ev} P^e) \quad (4.51)$$

Les contraintes finales sont donc égales aux contraintes se formant pendant la solidification  $\Delta_{solidification} \sigma_{\theta\theta} + \Delta_{sol}^f \sigma_{\theta\theta}$  (4.50) + les contraintes pour rétablir l'équilibre :  $\Delta \sigma_{\theta\theta}$  équilibre (4.51).

En additionnant les équations (4.50) et (4.51), les termes faisant intervenir  $\Delta_{sol}^{ev} P^e$  se simplifient. Le moment où intervient la modification des conditions aux limites après la fin de la solidification n'a donc plus aucune influence sur le profil final des contraintes à l'équilibre. Le même raisonnement est valable pour les contraintes  $\sigma_{rr}$  et  $\sigma_{zz}$ .

#### d) Influence des frottements

L'influence des conditions aux limites axiales a permis de remarquer une première fois le rôle des efforts axiaux lorsque le tube est plaqué contre la chambre de calibrage.

Afin de modéliser l'évolution des frottements, nous considérerons une loi de Coulomb entre le tube et la chambre de calibrage. L'incrément de la force de frottement sur une tranche est proportionnel :

- à la pression de contact entre le tube et la chambre de calibrage. La pression de contact est égale à la différence entre la pression dans le conformateur,  $P_{conf}$  et la pression  $P^e(t)$  nécessaire pour imposer la condition  $u(Re)=0$ .
- à la surface de contact entre la tranche et la chambre de calibrage.
- au coefficient de Coulomb  $C$  (4.52). Dans les exemples ci-dessous  $C$  est égal à 0,15.

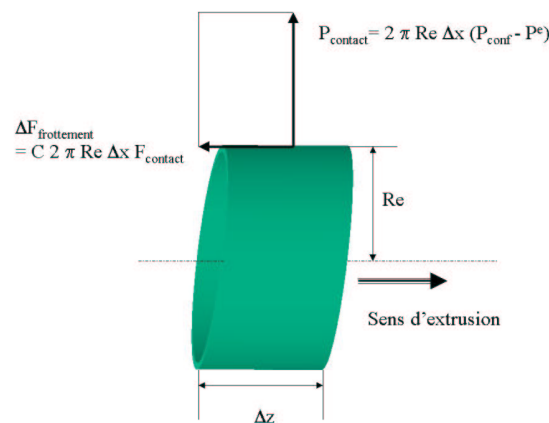


Figure 4.20 : incrément de la force de frottement sur une tranche

$$\Delta F_{frottement}(t) = C \cdot (P_{conf} - P^e(t)) \cdot 2\pi \cdot Re \cdot vitesse \cdot \Delta t$$

$$F_{frottement}(t) = \sum \Delta F_{frottement}(t) \quad (4.52)$$

Afin de pouvoir considérer les frottements, il est nécessaire de pouvoir appliquer une force comme condition aux limites axiale. Les contraintes  $\sigma_{zz}$  ne peuvent équilibrer cette force que si le tube a déjà commencé à se solidifier. Nous considérerons donc ici que les frottements ne peuvent apparaître que lorsque le tube a commencé à se solidifier. Cette hypothèse est contraire à la réalité, puisque la pression de contact est maximale lorsque le matériau est à l'état liquide (la pression nécessaire à maintenir le tube en contact,  $P^e(t)$ , étant nulle). C'est normalement au début que les incréments de frottement sont les plus importants.

Les profils finaux des contraintes  $\sigma_{\theta\theta}$  et  $\sigma_{zz}$  sont représentés Figure 4.21 pour les 3 types de conditions aux limites : refroidissement libre, dépression de 8kPa dans le conformateur (force d'étrépage axiale égale à 0) et en prenant en compte les frottements à partir du début de la solidification. Les profils de contrainte sont représentés avant de rétablir l'équilibre afin d'identifier à quel rayon l'évolution des conditions aux limites a eu lieu.

En prenant en compte l'effet des frottements, nous remarquons que les contraintes de traction  $\sigma_{\theta\theta}$  équilibrant la dépression se concentrent davantage dans les couches extérieures inversant ainsi complètement le profil de contrainte. Cette remarque est également valable pour les contraintes axiales  $\sigma_{zz}$  équilibrant les frottements.

La perte de contact entre le tube et la chambre de calibrage a lieu plus tôt si nous prenons en compte les frottements. En effet à chaque pas de temps, il faut équilibrer l'incrément de la force de frottement sur la tranche. Celle-ci étant forcément une force de traction, le tube compense par une elongation axiale entraînant une diminution du diamètre. L'incrément de dépression pour maintenir le tube en contact avec la chambre de calibrage est donc plus important et le « potentiel » de dépression disponible dans le conformateur est atteint plus rapidement. Nous fixons davantage de contraintes de traction dans les couches extérieures.

L'évolution de la dépression nécessaire pour maintenir la condition de contact est représentée Figure 4.24. Celle-ci est maintenant dépendante de la dépression disponible dans le conformateur.

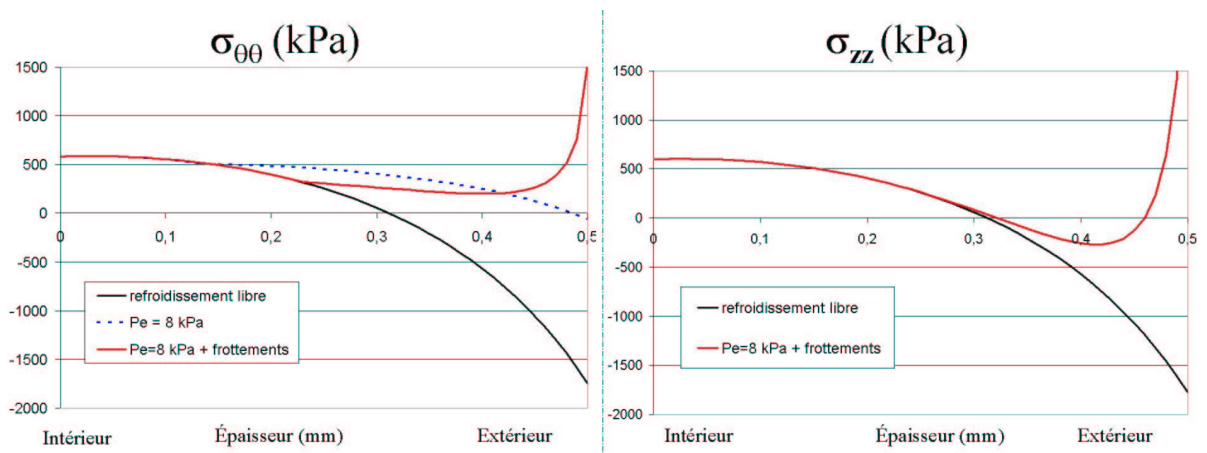


Figure 4.21 : influence des frottements sur le profil des contraintes (avant de rétablir l'équilibre)

Les profils de contraintes finaux sont représentés pour différentes dépressions sur les Figure 4.22 et Figure 4.23. Nous remarquons une inversion complète des profils de contraintes  $\sigma_{\theta\theta}$  et  $\sigma_{zz}$ . Le tube s'ouvrirait si il était découpé suivant une de ses génératrices et les contraintes axiales pourraient ensuite le faire s'enrouler dans l'autre direction. La surface initialement à l'extérieur serait alors située à l'intérieur du tube qui s'est reformé.

La relation (4.52) montre que l'influence de la dépression dans le conformateur est maintenant double :

- § elle intervient comme précédemment sur le moment où se produit l'évolution des conditions aux limites,
- § mais elle intervient aussi sur la valeur des incréments de force de frottement et donc sur l'évolution de la pression nécessaire à maintenir le contact.

Sans les frottements, la dépression dans le conformateur n'avait plus d'influence sur le profil de contrainte si elle était supérieure à la pression nécessaire pour maintenir le contact jusqu'à la fin de la solidification (Figure 4.19  $P^e=20$  ou  $>70$ kPa). L'évolution de la pression  $P^e$  était indépendante de la dépression dans le conformateur (Figure 4.15).

Ce n'est plus cas si l'on prend en compte les frottements. Nous remarquons Figure 4.23 que nous n'obtenons pas les mêmes profils de contraintes à l'équilibre pour deux dépressions ( $Pe=20$  kPa et  $Pe=40$ kPa) supérieures à la pression nécessaire pour maintenir le contact jusqu'à la fin de la solidification. Ceci est dû à l'influence de la dépression sur l'évolution



des frottements. Cette dépendance fait qu'il faut une dépression supérieure pour maintenir le contact jusqu'à la fin de la solidification.

Remarque 4.7 : Les contraintes proches de la surface extérieure sont très importantes pour ce matériau (14MPa). Ces valeurs sont dues à la loi de comportement simplifiée que nous utilisons. Le passage immédiat du liquide au solide sur une très faible épaisseur entraîne une concentration de contraintes importante. Pour décrire de façon plus réaliste cette étape, il est nécessaire de tenir compte des contraintes présentes dans les couches non solidifiées.

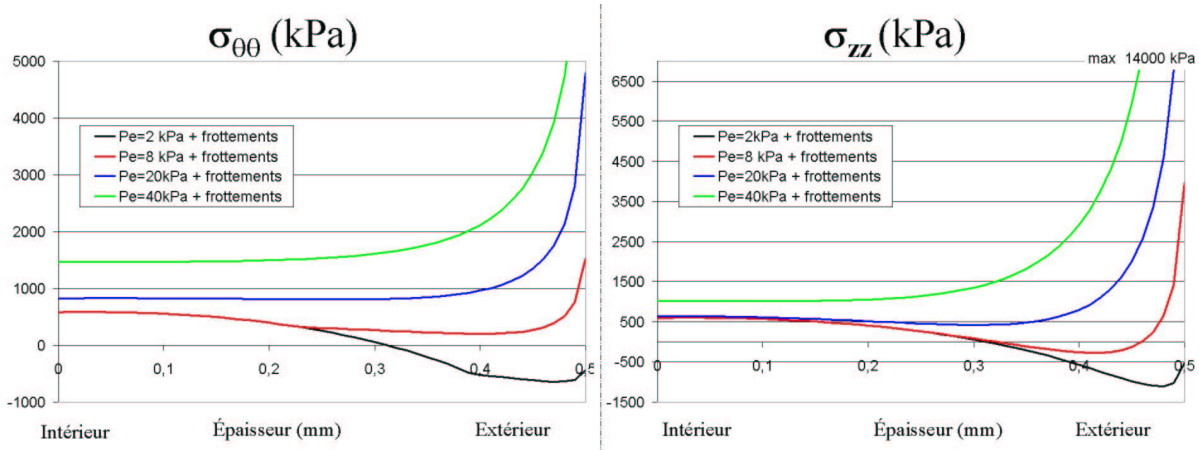


Figure 4.22 : influence de la dépression combinée aux frottements. (Profils de contrainte obtenus avant de rétablir l'équilibre)

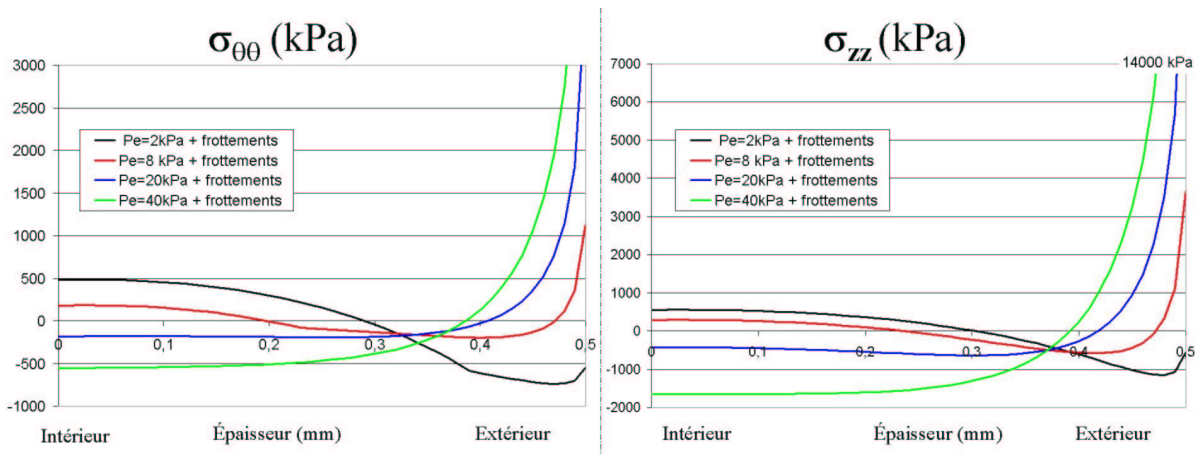


Figure 4.23 : influence de la dépression combinée aux frottements. (Profils de contrainte obtenus après avoir rétabli l'équilibre)

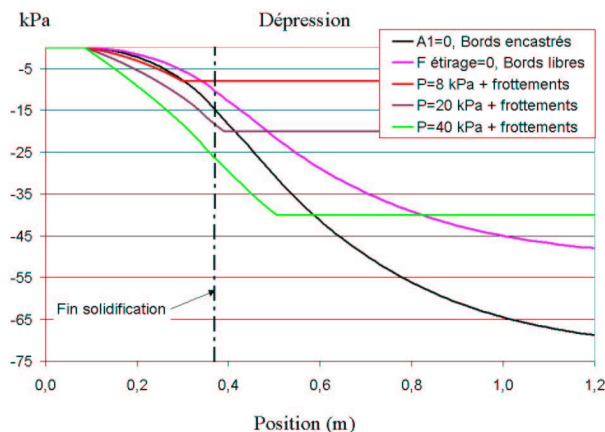


Figure 4.24 : évolution de la pression nécessaire pour maintenir le contact (Pe)

La formation d'un gradient de contraintes est due à la variation de la force d'étrépage axiale pendant la solidification et non à sa valeur absolue. L'influence du frottement est importante car il entraîne **une variation de la force d'étrépage axiale pendant la solidification**. Il peut ainsi introduire un gradient de contraintes important pendant la solidification. L'hypothèse de frottement nul avant le début de solidification a donc certainement peu d'influence sur les résultats.

#### 4.4 Comportement liquide – solide élastique dépendant de la température

##### 4.4.1 Détermination du champ de contraintes

A part dans le cas particulier de l'incompressibilité ( $\nu=0,5$ ), l'équation (4.33) ne possède pas de solution analytique si le module est dépendant de la température. Si  $\nu=0,5$ , Trostel a déterminé une solution exacte (Trostel, 1958). Une solution approchée, dérivée de ces résultats, est proposée par (Stanisic et Mckinley, 1959) pour un coefficient de Poisson  $\nu$  quelconque mais constant dans l'épaisseur. Cet auteur propose également une résolution numérique de l'équation (4.33) par la méthode des différences finies.

D'autres résolutions de l'équation (4.33) sont également proposées pour des thermo-dépendances particulières du module d'Young ou du coefficient de Poisson (Noda, 1986).

Pour un champ de température particulier, Stanisic montre que la différence entre les solutions analytique et numérique est inférieure à 3%. Ces deux méthodes ont été testées pour calculer le profil des contraintes résiduelles. La variation importante du module d'Young lors de la cristallisation entraînant des instabilités avec la méthode numérique, nous avons préféré utiliser la méthode analytique approchée pour le reste du développement.

Solution approchée de Stanisic (Stanisic et Mckinley, 1959) :

Pour des conditions aux limites radiales en pression :  $\sigma_{rr} = -Pi$  ;  $\sigma_{\theta\theta} = -Pe$

$$\begin{cases} \Delta\sigma_{rr} = -Pi - (\Delta Pe - Pi) \left( \frac{\varphi_1(r)}{\varphi_1(Re)} \right) + \frac{1}{1-\nu} \varphi_3(Re) \left( \frac{\varphi_1(r)}{\varphi_1(Re)} - \frac{\varphi_3(r)}{\varphi_3(Re)} \right) \\ \Delta\sigma_{\theta\theta} = -Pi - (\Delta Pe - Pi) \left( \frac{\frac{E}{r^2} + \varphi_1(r)}{\varphi_1(Re)} \right) + \frac{1}{1-\nu} \varphi_3(Re) \left( \frac{\frac{E}{r^2} + \varphi_1(r)}{\varphi_1(Re)} - \frac{\varphi_2(r) + \varphi_3(r)}{\varphi_3(Re)} \right) \\ \Delta\sigma_{zz} = \nu (\Delta\sigma_{rr} + \Delta\sigma_{\theta\theta}) + A_1 E(r) - E(r) \alpha_T \Delta T \end{cases} \quad (4.53)$$

avec

$$\begin{aligned} \varphi_1(r) &= \int_{Ri}^r \frac{E(\rho)}{\rho^3} d\rho \\ \varphi_2(r) &= \frac{E(r)}{r^2} \int \rho^2 \alpha_T(\rho) \frac{d\Delta T}{d\rho} d\rho \\ \varphi_3(r) &= \int_{Ri}^r \frac{1}{\rho} \varphi_2(\rho) d\rho \end{aligned}$$

Le déplacement radial est obtenu à partir de l'équation (4.27) :

$$\Delta u(r) = \frac{r}{E} \left[ (1-\nu^2) \Delta \sigma_{\theta\theta} - \nu(1+\nu) \Delta \sigma_{rr} \right] - \nu r A_1 + (1+\nu) r \alpha_T \Delta T \quad (4.54)$$

Ces équations ont été implémentées dans le programme précédent et reliées au calcul thermique de Therm 4.0. La prise en compte à l'état solide d'un module élastique dépendant de la température modifie la loi de superposition précédente : il est nécessaire de prendre en compte un terme de couplage thermique dans l'équation (4.23). Ce terme traduit l'influence de la variation du module élastique sur les contraintes si la déformation est supposée constante entre deux incréments.

$$[\dot{\sigma}] = [D(T)] : \dot{\varepsilon} + \dot{T} [D(T)] \times \frac{\partial [D(T)]}{\partial T} : \varepsilon \quad (4.55)$$

En utilisant la loi de Hooke, on obtient les relations entre les parties déviatoriques  $s$  et  $\dot{\varepsilon}$  des tenseurs des contraintes  $\sigma$  et des vitesses de déformations  $\dot{\varepsilon}$

$$\begin{cases} [\dot{s}] = 2G [\dot{\varepsilon}] + \dot{T} \frac{1}{G} \frac{\partial G}{\partial T} [s] \\ \dot{p} = -K \text{Trace}(\dot{\varepsilon}) + \dot{T} \frac{1}{K} \frac{\partial K}{\partial T} p \end{cases}$$

Le coefficient de Poisson est considéré indépendant de la température.

$$\frac{\Delta G}{G} = \frac{\Delta E}{2(1-2\nu)} \frac{2(1-2\nu)}{E} = \frac{\Delta E}{E} \quad \frac{\Delta K}{K} = \frac{\Delta E}{(1-2\nu)} \frac{(1-2\nu)}{E} = \frac{\Delta E}{E}$$

donc si  $[\varepsilon]$  est constant (étape intermédiaire entre deux incréments)  $[\Delta\sigma] = \frac{\Delta E}{E} [\sigma]$

Remarque 4.8 : Dans le cadre de notre étude, les contraintes de cisaillement étant nulles, les termes de rotation sont nuls et donc la dérivée objective de Jaumann est égale à la dérivée particulière du tenseur des contraintes de Cauchy.

Ces expressions sont plus explicites en considérant un cas 1D. Nous considérons l'exemple 1D d'une barre soumise à une déformation constante  $\varepsilon_0$ . La barre est au début à 100°C et elle refroidit jusqu'à 20°C. Le matériau est supposé avoir un coefficient de dilatation nul et le module dépend de la température.

L'incrément de contrainte est scindé en deux étapes. La 1<sup>ère</sup> étape correspond à l'incrément dû à la variation de température et le second à l'incrément de déformation.

$$\Delta\sigma = \Delta(E.\varepsilon) = \Delta E.\varepsilon + E.\Delta\varepsilon \quad (4.56)$$

1<sup>ère</sup> étape    2<sup>ème</sup> étape

$$\sigma(100^\circ) = E_{100^\circ}.\varepsilon_0; \quad \sigma(20^\circ) = E_{20^\circ}.\varepsilon_0 = \frac{E_{20^\circ}}{E_{100^\circ}} \sigma(100^\circ) \Rightarrow \Delta\sigma = (E_{20^\circ} - E_{100^\circ}).\varepsilon_0$$

A chaque incrément de temps, il faut réactualiser le champ des contraintes afin de prendre en compte cet incrément supplémentaire de contrainte. L'évolution des contraintes lors de la 1<sup>ère</sup> étape est équivalente dans les trois directions :

$$\sigma_{rr}(T_{i+1}) = \sigma_{rr}(T_i) \frac{E(T_{i+1})}{E(T_i)}; \sigma_{\theta\theta}(T_{i+1}) = \sigma_{\theta\theta}(T_i) \frac{E(T_{i+1})}{E(T_i)}; \sigma_{zz}(T_{i+1}) = \sigma_{zz}(T_i) \frac{E(T_{i+1})}{E(T_i)} \quad (4.57)$$

Mais il faut également s'assurer que les conditions d'équilibre soient toujours satisfaites entre les contraintes  $\sigma_{rr}$  et  $\sigma_{\theta\theta}$ . (4.11)(a).

$$\begin{aligned} \frac{d}{dr}(r\sigma_{rr}(T_i)) = \sigma_{\theta\theta}(T_i) &\Rightarrow \frac{d}{dr}(r\sigma_{rr}(T_{i+1})) = \frac{d}{dr}\left(r\sigma_{rr}(T_i) \frac{E(T_{i+1})}{E(T_i)}\right) \\ &\neq \sigma_{\theta\theta}(T_i) \frac{E(T_{i+1})}{E(T_i)} = \sigma_{\theta\theta}(T_{i+1}) \end{aligned} \quad (4.58)$$

Or le rapport  $\frac{E(T_{i+1})}{E(T_i)}$  étant dépendant du rayon, l'équilibre n'est plus respecté après l'incrément de contrainte (4.58)

Le problème étant quasiment un problème en contraintes planes, nous négligeons dans un premier temps l'évolution des contraintes radiales  $\sigma_{rr}$ . Nous calculons l'incrément des contraintes  $\sigma_{\theta\theta}$  et  $\sigma_{zz}$  à partir de l'équation (4.57) et nous en déduisons la composante radiale  $\sigma_{rr}$  à partir de l'équation d'équilibre (4.11)(a) :  $\sigma_{rr}(r) = \frac{1}{r} \int_{R_i}^r \sigma_{\theta\theta}(\rho) d\rho + \frac{R_i}{r} \sigma_{rr}(R_i)$ .

En pratique, nous modifions dans une première étape le champ de contraintes dû à la thermo-dépendance du module. Ensuite nous résolvons les équations (4.53) ce qui permet également de réimposer l'équilibre avec les conditions aux limites.

#### 4.4.2 Formation des contraintes résiduelles – Comportement liquide – solide élastique

La possibilité de considérer un module thermo-dépendant permet de considérer les contraintes présentes dans les couches non solidifiées et ainsi d'affiner les résultats précédents. Cependant ce modèle est intermédiaire entre le modèle liquide - solide élastique et le modèle viscoélastique. Il n'apporte que peu de renseignements supplémentaires sur les processus de formation des contraintes résiduelles et ne représente pas aussi bien le comportement du matériau que les lois viscoélastiques. Nous préférons donc ne citer ci-dessous que le cas du refroidissement par les deux surfaces qu'il n'était pas possible de traiter précédemment et nous ne comparerons les résultats entre les deux modèles que pour un type de condition aux limites (dépression = 8 kPa)

##### a) Thermo-dépendance du module élastique

La thermo-dépendance du module  $E(T)$  est décrite par l'équation (4.59) et est représentée sur la Figure 4.25. Celle-ci est tirée de l'étude expérimentale des propriétés viscoélastiques au chapitre précédent.

$$\begin{aligned} \text{si } T > 35^\circ\text{C} \quad E(T) &= E(T_0) \exp(-c_T) \\ &= 215 \cdot 10^6 \cdot \exp(2.2034 - 1.083 \cdot T + 0.0016 \cdot T^2 + 9 \cdot 10^{-6} \cdot T^3) \\ \text{si } T < 35^\circ\text{C} \quad E(T) &= 215 \text{MPa} \end{aligned} \quad (4.59)$$

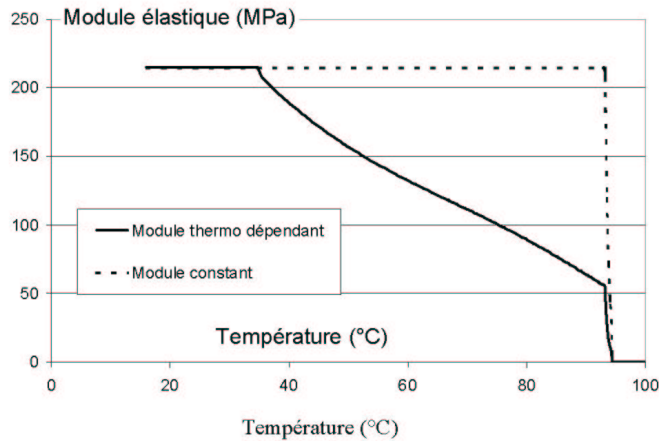


Figure 4.25 : thermo-dépendance du module élastique

### b) Evolution des conditions aux limites

La pression  $P^e$  nécessaire pour maintenir le contact est représentée Figure 4.26. Puisque le module à chaud est inférieur à celui du cas précédent, cette dépression évolue plus lentement que pour le modèle précédent. Les deux dépressions sont par contre égales à la fin du refroidissement. Nous avons vu (4.48) que pour les conditions aux limites  $u(Re)=0$  et  $A_1=0$ , les contraintes se forment dans chaque couche indépendamment les unes des autres et sont égales à  $\sigma_{\theta\theta} \approx -\frac{\alpha_T E}{(1-\nu)} \Delta T(r)$ . Cette relation reste valable si le module est thermo-dépendant et donc si il n'y a pas d'évolution des conditions aux limites le profil de contrainte final est identique. Nous remarquons cependant Figure 4.26 une légère différence entre les deux pressions à la fin du refroidissement, si l'hypothèse des contraintes planes n'est pas effectuée.

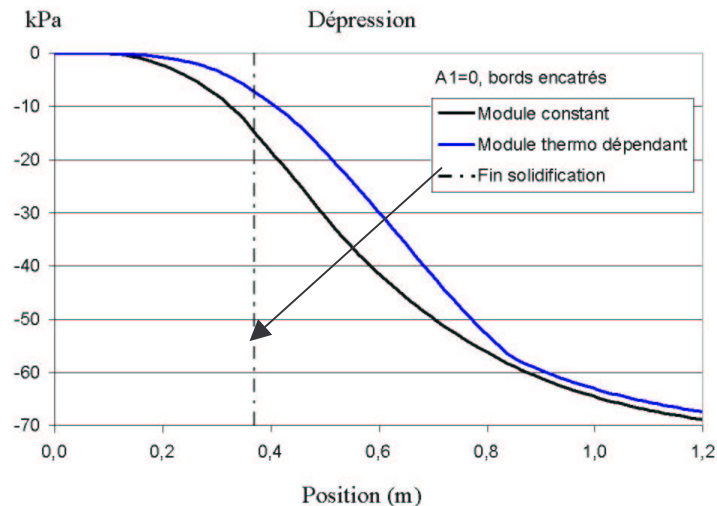


Figure 4.26 : pression nécessaire pour maintenir le contact avec la chambre de calibrage

Les profils de contraintes avec et sans thermo-dépendance sont représentés Figure 4.27. L'évolution des conditions aux limites n'ayant pas lieu au même moment, nous obtenons pour une dépression de 8kPa (80 mbar) des profils différents (Figure 4.27). En effet si le module est thermo-dépendant, l'évolution des conditions aux limites se produit après la fin de la solidification.

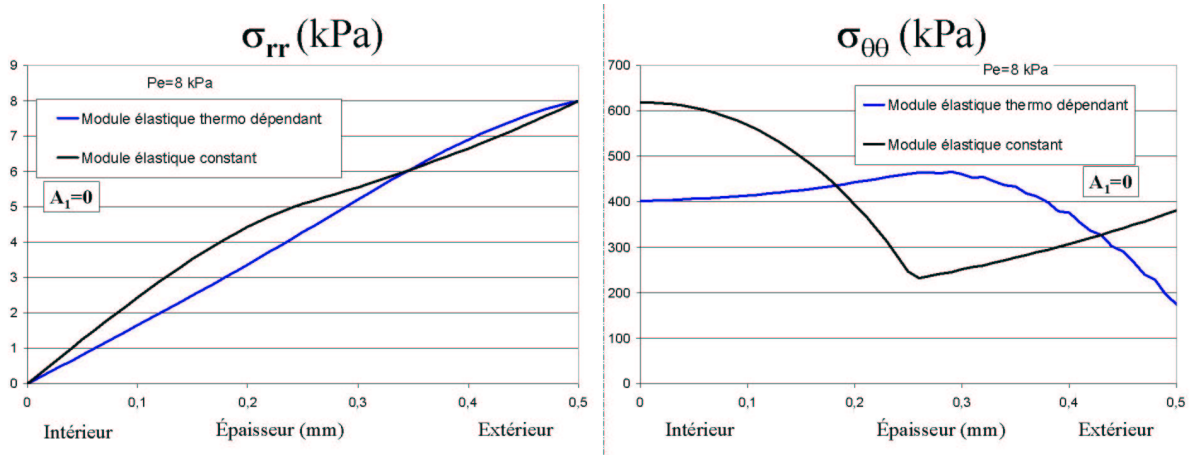


Figure 4.27 : profil de contrainte obtenu à la fin du refroidissement ( $P_{conf} = 8\text{kPa}=80\text{mbars}$ )

c) Refroidissement libre par les deux surfaces

La loi de comportement non thermo-dépendante ne permettait pas de calculer la pression hydrostatique qui peut se développer dans la partie liquide. Maintenant le calcul étant effectué sur l'ensemble du tube (et non plus seulement sur les couches solidifiées), nous pouvons calculer la formation des contraintes dans un tube refroidi par les deux surfaces. Nous constatons Figure 4.28 ( $\sigma_{rr}$ ) l'apparition d'une dépression dans les couches liquides. Dans le cas du tube, les dépressions restent faibles et n'ont quasiment aucune influence sur le profil final des contraintes. Ceci serait différent si nous calculions l'évolution des contraintes dans une sphère se solidifiant.

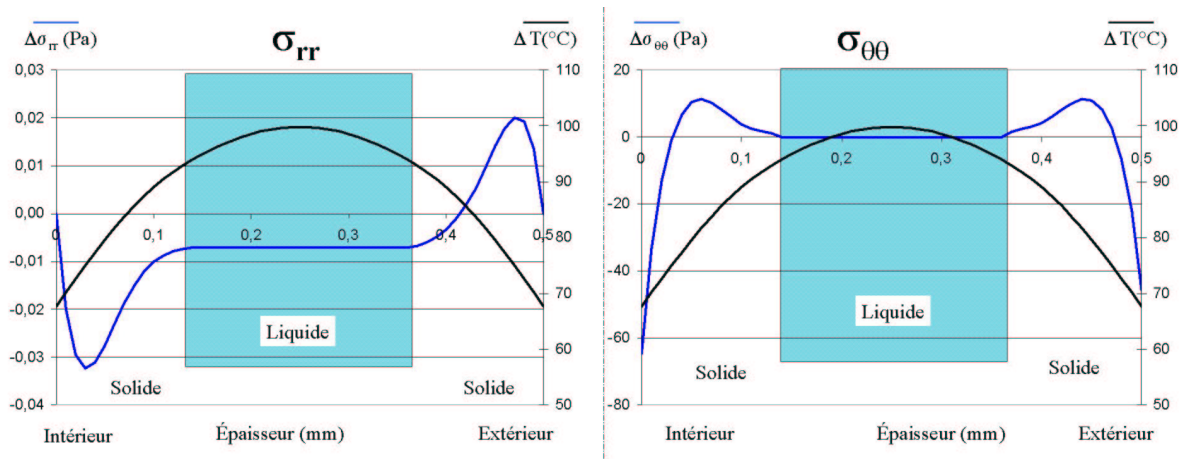


Figure 4.28 : profil des contraintes au cours du refroidissement d'un tube refroidi par les deux surfaces

Le profil final des contraintes final est représenté Figure 4.29. Le profil de contrainte  $\sigma_{\theta\theta}$  correspond au profil de contraintes obtenu dans une plaque refroidie par les deux surfaces.

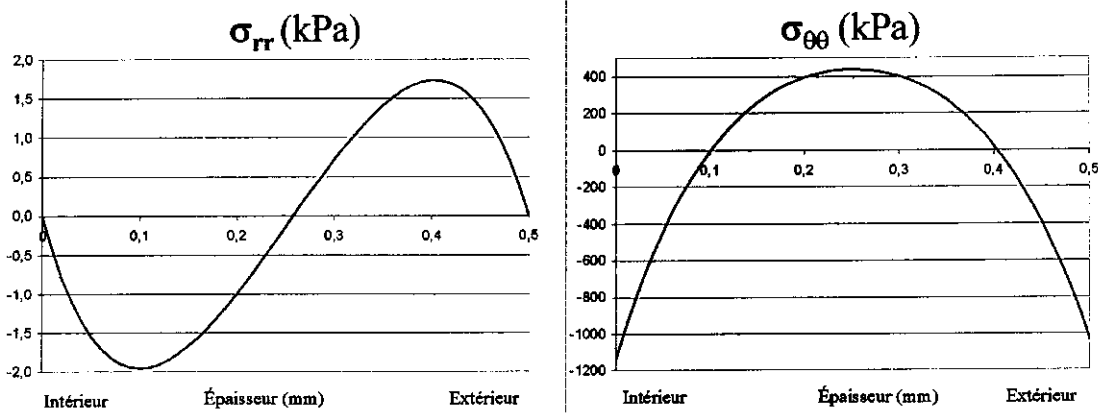


Figure 4.29 : profil des contraintes à la fin du refroidissement

## 5 Conclusion

Dans le cadre des hypothèses actuelles, nous pouvons conclure que l'influence de la dépression sur le profil des contraintes intervient uniquement pendant la solidification de l'épaisseur du tube. Donc le profil final des contraintes ne serait dépendant que de ce qui se passe pendant les 15 premiers centimètres du conformateur, et le reste n'aurait plus d'influence. Or c'est certainement la zone dans laquelle nous faisons les hypothèses les plus fortes :

- dans cette zone le tube est encore à haute température (dans les 3/4 de l'épaisseur la température est supérieure à 50°C – cf. Figure 4.5). La loi de comportement utilisée ne prend pas en compte la relaxation des contraintes et est donc relativement éloignée des matériaux polymères. On surestime ainsi fortement la dépression nécessaire afin de maintenir le contact. Le fait que nous ne prenions pas en compte la variation de volume importante lors de la cristallisation diminue les différences dues à la loi de comportement à haute température.
- 1/3 de cette zone correspond à la zone d'entrée dans le conformateur où le tube n'est pas encore dans la chambre de calibrage. La condition aux limites  $u(Re)=0$  ne correspond pas à la réalité et les frottements sont nuls. Les conditions aux limites réelles de cette zone ne sont pas connues
- Nous ne considérons pas les contraintes présentes normalement dans les couches non cristallisées.

Les résultats ci-dessus semblent cependant bien correspondre aux résultats expérimentaux. Ils permettent de comprendre le rôle de la dépression dans le conformateur et mettent en avant l'influence des frottements qui n'était pas identifiée au début de l'étude.

Néanmoins ces résultats ont été obtenus en effectuant des hypothèses fortes :

- en négligeant la relaxation des contraintes dans la loi de comportement
- en négligeant la variation du volume spécifique due à la cristallisation
- en ne pouvant pas considérer les contraintes dans la partie liquide

Le modèle viscoélastique développé dans le prochain chapitre permettra de ne plus devoir effectuer ces hypothèses et d'analyser plus finement la transition liquide – solide. Cependant ce modèle n'apportera que peu d'informations supplémentaires sur les mécanismes de formation des contraintes résiduelles dans les tubes extrudés.

(Cotto, 1984)

D. Cotto, "Etude de la fabrication de films de polypropylène par extrusion et refroidissement sur rouleau thermostaté", thèse de Doctorat, Ecole Nationale Supérieure des Mines de Paris, Sophia - Antipolis (1984).

(Duffo, 1990)

P. Duffo, "Etude theorique et expérimentale du procédé de fabrication de films minces de polypropylène par extrusion - biétirage.", thèse de Doctorat, Ecole Nationale Supérieure des Mines de Paris, Sophia - Antipolis (1990).

(Goslinga, 1980)

J. Goslinga, "The determination of residual stresses in plastics pipes", thèse de Doctorat, twente university, (1980).

(Noda, 1986)

N. Noda, "Thermal stresses in materials with temperature dependent properties", in *thermal stresses 1*, vol. 6, R. B. Hetnarski, Ed., Elsevier Science Publishers., (1986).

(Stanisic et Mckinley, 1959)

M. M. Stanisic et R. M. Mckinley, "A note on thermal stresses in hollow cylinder", *Ingenieur Archiv* (1959).

(Struik, 1978)

L. C. E. Struik, "Orientation effects and cooling stresses in amorphous polymers", *Polymer Engineering and Science*, vol. 18, pp. 799-811 (1978).

(Trostel, 1958)

R. Trostel, "Wärmespannungen in Hohlzylinder mit temperatureabhängigen Stoffwerten", *Ingenieur Archiv*, vol. 26, pp. 134-142 (1958).





**CHAPITRE 5 - MODELE THERMO-MECANIQUE – COMPORTEMENT VISCOELASTIQUE** 156

1 FORMULATION DE LA LOI DE COMPORTEMENT .....	157
1.1 Formulation intégrale.....	157
1.2 Formulation différentielle.....	158
1.3 Définition du module viscoélastique : $\bar{E}(t)$ .....	158
1.4 Application à des cas particuliers.....	160
1.4.1 Application au modèle élastique .....	160
1.4.2 Application aux modèles de Maxwell .....	160
1.5 Modèle de Maxwell multimode incompressible – Hypothèses de contraintes planes.....	163
2 TEMPS VIRTUEL .....	164
2.1 Temps virtuel dans des conditions isothermes.....	164
2.2 Temps virtuel dans des conditions anisothermes .....	165
3 EXTENSION DU MODELE ELASTIQUE.....	167
3.1 Formulation intégrale.....	167
3.1.1 Description du calcul .....	167
3.1.2 Limites de la méthode.....	169
3.2 Formulation différentielle.....	169
3.2.1 Relaxation des contraintes.....	169
3.2.2 Incrément de contrainte.....	170
4 MODELISATION DES CONTRAINTES AVANT LA CRISTALLISATION.....	171
4.1 Evolution des contraintes lors de l'étirage dans l'air.....	171
4.2 Transition lors de la cristallisation.....	173
5 FORMATION DES CONTRAINTES RESIDUELLES .....	174
5.1 Description des calculs.....	174
5.1.1 Phases et conditions aux limites du procédé. ....	174
5.1.2 Modélisation de la température.....	175
5.1.3 Caractéristiques du matériau .....	175
5.1.4 Comparaison modèles élastique – viscoélastique. ....	175
5.1.5 Validation de l'intervalle des temps du spectre de relaxation.....	175
5.2 Refroidissement libre.....	176
5.3 Condition aux limites $u(Re)=0$ .....	177
5.4 Prise en compte de la perte de contact et des frottements .....	180
5.4.1 Modification de la loi de frottement.....	182
5.5 Sensibilité de l'ouverture du tube.....	184
5.5.1 Influence du refroidissement : .....	185
5.5.2 Influence des caractéristiques du matériau ( $E(t)$ ) : .....	186
5.5.3 Influence des forces axiales .....	187

5.6 Formation des contraintes pour un polyéthylène haute densité.....	189
6 CONCLUSION .....	191

## **Chapitre 5 - Modèle Thermo-mécanique – Comportement viscoélastique**

Les modèles élastiques abordés précédemment nous ont permis de comprendre les processus de formation des contraintes résiduelles lors du calibrage des tubes. Cependant, il est clair au vu des essais de caractérisation du module viscoélastique et des phénomènes de relaxation que ces modèles ne sont pas suffisants pour modéliser la formation des contraintes dans les polymères. Les exemples intuitifs du 1<sup>er</sup> chapitre ont montré que la relaxation des contraintes pouvait avoir une influence dans la formation des contraintes résiduelles, l'objectif de ce chapitre est de le quantifier.

Nous utiliserons pour modéliser le comportement viscoélastique les travaux de Morland & Lee [Morland, 1960 #13; Lee, 1965 #18] qui ont établi une loi de comportement viscoélastique linéaire dépendant de la température. Leur approche est basée sur le principe d'équivalence temps/température proposé initialement par Leaderman [Leaderman, #68]. L'équivalence temps/température a déjà été présentée au 3<sup>ème</sup> chapitre lors de l'introduction des matériaux thermorhéologiquement simples. Nous décrirons dans ce chapitre son introduction dans les lois de comportement et nous montrerons un exemple d'évolution du temps virtuel.

Un modèle basé sur une loi de comportement viscoélastique linéaire permet de se rapprocher du comportement des polyéthylènes en prenant en compte la modélisation des caractéristiques décrites au 3<sup>ème</sup> chapitre telles que la relaxation pour les caractéristiques mécaniques mais aussi la variation du volume spécifique.

Les conclusions principales des modèles élastiques sur les mécanismes de formation resteront valables. Les paramètres principaux seront toujours la dépression dans le conformateur et la force d'étirage à travers les forces de frottement. Mais l'analyse pourra désormais être complétée pour se rapprocher du procédé et nous prendrons en compte par exemple toutes les étapes du refroidissement depuis la filière soit la zone d'étirage entre la filière et le conformateur, la répartition des contraintes entre les couches à l'état fluide et les couches solides lors de la cristallisation et lors de la fin du refroidissement. L'introduction de la force d'étirage initiale (impossible avec un modèle élastique) permettra de mieux décrire la phase de solidification.

Finalement, nous concluons par une étude de sensibilité à certains paramètres du procédé et caractéristiques du matériau. Nous montrerons que comme dans la réalité, le calibrage des tubes est relativement sensible à des paramètres tels que la température de l'eau de refroidissement et peut donc être délicat à maîtriser.

## 1 Formulation de la loi de comportement

Dans le développement qui suit le matériau est supposé isotrope. Le modèle que nous proposons ci-dessous est défini pour une loi de comportement viscoélastique linéaire. Le modèle sera une adaptation du modèle élastique thermo dépendant basé sur les travaux de Stanisic [Stanisic, 1959 #27] que nous avons utilisé précédemment.

Les lois de comportement viscoélastiques linéaires basées sur un spectre de relaxation discret et fini peuvent être définies par deux types d'équation constitutive équivalentes.

### 1.1 Formulation intégrale

$$\begin{array}{l}
 s_{ij}(x,t) = \int_{-\infty}^t G_1(t-\tau) \frac{\partial e_{ij}(x,\tau)}{\partial \tau} d\tau \\
 \sigma(x,t) = \int_{-\infty}^t G_2(t-\tau) \frac{\partial e(x,\tau)}{\partial \tau} d\tau
 \end{array}
 \begin{array}{l}
 \text{Partie déviatorique } s_{ij} = \sigma_{ij} - \sigma \\
 e_{ij} = \varepsilon_{ij} - e \\
 \text{Partie sphérique } \sigma = \frac{\sigma_{11} + \sigma_{22} + \sigma_{33}}{3} \\
 e = \frac{\varepsilon_{11} + \varepsilon_{22} + \varepsilon_{33}}{3}
 \end{array}
 \quad (5.1)$$

Une déformation élémentaire  $\Delta \varepsilon$  survenue au temps  $t'$  est reliée à la contrainte élémentaire  $\Delta \sigma$  au temps  $t$  par la relation (5.2).

$$\begin{cases}
 \Delta s_{ij}(x,t) = G_1(t-t') \Delta e_{ij}(x,t') \\
 \Delta \sigma(x,t) = G_2(t-t') \Delta e(x,t')
 \end{cases}
 \quad (5.2)$$

Les relations de viscoélasticité linéaire étant basées sur le principe de superposition de Boltzmann, la contrainte résultante de la sollicitation globale est la somme des contraintes associées à chaque déformation élémentaire prise isolément. Ainsi si nous discrétisons l'évolution des déformations en un nombre fini de sollicitations, nous obtenons les relations (5.3)

$$\begin{cases}
 s_{ij}(x,t) = \sum_{i=0}^n \Delta s_{ij}(x,t-t_i) = \sum_{i=0}^n G_1(t-t_i) \Delta e_{ij}(x,t_i) \\
 \sigma(x,t) = \sum_{i=0}^n \Delta \sigma(x,t-t_i) = \sum_{i=0}^n G_2(t-t_i) \Delta e(x,t_i)
 \end{cases}
 \quad (5.3)$$

Soit en prenant un nombre très grand de sollicitations :

$$\begin{cases}
 s_{ij}(x,t) = \int_{-\infty}^t G_1(t-\tau) de_{ij}(x,\tau) \\
 \sigma(x,t) = \int_{-\infty}^t G_2(t-\tau) de(x,\tau)
 \end{cases}
 \quad (5.4)$$

On retrouve ainsi la formulation intégrale de la loi de comportement :

$$\begin{cases}
 s_{ij}(x,t) = \int_{-\infty}^t G_1(t-\tau) de_{ij}(x,\tau) = \int_{-\infty}^t G_1(t-\tau) \frac{\partial e_{ij}(x,\tau)}{\partial \tau} d\tau \\
 \sigma(x,t) = \int_{-\infty}^t G_2(t-\tau) de(x,\tau) = \int_{-\infty}^t G_2(t-\tau) \frac{\partial e(x,\tau)}{\partial \tau} d\tau
 \end{cases}$$

## 1.2 Formulation différentielle

Le même comportement peut être décrit par une formulation différentielle :

$$\boxed{\begin{aligned} P_1(D) s_{ij}(x,t) &= Q_1(D) e_{ij}(x,t) \\ P_2(D) \sigma(x,t) &= Q_2(D) e(x,t) \end{aligned}} \quad (5.5)$$

$$D = \frac{\partial}{\partial t}, D^n = \frac{\partial^n}{\partial t^n}, P_\beta(D) = \sum_{n=0}^{N_\beta} p_\beta^{(n)} D^n, Q_\beta(D) = \sum_{n=0}^{M_\beta} q_\beta^{(n)} D^n, \\ p_\beta^{(N_\beta)} \neq 0, q_\beta^{(M_\beta)} \neq 0, (\beta = 1,2)$$

Soit

$$\begin{aligned} p_1^{(0)} s_{ij}(x,t) + \sum_{n=1}^{N_1} p_1^{(n)} \frac{\partial^n s_{ij}(x,t)}{\partial t^n} &= q_1^{(0)} e_{ij}(x,t) + \sum_{n=1}^{M_1} q_1^{(n)} \frac{\partial^n e_{ij}(x,t)}{\partial t^n} \\ p_2^{(0)} \sigma(x,t) + \sum_{n=1}^{N_2} p_2^{(n)} \frac{\partial^n \sigma(x,t)}{\partial t^n} &= q_2^{(0)} e(x,t) + \sum_{n=1}^{M_2} q_2^{(n)} \frac{\partial^n e(x,t)}{\partial t^n} \end{aligned}$$

La notation ci dessus diffère de celle utilisée, si le spectre de relaxation est discrétisé en  $N$  éléments de temps de relaxation  $\lambda_n$  et de viscosité  $\mu_n$ , [Bellet, #69] précise que l'équation (5.5) de la partie déviatorique est alors équivalente à la relation différentielle suivante :

$$s_{ij} = \sum_{n=1}^N s_{ij}^{(n)} \quad s_{ij}^{(n)} + \lambda_n \frac{\partial s_{ij}^{(n)}}{\partial t} = 2\mu_n \frac{\partial e_{ij}^{(n)}}{\partial t} \quad (5.6)$$

## 1.3 Définition du module viscoélastique : $\bar{E}(t)$

En plus des modules de cisaillement et de compression, nous utiliserons l'équivalent du module d'Young  $\bar{E}(t)$  et du coefficient de Poisson  $\bar{\nu}(t)$ . Leurs définitions sont basées sur l'essai de relaxation uniaxial à déformation constante, caractérisé par :

$$\begin{aligned} \varepsilon_{11} &= \varepsilon_0 H_d(t); \quad \sigma_{11} = \sigma_{11}(t) \\ \sigma_{22} = \sigma_{33} &= 0; \quad \sigma_{ij} = 0 \quad (i \neq j); \quad \varepsilon_{22} = \varepsilon_{33} \end{aligned} \quad (5.7)$$

$H_d(t)$  est la fonction d'Heaviside  $\left\{ \begin{aligned} &= 1 \text{ si } 0 < t < \infty \\ &= 0 \text{ si } -\infty < t < 0 \end{aligned} \right.$

Soit  $\bar{E}(t)$  le module viscoélastique et  $\bar{\nu}(t)$  le coefficient de Poisson dépendant du temps défini par :

$$\bar{E}(t) = \frac{\sigma_{11}(t)}{\varepsilon_0}; \quad \bar{\nu}(t) = -\frac{\varepsilon_{22}(t)}{\varepsilon_0} \quad (5.8)$$

Afin de relier ces caractéristiques aux modules  $G_1$  et  $G_2$ , nous pouvons éliminer de l'équation (5.1) toutes les composantes du tenseur des contraintes et des déformations excepté  $\sigma_{11}(t)$  et  $\varepsilon_{22}(t) = \varepsilon_{33}(t)$  en utilisant les relations (5.1) et (5.8) :

$$(5.1) \Rightarrow \begin{aligned} s_{11} &= \sigma_{11} - \frac{1}{3} \sigma_{11} = \frac{2}{3} \sigma_{11}; & \sigma &= \frac{1}{3} \sigma_{11} \\ e_{11} &= \varepsilon_{11} - \frac{1}{3} (\varepsilon_{11} + 2\varepsilon_{22}) = \frac{2}{3} (\varepsilon_{11} - \varepsilon_{22}); & e &= \frac{1}{3} (\varepsilon_{11} + 2\varepsilon_{22}) \end{aligned}$$

$$(5.1) \Rightarrow \left\{ \begin{aligned} s_{11}(t) &= \frac{2}{3} \sigma_{11}(t) = \int_{-\infty}^t G_1(t-\tau) \frac{\partial e_{11}(\tau)}{\partial \tau} d\tau \\ &= \frac{2}{3} \int_{-\infty}^t G_1(t-\tau) \frac{\partial (\varepsilon_{11}(\tau) - \varepsilon_{22}(\tau))}{\partial \tau} d\tau \\ \sigma(t) &= \frac{1}{3} \sigma_{11}(t) = \int_{-\infty}^t G_2(t-\tau) \frac{\partial e(\tau)}{\partial \tau} d\tau \\ &= \frac{1}{3} \int_{-\infty}^t G_2(t-\tau) \frac{\partial (\varepsilon_{11}(\tau) + 2\varepsilon_{22}(\tau))}{\partial \tau} d\tau \end{aligned} \right.$$

$$\left\{ \begin{aligned} \sigma_{11}(t) &= \int_{-\infty}^t G_1(t-\tau) \varepsilon_0 \frac{\partial H_d(\tau)}{\partial \tau} d\tau - \int_{-\infty}^t G_1(t-\tau) \frac{\partial \varepsilon_{22}(\tau)}{\partial \tau} d\tau \\ \sigma_{11}(t) &= \int_{-\infty}^t G_2(t-\tau) \frac{\partial \varepsilon_{11}(\tau)}{\partial \tau} d\tau + 2 \int_{-\infty}^t G_2(t-\tau) \frac{\partial \varepsilon_{22}(\tau)}{\partial \tau} d\tau \end{aligned} \right.$$

Nous utilisons les transformées de Laplace définies en (5.9) et certaines de leurs propriétés (le signe \* désigne la transformée de Laplace associée) :

$$f^*(p) = \ell(f(\tau)) = \int_0^{\infty} f(\tau) \exp(-p\tau) d\tau \quad (5.9)$$

$$\left[ \int_{-\infty}^t g(t-\tau) f(\tau) d\tau \right]^* = g^*(p) f^*(p)$$

$$\left[ \frac{\partial f(t)}{\partial t} \right]^* = pf^*(p) - f(0)$$

$$[H_d(t)]^* = \frac{1}{p}$$

Nous obtenons ainsi le système de deux équations :

$$\begin{cases} \sigma_{11}^*(p) = G_1^*(p) [\varepsilon_0 - p\varepsilon_{22}^*(p)] \\ \sigma_{11}^*(p) = G_2^*(p) [\varepsilon_0 + 2p\varepsilon_{22}^*(p)] \end{cases} \quad (5.10)$$

soit donc d'après (5.8)

$$\boxed{\begin{aligned} \bar{E}(t) &= \ell^{-1} \left\{ \frac{3G_1^*(p)G_2^*(p)}{G_1^*(p) + 2G_2^*(p)}; t \right\} \\ \bar{\nu}(t) &= \ell^{-1} \left\{ \frac{G_2^*(p) - G_1^*(p)}{p[G_1^*(p) + 2G_2^*(p)]}; t \right\} \end{aligned}} \quad (5.11)$$

$\ell^{-1}(f^*(p); t)$  transformée de Laplace inverse de la fonction  $f^*(p)$  en  $f(t)$

## 1.4 Application à des cas particuliers

Il est intéressant de développer les équations (5.5) pour des comportements viscoélastiques particuliers.

### 1.4.1 Application au modèle élastique

Pour ce comportement, les caractéristiques intervenant dans l'équation (5.5) sont :

$$\begin{aligned} N_1 = M_1 = 0; p_1^{(0)} = 1; q_1^{(0)} = 2G \\ N_2 = M_2 = 0; p_2^{(0)} = 1; q_2^{(0)} = 3K \end{aligned}$$

G et K sont respectivement les modules de cisaillement et de dilatation volumique (Bulk modulus). Ainsi l'équation (5.5) devient :

$$\begin{cases} s_{ij}(x,t) = 2G e_{ij}(x,t) \\ \sigma(x,t) = 3K e(x,t) \end{cases} \quad (5.12)$$

Les modules de relaxation correspondants sont :

$$G_1(t) = 2G H_d(t) \quad ; \quad G_2(t) = 3K H_d(t) \quad (5.13)$$

Les relations reliant les modules G et K au module d'Young et au coefficient de Poisson ont été définies au chapitre précédent (relation 4.24).

$$\begin{cases} \lambda = \frac{\nu E}{(1+\nu)(1-2\nu)} & \mu = \frac{E}{2(1+\nu)} \\ 3K = 3\lambda + 2\mu = \frac{E}{1-2\nu} & G = \mu \\ E = \frac{9KG}{3K+G} & \nu = \frac{3K-2G}{2(3K+G)} \end{cases}$$

### 1.4.2 Application aux modèles de Maxwell

#### a) Modèle de Maxwell monomode

Pour un solide de Maxwell, le comportement en dilatation reste élastique (K indépendant du temps) et le comportement en cisaillement est viscoélastique. Le comportement du matériau est défini par la formulation différentielle suivante :

$$\begin{aligned} N_1 = M_1 = 1; p_1^{(0)} = \frac{1}{\tau_0}; p_1^{(1)} = 1; q_1^{(0)} = 0; q_1^{(1)} = 2G \\ N_2 = M_2 = 0; p_2^{(0)} = 1; q_2^{(0)} = 3K \end{aligned}$$

$\tau_0$  correspond au temps de relaxation unique du matériau. Ainsi les équations constitutives (5.5) deviennent :

$$\begin{cases} \frac{\partial s_{ij}(x,t)}{\partial t} + \frac{1}{\tau_0} s_{ij}(x,t) = 2G \frac{\partial e_{ij}(x,t)}{\partial t} \\ \sigma(x,t) = 3K e(x,t) \end{cases} \quad (5.14)$$



Les modules de relaxation correspondants sont :

$$G_1(t) = 2G \exp -\frac{t}{\tau_0} H(t) \quad ; \quad G_2(t) = 3K H(t) \quad (5.15)$$

A partir de la relation (5.11), nous obtenons les expressions de  $\bar{E}(t)$  et  $\bar{\nu}(t)$  suivantes :

$$G_1^*(p) = \frac{2G}{p + \frac{1}{\tau_0}} \quad G_2^*(p) = \frac{3K}{p}$$

$$\bar{E}^*(p) = \frac{18GK \frac{1}{p + \frac{1}{\tau_0}}}{\frac{2G}{p + \frac{1}{\tau_0}} + \frac{6K}{p}} = \frac{9GK}{Gp + 3K} \frac{1}{p + \frac{1}{\tau_0}} = \frac{9GK\tau_0}{p\tau_0(G + 3K) + 3K}$$

$$\bar{E}^*(p) = \frac{9GK\tau_0}{p\tau_0(3K + G) + \frac{1}{3}(6K + 2G + 3K - 2G)} = \frac{9GK}{3K + G} \frac{1}{p + \frac{2}{3} + \frac{3K - 2G}{2(3K + G)} \frac{1}{\tau_0}}$$

$$\text{En élasticité, nous avons les relations : } E = \frac{9KG}{3K + G} \quad \nu = \frac{3K - 2G}{2(3K + G)}$$

Nous pouvons donc définir le module viscoélastique et l'équivalent du coefficient de Poisson,  $\nu(t)$ , par les relations (5.16).

$$\left\{ \begin{array}{l} \bar{E}(t) = E \exp -\frac{2}{3}(1 + \nu) \frac{t}{\tau_0} H(t) \\ \bar{\nu}(t) = \frac{1}{2} [1 - (1 - 2\nu) \exp -\frac{2}{3}(1 + \nu) \frac{t}{\tau_0}] H(t) \end{array} \right. \quad (5.16)$$

$$\ell^{-1} \frac{1}{p - \alpha} ; \ell = \exp(\alpha t) \quad \text{si } \alpha < 0$$

Les constantes E et  $\nu$  intervenant dans l'équation (5.16) sont définies par l'équation (5.8) en fonctions des modules de cisaillement et de dilatation du solide de Maxwell pour  $t=0^+$ . Le sens physique du module d'Young et du coefficient de Poisson apparaît lorsque  $t \rightarrow 0^+$  :

$$\bar{E}(0^+) = E ; \quad \bar{\nu}(0^+) = \nu$$

Les relations définissant la loi de comportement d'un modèle de Maxwell multimode sont déduites des développements ci-dessus en utilisant l'équation (5.6).

L'équation (5.16) est simplifiée dans le cas des matériaux incompressibles  $\nu=0,5$  et  $e = \varepsilon_{11} + \varepsilon_{22} + \varepsilon_{33} = 0$ .

$$\begin{aligned}\bar{E}(t) &= E \exp\left(-\frac{t}{\tau_0}\right) H(t) = 3G \exp\left(-\frac{t}{\tau_0}\right) H(t) = \frac{3}{2} G_1(t) \\ \bar{\nu}(t) &= \frac{1}{2} H(t)\end{aligned}\quad (5.17)$$

b) Evolution de  $\bar{\nu}(t)$

Dans le cas élastique, le nombre de Poisson est relié au module d'Young et de cisaillement par la relation (5.18)(a). Comme toutes les formules d'élasticité se conservent en viscoélasticité dans le cas du régime sinusoïdale permanent [Ferry, 1970 #31], le coefficient de Poisson complexe est défini par la relation (5.18)(b).

$$\begin{aligned}\nu &= \frac{E}{2G} - 1 & (a) \\ \nu^* &= \frac{E^*}{2G^*} - 1 & (b)\end{aligned}\quad (5.18)$$

Pour que le nombre de Poisson soit constamment réel il suffit que  $E^*$  et  $G^*$  soient constamment dans un rapport réel. [Huet, #70] montre que si  $\nu^*$  est constamment réel alors il est réel constant.

La remarque précédente a une influence sur le rapport entre le module de cisaillement et le module de compressibilité  $K$ . Les modules d'Young, de cisaillement et de compressibilité sont reliés par la relation (5.19). Le rapport  $G^*/E^*$  ne peut être strictement réel que si  $G^*/K^*$  est lui-même réel.

$$\frac{1}{E^*} = \frac{1}{3G^*} + \frac{1}{9K^*} \Rightarrow 3\frac{G^*}{E^*} = 1 + \frac{G^*}{3K^*}\quad (5.19)$$

Or la relation entre les composantes isotropes (caractérisée par le module  $K^*$ ) des tenseurs des contraintes et des déformations n'a aucune raison d'être équivalente à la relation entre déviateurs (caractérisée par le module  $G^*$ ). Donc dire que  $G^*/E^*$  est constamment réel ne peut être qu'une approximation signifiant que le rapport des modules  $G^*/3K^* \ll 1$  soit donc que le matériau est peu compressible par rapport à sa capacité à se déformer en cisaillement. Nous considérons dans la suite que le matériau a un comportement incompressible.

Si pour un matériau  $G^*/K^*$  est réel constant, le coefficient de Poisson peut être un réel constant quelconque entre 0 et  $\frac{1}{2}$ .

c) Modèle de Maxwell multimode incompressible

Nous avons montré au 3<sup>ème</sup> chapitre que le modèle de Maxwell monomode est insuffisant pour représenter le comportement en relaxation des polyéthylènes. Si le comportement du matériau est défini par hypothèse comme étant presque incompressible

( $K \gg \sum_{n=1}^N G^{(n)}$  et  $\nu(t) \approx 0.5$ ) l'équation (5.17) ci dessus peut se généraliser au modèle

multimode. Par analogie avec l'équation (5.17) les modules correspondant à un spectre de relaxation discret à  $N$  éléments de Maxwell peuvent être définis par les équations (5.20) et (5.21) :

$$G_1(t) = 2 \sum_{n=1}^N G^{(n)} \exp\left(-\frac{t}{\tau_0^{(n)}}\right) H(t) \quad (5.20)$$

$$\bar{E}(t) = 3 \sum_{n=1}^N G^{(n)} \exp\left(-\frac{t}{\tau_0^{(n)}}\right) H(t) = \sum_{n=1}^N \bar{E}^{(n)}(t) \quad (5.21)$$

$$\bar{E}^{(n)}(t) = 3G^{(n)} \exp\left(-\frac{t}{\tau_0^{(n)}}\right) H(t)$$

### 1.5 Modèle de Maxwell multimode incompressible – Hypothèses de contraintes planes

L'hypothèse d'incompressibilité permet de simplifier les deux types de formulation. Le matériau étant incompressible la variation de volume est nulle en dehors de la variation due au refroidissement. La partie sphérique du tenseur des déformations est alors nulle (5.22). Le comportement d'un matériau incompressible est caractérisé par un seul module pouvant être  $G_1(t)$ ,  $G_2(t)$  ou  $\bar{E}(t)$ .

$$3\Delta e = \Delta\varepsilon_{11} + \Delta\varepsilon_{22} + \Delta\varepsilon_{33} = 0 \quad (5.22)$$

Les formulations intégrales et différentielles sont alors uniquement définies par les relations concernant les parties déviatoriques.

#### Formulation intégrale

Les résultats des modèles élastiques ont confirmé que l'hypothèse des contraintes planes était pleinement justifiée ( $\sigma_{rr} \ll \sigma_{\theta\theta}$  ou  $\sigma_{zz}$ ). Nous considérons l'équivalence entre les deux repères  $(\sigma_{rr}, \sigma_{\theta\theta}, \sigma_{zz}) \sim (\sigma_{33}, \sigma_{11}, \sigma_{22})$ . Sous ces conditions, la relation de la partie déviatorique de la formulation intégrale (relation (5.1)) peut être exprimée en fonction du module viscoélastique (relation (5.23)).

$$\begin{aligned} \Delta\varepsilon_{11} &= \frac{2}{3} \Delta\varepsilon_{11} - \frac{1}{3} (\Delta\varepsilon_{22} + \Delta\varepsilon_{33}); & \Delta\varepsilon_{22} &= \frac{2}{3} \Delta\varepsilon_{22} - \frac{1}{3} (\Delta\varepsilon_{11} + \Delta\varepsilon_{33}); & \Delta\varepsilon_{33} &= \frac{2}{3} \Delta\varepsilon_{33} - \frac{1}{3} (\Delta\varepsilon_{22} + \Delta\varepsilon_{11}) \\ \Delta\varepsilon_{11} + \Delta\varepsilon_{22} + \Delta\varepsilon_{33} &= 0 \\ 3\Delta s_{11} = 2\Delta\sigma_{11} - \Delta\sigma_{22} &= \int_{-\infty}^t G_1(t-\tau) \frac{\partial(2\Delta\varepsilon_{11} - \Delta\varepsilon_{22} - \Delta\varepsilon_{33})}{\partial\tau} d\tau = \int_{-\infty}^t 3G_1(t-\tau) \frac{\partial\Delta\varepsilon_{11}}{\partial\tau} d\tau \\ 3\Delta s_{22} = 2\Delta\sigma_{22} - \Delta\sigma_{11} &= \int_{-\infty}^t G_1(t-\tau) \frac{\partial(2\Delta\varepsilon_{22} - \Delta\varepsilon_{11} - \Delta\varepsilon_{33})}{\partial\tau} d\tau = \int_{-\infty}^t 3G_1(t-\tau) \frac{\partial\Delta\varepsilon_{22}}{\partial\tau} d\tau \\ \Rightarrow \begin{cases} \Delta\sigma_{11} = \int_{-\infty}^t 2G_1(t-\tau) \frac{\partial\Delta\varepsilon_{11}}{\partial\tau} d\tau + \int_{-\infty}^t G_1(t-\tau) \frac{\partial\Delta\varepsilon_{22}}{\partial\tau} d\tau \\ \Delta\sigma_{22} = \int_{-\infty}^t 2G_1(t-\tau) \frac{\partial\Delta\varepsilon_{22}}{\partial\tau} d\tau + \int_{-\infty}^t G_1(t-\tau) \frac{\partial\Delta\varepsilon_{11}}{\partial\tau} d\tau \end{cases} \\ \Rightarrow \begin{cases} \Delta\sigma_{11} = \frac{2}{3} \int_{-\infty}^t 2\bar{E}(t-\tau) \frac{\partial\Delta\varepsilon_{11}}{\partial\tau} d\tau + \frac{2}{3} \int_{-\infty}^t \bar{E}(t-\tau) \frac{\partial\Delta\varepsilon_{22}}{\partial\tau} d\tau \\ \Delta\sigma_{22} = \frac{2}{3} \int_{-\infty}^t 2\bar{E}(t-\tau) \frac{\partial\Delta\varepsilon_{22}}{\partial\tau} d\tau + \frac{2}{3} \int_{-\infty}^t \bar{E}(t-\tau) \frac{\partial\Delta\varepsilon_{11}}{\partial\tau} d\tau \end{cases} & (5.23) \\ \Rightarrow \Delta\sigma_{33} \ll \Delta\sigma_{11} \text{ ou } \Delta\sigma_{22} \end{aligned}$$

Les relations (5.23) permettent de relier directement le tenseur des déformations au tenseur des contraintes sans avoir à utiliser l'intermédiaire des tenseurs déviatorique et

sphérique. Cette relation faisant intervenir le module viscoélastique permettra d'adapter les modèles élastiques pour prendre en compte la relaxation des contraintes.

### Formulation différentielle

Pour un modèle de Maxwell multimode à  $N$  éléments le tenseur déviateur des contraintes peut être défini par la relation (5.6) pour la formulation différentielle.

## 2 Temps virtuel

Le module  $G(t)$  est défini à une température constante,  $T_0$ , appelée température de référence. L'influence de la température sur le comportement mécanique a été décrite au 3<sup>ème</sup> chapitre. Nous allons maintenant présenter une méthode permettant de prendre en compte les variations de température au sein d'une pièce pour le calcul des contraintes résiduelles.

Dans un premier temps, nous introduisons la notion de temps virtuel permettant d'appliquer les relations précédentes à un milieu dont la température est constante mais différente de la température de référence. Puis nous étendrons cette notion au cas d'un milieu dont la température évolue de façon hétérogène. Nous ne considérerons que des matériaux ayant des propriétés thermorhéologiquement simple.

### 2.1 Temps virtuel dans des conditions isothermes

Le comportement viscoélastique d'un matériau thermo – rhéologiquement simple à une température  $T$  est complètement défini à partir d'une courbe maîtresse à une température de référence,  $T_0$ , et du facteur de glissement  $a_T$  (cf. chapitre 3). Les modules définis à  $T_0$  sont translatés horizontalement sur l'échelle des temps du facteur  $a_T$ . On définit par la relation (5.24) un temps virtuel,  $\xi$ , permettant de relier le module à la température  $T$  :  $G(t, T)$ , au module défini à la température de référence  $T_0$  :  $G(\xi, T_0)$ . Les modules à une température  $T$  sont calculés à partir du comportement du matériaux à la température de référence,  $T_0$ , associée à une nouvelle échelle de temps : le temps virtuel,  $\xi = a_T t$ .

$$G(t, T) = G(a_T t, T_0) = G(\xi, T_0) \quad \Rightarrow \quad \xi = a_T t \quad (5.24)$$

$$\begin{array}{ll} \text{si } T < T_0 & \xi < t \\ T = T_0 & \xi = t \\ T > T_0 & \xi > t \end{array}$$

La définition du temps virtuel permet à partir de la relation (5.1), valable à la température de référence, de définir une loi intégrale de relaxation (5.25) à une température uniforme quelconque  $T$ .

$$\boxed{\begin{array}{l} s_{ij}(x, t) = \int_{-\infty}^{\xi} G_1(\xi - \xi') \frac{\partial e_{ij}(x, \xi')}{\partial \xi'} d\xi' \\ \sigma(x, t) = \int_{-\infty}^{\xi} G_2(\xi - \xi') \frac{\partial e(x, \xi')}{\partial \xi'} d\xi' \end{array}} \quad (5.25)$$

avec  $\xi = f(t) = a_T t$

Les relations (5.25) sont également valables si le champ de température  $T(x)$  est stationnaire et non homogène dans la pièce. Le temps virtuel est alors défini pour chaque point du milieu continu,  $\xi(x) = a_{T(x)} t$ .

## 2.2 Temps virtuel dans des conditions anisothermes

La loi de comportement présentée au paragraphe précédent ne permet pas de prendre en compte des variations de la température en fonction du temps. Si nous considérons maintenant un champ de température  $T(x, t)$  non stationnaire, il est nécessaire d'apporter deux modifications aux relations (5.25). Celles-ci permettent de définir le temps virtuel dans des conditions anisothermes et de prendre en compte la variation du volume spécifique hétérogène dans l'épaisseur.

La première concerne la définition du temps virtuel afin de permettre une évolution de la température. Notons  $\tilde{G}(t-t')$  le module reliant localement la contrainte  $\sigma_{ij}(t)$  au temps  $t$  à la déformation  $\varepsilon_{ij}(t')$  survenue au temps  $t'$  ( $t' < t$ ). Ce module de relaxation est associé à un point  $x$  et dépend de l'histoire thermique  $T(x, t)$  entre  $t'$  et  $t$  de celui-ci. Afin de se ramener au module défini à la température de référence, on introduit comme précédemment un temps virtuel  $\xi = \xi(x, t)$  tel que :

$$\tilde{G}(t) = G(\xi, T_0) \quad (5.26)$$

Si on considère que la température est constante dans la pièce lors d'un incrément de temps (Figure 5.1) : on est à nouveau dans une situation stationnaire par incrément. L'incrément de temps virtuel est alors relié à l'incrément de temps réel par la relation (5.24), soit :

$$\Delta\xi = a_{T(t)} \Delta t \quad (5.27)$$

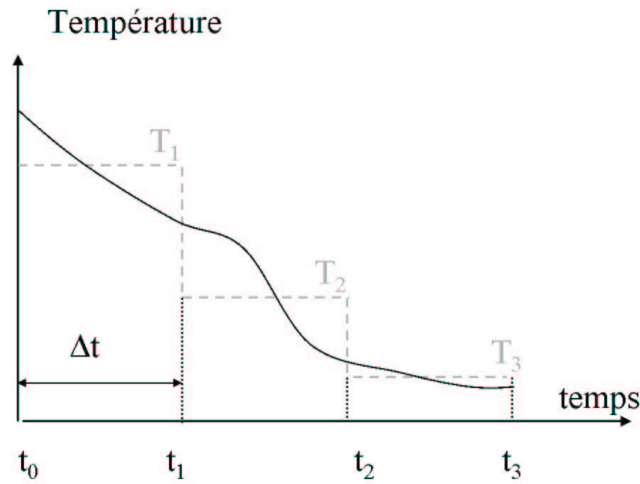


Figure 5.1 : décomposition de l'évolution de la température

Après un incrément de temps  $\Delta t$ , la relation (5.26) s'écrit  $\tilde{G}(t + \Delta t) = G(\xi + \Delta\xi, T_0)$ .

Puisque à  $t=0$ ,  $\tilde{G}(0) = G(t=0, T_0)$  et  $\xi(x, 0) = 0$ , le temps virtuel reliant le module de relaxation  $\tilde{G}$  au module de relaxation défini à la température de référence s'écrit :

$$\xi = f(t) = \int_0^t a_T(\tau) d\tau \quad (5.28)$$

$$\xi = (a_{T_1} + a_{T_2} + a_{T_3}) \Delta t \quad (\text{pour l'exemple Figure 5.1}).$$

Le temps virtuel et donc tous les phénomènes de relaxation des contraintes sont dépendants de l'histoire thermique depuis l'instant  $t'$  auquel a eu lieu la déformation. Le calcul viscoélastique anisotherme est réalisé comme le calcul isotherme mais dans un autre espace de temps : le temps virtuel.

La deuxième modification est relative à la variation du volume spécifique avec la température (et/ou le taux de cristallinité) du matériau et a déjà été étudiée pour les lois de comportement élastiques. Le raisonnement est identique en viscoélasticité linéaire. La formulation intégrale de la loi de comportement anisotherme a été déterminée par [Morland, 1960 #13] : relation (5.29).

$$\begin{aligned} s_{ij}(x,t) &= \int_{-\infty}^t G(\xi - \xi') \frac{\partial e_{ij}(x, \xi')}{\partial \xi'} d\xi' \\ \sigma(x,t) &= \int_{-\infty}^t 3K(\xi - \xi') \frac{\partial (e(x, \xi') - 3\alpha_0 \theta(x, \xi'))}{\partial \xi'} d\xi' \end{aligned} \quad (5.29)$$

$$\begin{aligned} \text{avec} \quad \xi &= f(t) = \int_0^t a_{T(\tau)} d\tau \\ \theta(x,t) &= \frac{1}{\alpha_0} \int_0^{T(x,t)} \alpha(T') dT' \end{aligned}$$

Dans l'équation (5.29), la température intervient à travers le temps virtuel,  $\xi$ , et la pseudo-température  $\theta(x,t)$ . En chaque point, le tenseur des contraintes est fonction du temps  $t$  et de toute l'histoire thermo-mécanique précédente.

### 3 Extension du modèle élastique

---

Le modèle viscoélastique a été développé à partir du modèle élastique thermo dépendant et en effectuant l'hypothèse des contraintes planes. Au repère  $(r, \theta, z)$  du tube correspond le repère  $(x, y, z)$  d'une plaque d'épaisseur 0,5mm. Les résultats obtenus pour les lois de comportement élastique justifient l'hypothèse des contraintes planes.

#### 3.1 Formulation intégrale

##### 3.1.1 Description du calcul

Pour adapter le modèle précédent à une loi de comportement viscoélastique, il est nécessaire de prendre en compte la relaxation des contraintes au cours du temps. La formulation intégrale correspond le mieux à l'adaptation du modèle élastique thermo dépendant au modèle viscoélastique linéaire. Le modèle viscoélastique est également basé sur une méthode de tranches : nous suivons l'évolution des contraintes dans une tranche en fonction du temps.

L'évolution des déformations en fonction du temps,  $\varepsilon_{ij}(t)$ , est fractionnée en incréments de déformation  $\Delta\varepsilon_{ij}(t)$  constants par pas de temps  $\Delta t$ . A chaque incrément de déformation, nous associons un incrément de contrainte  $\Delta\sigma_{ij}(t)$  représentant l'évolution de la contrainte due uniquement à cet incrément de déformation. La loi de comportement étant linéaire, le profil de contrainte final est égal à la somme de tous les incréments de contrainte. Cette décomposition correspond aux relations (5.3) et (5.4)) permettant de redéfinir la formulation intégrale et est proche du modèle de tranches mis en place au 4<sup>ème</sup> chapitre pour les modèles élastiques.

Nous nous intéresserons à l'évolution dans le temps,  $t$ , d'un incrément de contrainte,  $\Delta\sigma(r,t)$ , dû à un incrément de déformation au temps  $t'$ ,  $\Delta\varepsilon(r,t')$  ( $t' \leq t$ ). Nous déterminerons le champ de contrainte à l'instant  $t'$ , puis nous verrons comment ces contraintes se relaxent dans le temps et quelles sont les conditions pour garantir les équations d'équilibre lors de la relaxation de cet incrément de contrainte. Le profil de contrainte à un instant  $t$  est simplement obtenu en sommant tous les incréments de contrainte du temps  $t'=0$  à l'instant  $t$ .

##### a) Champ de contraintes au temps $t'$

Au temps  $t=t'$ , le comportement viscoélastique correspond à la loi de comportement élastique vitreux, mais au temps  $t=t'+\Delta t$  les contraintes se sont déjà en partie relaxées.

Nous avons choisi de poser qu'à cet instant  $t'$  le problème viscoélastique est équivalent au problème élastique thermo dépendant. La relation entre le temps du modèle viscoélastique et la température du modèle élastique est effectuée par l'intermédiaire du temps virtuel correspondant au pas de temps  $\Delta t$  (5.30). Différents essais ont été réalisés en calculant le module à  $\Delta t/2$  ou  $\Delta t/10$ , ils n'ont montré aucune différence sur le résultat final car le pas de temps est déjà très petit (modèle thermique explicite).

$$\bar{E}(r) = E(\xi(T(r), \Delta t)) \approx 3 \tilde{G}(a_{T(r)} \cdot \Delta t) \quad (5.30)$$

Le champ de contrainte à l'instant  $t'$  est défini en utilisant le même algorithme que pour le modèle élastique thermo-dépendant (résolution de l'équation 4.33 du 4<sup>ème</sup> chapitre). Le module  $E(r)$  est fonction du temps virtuel  $\xi(T(r), \Delta t)$  au lieu d'être défini en fonction de la

température ce qui reste strictement équivalent. La gestion des conditions aux limites reste également identique aux cas élastiques précédents.

### b) Relaxation des contraintes $t > t'$

Ayant déterminé l'incrément de contrainte au temps  $t=t'$ , nous voulons désormais calculer son évolution dans le temps. Nous faisons pour ceci l'hypothèse des contraintes planes et de l'incompressibilité (la variation volumique a eu lieu au temps  $t=t'$ ). L'évolution dans le temps de l'incrément de contrainte peut être obtenue à partir des relations (5.23). Pour un incrément de déformation au temps  $t'$ , celle-ci est équivalente à la relation (5.31) :

$$\begin{cases} \Delta\sigma_{11}(t) = \frac{4}{3}\bar{E}(t-t')\Delta\varepsilon_{11}(t') + \frac{2}{3}\bar{E}(t-t')\Delta\varepsilon_{22}(t') \\ \Delta\sigma_{22}(t) = \frac{4}{3}\bar{E}(t-t')\Delta\varepsilon_{22}(t') + \frac{2}{3}\bar{E}(t-t')\Delta\varepsilon_{11}(t') \end{cases} \quad (5.31)$$

• La détermination des déformations à l'instant  $t'$  peut être obtenue à partir du tenseur des contraintes à l'instant  $t'$  par les relations (4.22). La variation du volume spécifique est déjà prise en compte dans le calcul des contraintes, ce terme n'apparaît pas dans les relations (5.32). En reprenant la notation dans le repère  $(r, \theta, z)$  nous avons :

$$\Delta\varepsilon_{rr} = \frac{1}{E}(\Delta\sigma_{rr} - \nu(\Delta\sigma_{\theta\theta} + \Delta\sigma_{zz})) \quad (a) \quad (5.32)$$

$$\Delta\varepsilon_{\theta\theta} = \frac{1}{E}(\Delta\sigma_{\theta\theta} - \nu(\Delta\sigma_{rr} + \Delta\sigma_{zz})) \quad (b)$$

$$\Delta\varepsilon_{zz} = \frac{1}{E}(\Delta\sigma_{zz} - \nu(\Delta\sigma_{rr} + \Delta\sigma_{\theta\theta})) \quad (c)$$

### c) Equations d'équilibre

Les contraintes étant obtenues dans les mêmes conditions qu'avec le modèle élastique, elles vérifient les conditions d'équilibre à l'instant  $t'$ . Par contre, la notion d'équilibre des contraintes n'apparaît pas dans la détermination des relations (5.31) ou (5.32). Il est nécessaire de vérifier que ces conditions sont vérifiées à l'instant  $t$  lorsque les contraintes ont pu se relaxer.

#### Géométrie plane :

La condition d'équilibre est vérifiée si  $\text{div}\sigma=0$ , soit pour des contraintes planes  $\frac{\partial\sigma_{yy}}{\partial y} = \frac{\partial\sigma_{zz}}{\partial z} = 0$ . La température, équivalent au temps virtuel, et  $\bar{E}(t-t')$ , sont uniquement dépendants de  $x$ . Donc, si les conditions d'équilibre sont vérifiées à  $t'$ , elles le sont forcément à  $t$ .

#### Géométrie cylindrique :

Les équations d'équilibre ont été déterminées au chapitre précédent (4.11) et sont rappelées ci dessous. La température est uniquement dépendante de  $r$  dans une tranche du tube, donc si les équations d'équilibre sont vérifiées à l'instant  $t'$ , la condition (b) sera également vérifiée à l'instant  $t$ , mais la condition d'équilibre (a) reliant les contraintes  $\sigma_{rr}$  et  $\sigma_{\theta\theta}$  ne le sera plus.

$$\begin{cases} \frac{\partial\Delta\sigma_{rr}}{\partial r} + \frac{\Delta\sigma_{rr} - \Delta\sigma_{\theta\theta}}{r} = 0 \Leftrightarrow \frac{d}{dr}(r\Delta\sigma_{rr}) = \Delta\sigma_{\theta\theta} \quad (a) \\ \frac{\partial\Delta\sigma_{zz}}{\partial z} = 0 \quad (b) \end{cases} \quad (\text{rappel 4.11})$$



Si les propriétés du matériau évoluent en fonction du temps et du rayon, il n'est pas possible d'utiliser pour une géométrie cylindrique la méthode décrite au paragraphe précédent pour transposer le modèle élastique thermo-dépendant en un modèle viscoélastique car les conditions d'équilibre ne seraient pas vérifiées au temps  $t > t'$ . Par contre cette méthode est valable pour une plaque.

Le gradient de contrainte  $\sigma_{yy}$  est équivalent au gradient  $\sigma_{\theta\theta}$  qui se forme dans le tube. Ainsi en remplaçant  $\sigma_{\theta\theta}(r)$  par son équivalent  $\sigma_{yy}(x)$  dans l'équation 4.11 (a), nous pouvons déterminer  $\sigma_r$  et conserver les mêmes conditions aux limites que précédemment.

### 3.1.2 Limites de la méthode

La détermination du profil de contrainte total nécessite de connaître tous les incréments de déformations et les temps virtuels pour chacun des points depuis le début de refroidissement ce qui nécessite de stocker énormément de données. (environ 10 000 incréments x 51 points x 2 =  $10^6$  données)

Si les conditions aux limites sont amenées à évoluer au cours du temps (perte de contact, prise en compte des frottement), il est nécessaire de recalculer à chaque pas de temps tous les incréments de contrainte pour tous les points. Pour cela nous devons recalculer tous les temps virtuels, tous les modules et les conditions de test annexes soit également à la fin plus de  $10^6$  opérations.

Ces deux conditions sont une réelle limite à l'application de la formulation intégrale qui n'a été réellement utilisée que pour calculer des conditions de refroidissement libre et de déplacement radiale nulle  $u(Re)=0$  sans prise en compte du frottement.

## 3.2 Formulation différentielle

L'objectif est de pouvoir calculer la relaxation des contraintes lors d'un incrément de temps  $\Delta t$  sans devoir connaître toute l'histoire thermo mécanique du matériau. Nous voulons être capables de déterminer  $[\sigma(t)]$  uniquement à partir du champ de température à l'instant  $t$ ,  $T(r,t)$  et des contraintes à l'instant  $(t-\Delta t)$  :  $[\sigma(t-\Delta t)]$ .

Pour ceci, nous avons choisi d'utiliser comme loi de comportement le modèle de Maxwell généralisé à  $N$  éléments correspondant à l'équation (5.6).

### 3.2.1 Relaxation des contraintes

Si nous avons gardé en mémoire la répartition du tenseur des contraintes par rapport au spectre de relaxation, nous pouvons obtenir dans le cas de la relaxation son évolution dans le temps à partir de l'équation (5.6) : relation (5.33).

La relation (5.6), définissant la partie déviatorique, se simplifie pour un calcul de relaxation  $[\varepsilon]=0$  :

$$s_{ij} = \sum_{n=1}^N s_{ij}^{(n)} \tag{5.33}$$

$$s_{ij}^{(n)} + \lambda_n \frac{\partial s_{ij}^{(n)}}{\partial t} = 0 \Rightarrow s_{ij}^{(n)}(t) = s_{ij}^{(n)}(t - \Delta t) \exp\left(-\frac{\Delta t}{\lambda_n}\right)$$

Si nous effectuons l'hypothèse des contraintes planes et que nous considérons une répartition équivalente des contraintes et des parties déviatoriques par rapport au spectre de relaxation, nous pouvons relier les éléments du tenseur de contrainte et du tenseur déviatorique par la relation (5.34). Si nous remplaçons les termes déviatoriques par les éléments de contrainte dans l'équation (5.33), nous obtenons une formulation équivalente directement pour les contraintes : (5.35).

$$\begin{aligned} 3\Delta s_{11} &= 2\Delta\sigma_{11} - \Delta\sigma_{22} \\ 3\Delta s_{22} &= 2\Delta\sigma_{22} - \Delta\sigma_{11} \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} \forall n: 3\Delta s_{11}^{(n)} &= 2\Delta\sigma_{11}^{(n)} - \Delta\sigma_{22}^{(n)} \\ 3\Delta s_{22}^{(n)} &= 2\Delta\sigma_{22}^{(n)} - \Delta\sigma_{11}^{(n)} \end{aligned} \quad (5.34)$$

$$\sigma_{ij} = \sum_{n=1}^N \sigma_{ij}^{(n)} \quad (5.35)$$

$$\sigma_{ij}^{(n)}(t) = \sigma_{ij}^{(n)}(t - \Delta t) \exp\left(-\frac{\Delta t}{\lambda_n}\right)$$

La relation (5.35) met en avant l'intérêt de la loi de comportement de Maxwell généralisé pour déduire simplement la relaxation des contraintes sans devoir connaître toute l'histoire thermomécanique du matériau. Nous retrouvons ainsi le raisonnement simple qui avait permis au 3<sup>ème</sup> chapitre (paragraphe 3.2.1.c) d'introduire le comportement 1D d'un modèle multimode par rapport à la relaxation des contraintes.

Les remarques effectuées au paragraphe précédent sur les équations d'équilibre sont également valables pour la formulation différentielle. La relaxation des contraintes ci-dessus est effectuée dans le cadre des contraintes planes, l'équilibre des contraintes n'étant plus vérifié pour une géométrie cylindrique. Mais comme pour la formulation intégrale,  $\sigma_{yy}(x)$  et  $\sigma_{\theta\theta}(r)$  sont équivalents et la contrainte  $\sigma_{rr}(r)$  peut être déterminée à partir de l'équation 4.11(a) afin de déterminer les conditions aux limites permettant de calculer l'incrément de contrainte entre  $t$  et  $t+\Delta t$ .

### 3.2.2 Incrément de contrainte

#### a) Calcul des contraintes

L'incrément de contrainte à l'instant  $t$  est obtenu de la même manière que dans le cas de la formulation intégrale à l'instant  $t'$ . Nous calculons la valeur du module dans l'épaisseur en fonction de  $T(r,t)$  pour un intervalle de temps  $\Delta t$  et nous utilisons l'algorithme du modèle élastique thermo-dépendant pour calculer  $[\Delta\sigma(t)]$ .

#### b) Conditions aux limites

Les conditions aux limites sont réactualisées à chaque incrément de calcul afin de prendre en compte la relaxation des contraintes.

- Conditions aux limites axiales : à chaque incrément, les contraintes axiales se relaxent et il faut rééquilibrer la force axiale qui est égale à la somme de la force d'étirage à l'instant  $t-\Delta t$  et de l'incrément dû aux frottements si le tube est en contact avec la chambre de calibrage. A chaque incrément, nous imposons donc sur la tranche la force axiale suivante

$$\Delta F_{axiale} = (F_{\text{étirage}}(t - \Delta t) + \Delta F_{\text{frottements}}) - \int_{R_i}^{R_e} 2\pi r \sigma_{zz} dr \quad (5.36)$$

- Conditions aux limites radiales. Les contraintes  $\sigma_r(R_e)$  sont recalculées à chaque incrément afin de déterminer les conditions aux limites (équation d'équilibre 4.11(a) en  $\sigma_r$  et  $\sigma_{\theta\theta}$ )

ℰ si  $-\sigma_r(R_e) < P_{\text{conformateur}}$  : il y a contact entre la surface extérieure du tube et la chambre de calibrage : la condition aux limites reste comme dans le cas élastique  $u(R_e) = 0$

ℰ si  $-\sigma_r(R_e) = P_{\text{conformateur}}$  : le tube n'est plus en contact avec la chambre de calibrage : les contraintes  $\sigma_{\theta\theta}$  se sont relaxées donc les contraintes  $\sigma_r(R_e)$  sont inférieures à la dépression dans le conformateur. Afin de garantir les conditions aux limites, il est nécessaire d'appliquer à la surface extérieure du tube l'incrément de dépression  $\Delta P_e = P_{\text{conf}} - \sigma_r(R_e)$ . Si la relaxation des contraintes était importante, on pourrait imaginer un reprise du contact entre le tube et la chambre de calibrage (par exemple si on avait une zone de réchauffage).

### c) Répartition de l'incrément de contrainte / spectre de relaxation

Nous ne nous intéressons lors de cette étape qu'aux contraintes  $\sigma_{\theta\theta}$  et  $\sigma_{zz}$ , puisque  $\sigma_r$  sera intégralement recalculé à chaque pas de temps à partir de  $\sigma_{\theta\theta}$ .

Le coefficient de Poisson étant proche de 0.5, les caractéristiques mécaniques  $\bar{E}(t)$  ont été calculées par la relation (5.21). Afin de répartir l'incrément de contraintes sur chacun des éléments du spectre de relaxation, nous calculons l'incrément de déformation associé par la relation (5.32). Nous déterminons ensuite en sens inverse l'incrément de contraintes pour chaque élément n en remplaçant le module  $\bar{E}(t)$  par  $\bar{E}^{(n)}(t)$ .

## 4 Modélisation des contraintes avant la cristallisation

La distribution et l'histoire mécanique des contraintes dues aux incréments de déformation à l'état fluide sont nécessaires pour étudier la distribution des contraintes entre les couches lors de la cristallisation. Suivant l'histoire du chargement, la température dans l'épaisseur et les propriétés du matériau, les contraintes dans les couches à l'état fluide (non cristallisées) se relaxeront différemment pour se répartir dans les couches à l'état solide (cristallisées) (cf. exemples qualitatifs du 1<sup>er</sup> chapitre).

### 4.1 Evolution des contraintes lors de l'étirage dans l'air

La modélisation des matériaux à l'état fluide correspond à l'étirage dans l'air entre la filière et la chambre de calibrage. Les conditions aux limites à respecter sont représentées Figure 5.2 :

- à la sortie de la filière : rayon de la filière, épaisseur de l'entrefer, vitesse.
- à l'entrée dans le conformateur : rayon de la chambre de calibrage et vitesse d'étirage (ou force d'étirage).

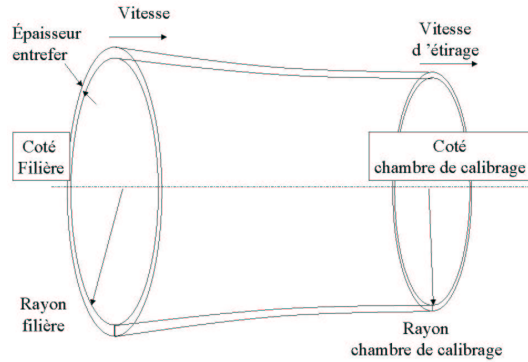


Figure 5.2 : conditions aux limites de l'étirage dans l'air

Le rayon de la filière et l'épaisseur de l'entrefer sont déterminés pour chaque section de tube afin que le rayon au niveau de l'entrée dans le conformateur soit légèrement inférieur au rayon qu'aurait le tube si il était simplement étiré. Cette contrainte est nécessaire pour assurer l'étanchéité du conformateur. Les contraintes sont essentiellement dans la direction axiale et correspondent à une force d'étirage d'environ 10 N (cf. résultats expérimentaux 2<sup>ème</sup> chapitre). Pour un tube de rayon 25mm et d'épaisseur 0,5mm, les contraintes axiales moyennes sont égales à 0,13MPa.

Le rayon étant imposé à l'entrée de la chambre de calibrage, les déformations dans une tranche entre la filière et le conformateur ne sont pas indépendantes les unes des autres. Le modèle de tranches que nous avons développé pour décrire la formation des contraintes n'est pas adapté entre la filière et la chambre de calibrage.

De plus l'étirage est effectué à des vitesses et des taux de déformation élevés pour lesquels le comportement du matériau s'éloigne du comportement viscoélastique linéaire.

Afin d'avoir une première approximation de la répartition et de l'histoire des contraintes, nous avons calculé l'évolution des contraintes dans une barre au cours du refroidissement. Ce modèle, très simplifié par rapport à la réalité, ne prend pas en compte l'évolution de la géométrie au cours de l'étirage et reste basé sur une loi de comportement viscoélastique linéaire décrite par un modèle de Maxwell multimode (cf. 3<sup>ème</sup> chapitre). Ce calcul permet cependant d'avoir une valeur d'initialisation pour  $[\sigma^{(n)}(t)]$ .

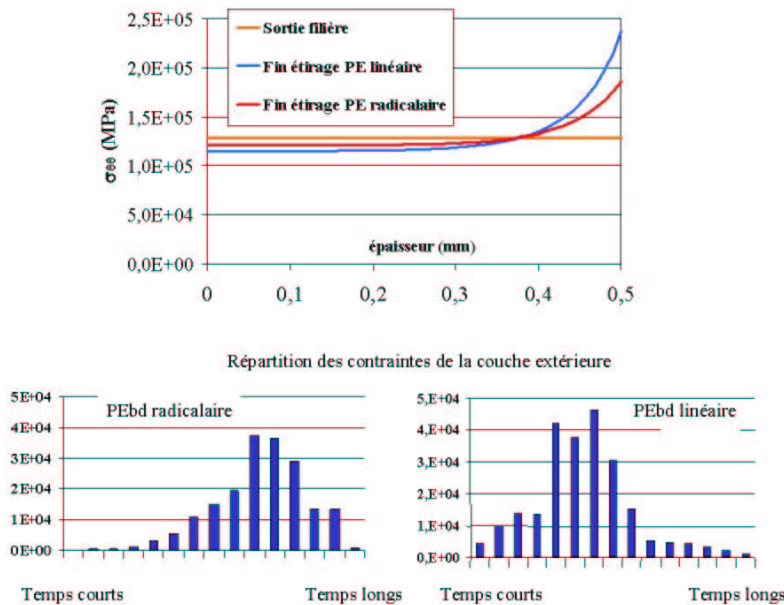


Figure 5.3 : état des contraintes à l'entrée du bac de calibrage et répartition des contraintes par rapport au spectre multimode

## 4.2 Transition lors de la cristallisation

La cristallisation du polyéthylène entraîne une brusque variation des propriétés mécaniques correspondant au passage d'un état dit fluide à un état solide (3<sup>ème</sup> chapitre, paragraphe 3). Cette brusque variation du comportement mécanique ne permet pas d'utiliser une seule loi de comportement pour décrire les états cristallisés et non cristallisés. Afin d'assurer la continuité des propriétés mécaniques, nous avons choisi dans la zone de transition une loi de mélange basée sur le taux de cristallinité. On considère arbitrairement que le tube est solidifié à la fin de la cristallisation primaire, soit à un taux de cristallinité de 25%.

$$\begin{aligned} \text{si } \chi_c < 0.25 &\Rightarrow [\sigma] = \frac{(0.25 - \chi_c)}{0.25} [\sigma_{\text{fluide}}] + \frac{\chi_c}{0.25} [\sigma_{\text{solide}}] \\ \chi_c > 0.25 &\Rightarrow [\sigma] = [\sigma_{\text{solide}}] \end{aligned} \quad (5.37)$$

Les contraintes correspondant à l'état fluide  $[\sigma_{\text{fluide}}]$  et à l'état solide  $[\sigma_{\text{solide}}]$  sont stockées de manières indépendantes.

Le modèle de Maxwell multimode conserve la « mémoire » du chargement mécanique. Si la déformation vient juste de se produire, elle se traduit par un chargement de tous les éléments fluides et solides du modèle multimode. Si elle s'est produite il y a un temps  $t$ , elle n'aura une influence que sur les éléments ayant un temps de relaxation supérieur à  $t$ . Or, lors de la cristallisation la matière se fige et « oublie » ainsi son chargement mécanique précédent tant qu'elle n'est pas réchauffée au dessus de la température de cristallisation : l'histoire thermomécanique des contraintes est réinitialisée à 0. La loi de mélange effectue progressivement cette réinitialisation lors de la période de transition.

Afin d'éviter des contraintes anormalement élevées dans la première couche extérieure, le début de la transition fluide solide commence lorsque le 2<sup>ème</sup> nœud est solidifié. De plus, le calcul mécanique s'effectue sur une sous discrétisation de la discrétisation principale afin d'éviter des variations de propriétés mécaniques trop brutales. La sous discrétisation est recalculée à chaque pas de temps afin que l'écart entre deux nœuds soit au maximum de 1°C. L'état des nœuds de la sous discrétisation est déterminée en début d'incrément par une interpolation linéaire à partir des nœuds principaux.

La modélisation du procédé permet de visualiser la distribution des contraintes entre les couches fluide (non cristallisé) et solide (cristallisé) lors de la cristallisation du matériau. L'explication de la répartition des contraintes entre les couches a été donnée au 1<sup>er</sup> chapitre. Les résultats ci dessous permettent de la quantifier pour deux matériaux, un PEbd radicalaire et un PEbd linéaire, le deuxième matériau ayant des vitesses de relaxation supérieures (cf. 3<sup>ème</sup> chapitre).

Le front de solidification est représenté Figure 5.4 par le trait noir continu. La force d'étirage est pour cet exemple constante (pas de frottement) et égale à 10N.

Pour le polyéthylène basse densité radicalaire, les contraintes dans la partie fluide diminuent progressivement au cours de la solidification. Les contraintes dues à la force d'étirage vont ainsi se répartir sur l'ensemble des couches : 60% des contraintes qui étaient équilibrées par les couches à l'état fluide avant la cristallisation vont être redistribuées dans les 0,2mm extérieur du tube.

Nous constatons que les contraintes axiales diminuent très rapidement dans la partie fluide du PEbdl mais ne s'annulent pas complètement car le spectre de relaxation est aussi composé de long temps de relaxation. **Les contraintes dues à la force d'étirage vont se concentrer principalement dans les premières couches solidifiées provoquant une elongation importante de celles-ci : 80% des contraintes qui étaient équilibrées par les couches à l'état fluide vont être redistribuées dans les 0,05mm extérieur du tube. Ce résultat explique la forte orientation constatée par biréfringence dans les couches extérieures des tubes en PEbdl.**

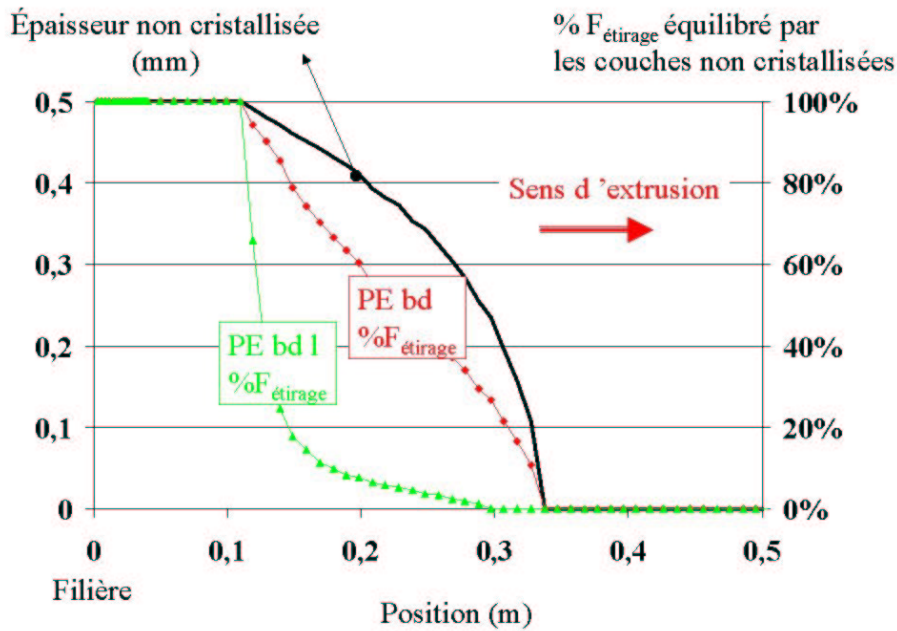


Figure 5.4 : distribution des contraintes lors de la cristallisation

## 5 Formation des contraintes résiduelles

### 5.1 Description des calculs

#### 5.1.1 Phases et conditions aux limites du procédé.

Les résultats du modèle viscoélastique ont été obtenus en considérant le procédé à partir de la sortie de la filière : la zone d'étirage entre la filière et la chambre de calibrage, la zone d'entrée du conformateur, la chambre de calibrage et le passage dans le conformateur hors de la chambre de calibrage. Les calculs ont été effectués en utilisant les caractéristiques du polyéthylène basse densité radicalaire décrites au 3<sup>ème</sup> chapitre.

Nous avons repris les conditions aux limites du modèle élastique. C'est à dire : le refroidissement libre, le cas où le tube reste en contact,  $u(Re)=0$ , et en considérant une dépression dans le conformateur ce qui induit une perte de contact possible entre le tube et la chambre de calibrage. Le dernier cas a été traité avec une force d'étirage initiale et en prenant en compte les forces de frottement de chaque phase (cf. Tableau 1).

Nom de la phase	Coefficient d'échange extérieur (W/m <sup>2</sup> K)	Température extérieure (°C)	Longueur de la phase (m)	Coefficient de frottement
Zone d'étirage	20	100	0,03	0
Bague d'entrée	1000	16	0,01	0
Chambre de calibrage	1000	16	0,6	0,3
Refroidissement hors chambre de calibrage	1000	16	1,5	0

Tableau 1 : Phases du procédé

Finalement, nous avons repris le calcul le plus représentatif du procédé en utilisant les caractéristiques du polyéthylène haute densité afin de représenter l'influence de la « rigidité » du matériau.

### 5.1.2 Modélisation de la température

Les résultats ont tous été obtenus en considérant le cycle thermique complet du procédé à partir de la sortie de la filière. Les coefficients d'échange thermique de chaque phase du procédé sont donnés dans le Tableau 1. Ils diffèrent du modèle élastique par la prise en compte de la zone d'étirage dans l'air entre la sortie de filière et le conformateur. Le tube étant simplement refroidi à l'air et le temps de séjour étant relativement court (~3s à 12m/s), cette étape a peu d'importance sur le profil de température à l'entrée du conformateur. Cette phase a été considérée afin de décrire l'évolution des contraintes depuis l'état fluide et de mieux quantifier leur répartition lors de la cristallisation.

### 5.1.3 Caractéristiques du matériau

En dehors des propriétés mécaniques, la plus grande différence par rapport au modèle élastique provient de la variation du volume spécifique. Le coefficient de dilatation,  $\alpha_T$ , était auparavant considéré comme constant, il est désormais calculé par une loi de mélange fonction de la température et du taux de cristallinité, comme décrit au 3<sup>ème</sup> chapitre. Pour décrire l'évolution du taux de cristallinité, nous avons préféré utiliser directement les résultats expérimentaux obtenus par DSC plutôt que le modèle D'Ozawa. Ce choix a été effectué de manière à prendre en compte la cristallisation secondaire.

### 5.1.4 Comparaison modèles élastique – viscoélastique.

Le module d'Young,  $E=215\text{MPa}$ , que nous avons utilisé pour le modèle élastique ne correspond pas à la valeur du module viscoélastique au temps  $t=0$ , module élastique dit à l'état vitreux ( $E_{\text{vitreux}} = 410\text{MPa}$ ), mais à un module intermédiaire entre l'état vitreux et l'état caoutchoutique.

Afin de quantifier l'influence de la relaxation des contraintes dans le modèle viscoélastique, nous calculerons ci dessous les contraintes pour un comportement élastique avec le module égal au module vitreux, et pour le module d'Young donné dans la notice technique du matériau soit  $215\text{MPa}$ . Tous les autres paramètres seront inchangés par rapport au modèle viscoélastique, le coefficient de dilatation,  $\alpha_T$ , dépendra donc ici de la température et du taux de cristallinité.

### 5.1.5 Validation de l'intervalle des temps du spectre de relaxation

Afin d'être représentatif, l'intervalle des temps du spectre de relaxation doit inclure les temps virtuels mini et maxi de la solidification à la position de sortie du bac de calibrage correspondant à la fin du calcul.

Le temps virtuel mini correspond au pas de temps à  $16^\circ\text{C}$ , soit  $5.10^{-3}\text{s}$ . Le temps virtuel maxi correspond au temps de la surface intérieure depuis sa solidification car c'est à cet endroit que la vitesse de refroidissement est la moins élevée (Figure 5.5). Le temps virtuel maximum du procédé est d'environ 570s pour le polyéthylène basse densité radicalaire. Les éléments du modèle de Maxwell multimode ayant des temps de relaxation supérieurs ont un comportement quasi élastique. L'essentiel de l'évolution du temps

virtuel se produit lorsque la température est supérieure à 60°C. Pour ce procédé et ce matériau, le module de relaxation varie de 410MPa à 115MPa. Les contraintes se formant au dessus de 50°C seront relaxées d'un facteur d'environ 3,5.

Il est nécessaire pour représenter le comportement viscoélastique d'avoir pour le spectre de relaxation des temps supérieurs à  $5.10^{-3}$ s et inférieurs à 600s.

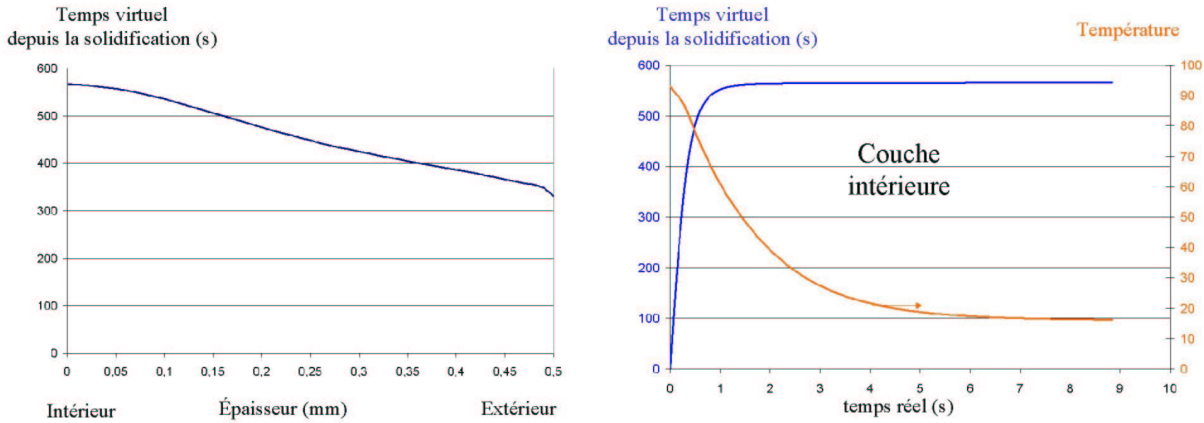


Figure 5.5: valeur du temps virtuel dans l'épaisseur depuis la solidification de la couche et évolution du temps virtuel à la surface intérieure, de la solidification à la fin du refroidissement pour le polyéthylène basse densité.

## 5.2 Refroidissement libre

La formation des contraintes lors du refroidissement libre est représentée Figure 5.6. Lorsque la pression extérieure est nulle ( $\sigma_r(Re)=0$ ), les incréments de contraintes  $\Delta\sigma_r$  et  $\Delta\sigma_{\theta\theta}$  sont indépendants des conditions aux limites axiales. Le modèle viscoélastique donne une évolution du profil de contrainte semblable au modèle élastique. Nous observons uniquement une légère compression ( $\sigma_r$  à 25% solidifié) dans les couches à l'état fluide, puisque celles-ci sont prises en compte dans le calcul.

Nous comparons Figure 5.7 les profils de contraintes  $\sigma_{\theta\theta}$  obtenus pour les comportements élastiques non thermo - dépendant ( $E=215$  MPa et 410 MPa (vitreux)) et viscoélastique. L'effet de la relaxation des contraintes est obtenu en comparant les résultats viscoélastiques au modèle élastique vitreux ( $E=410$  MPa). La relaxation des contraintes diminue d'un facteur 5 le profil final des contraintes.

La répartition des contraintes  $\sigma_{\theta\theta}$  sur le spectre de relaxation discret est représentée Figure 5.7. Nous constatons à l'épaisseur 0.3mm une période de transition pour lesquels les éléments à temps de relaxation élevés sont en traction et ceux représentant les temps courts sont en compression. En effet nous observons Figure 5.6 que ces zones sont initialement en traction et que c'est uniquement à la fin lorsque les couches intérieures se contractent que des contraintes de compression s'y forment.



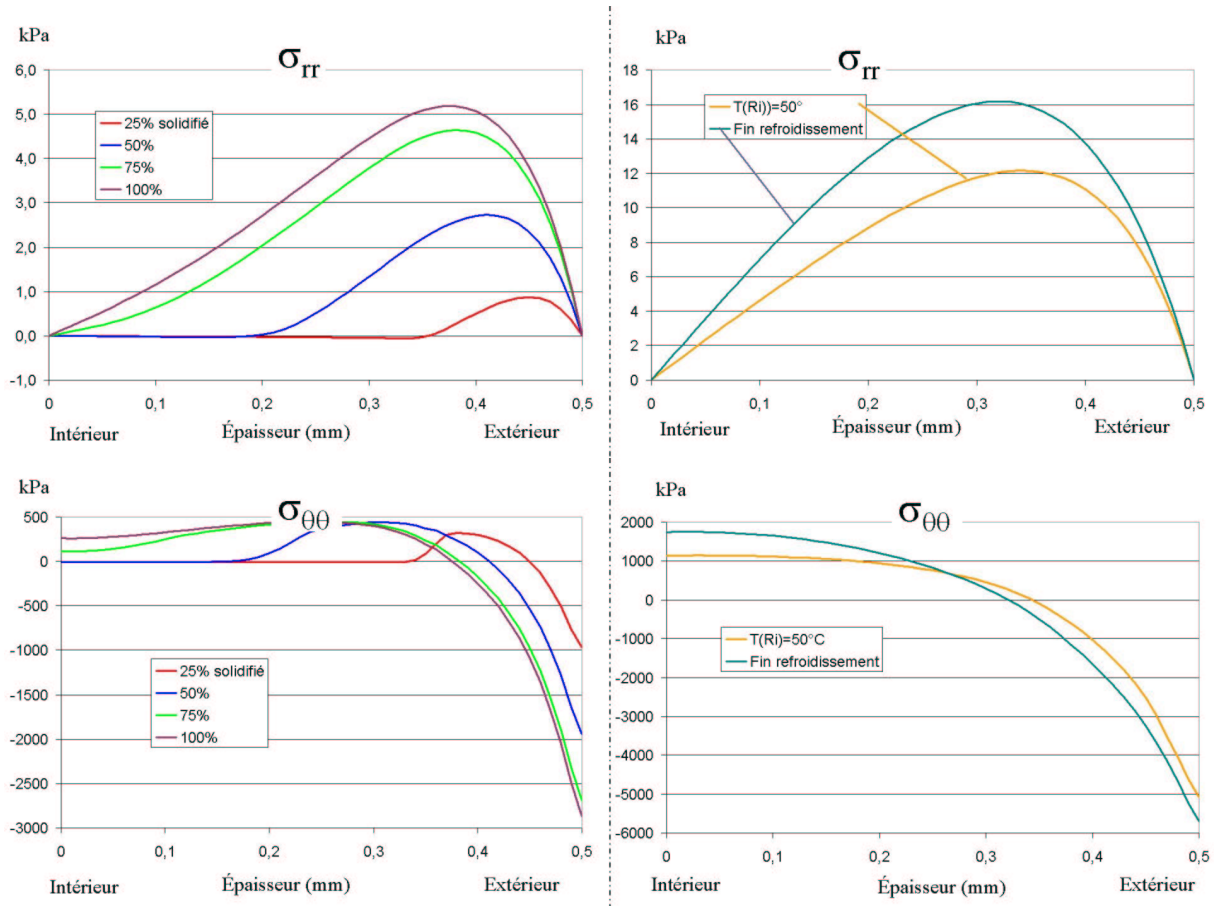


Figure 5.6 : refroidissement libre – Formation des contraintes résiduelles

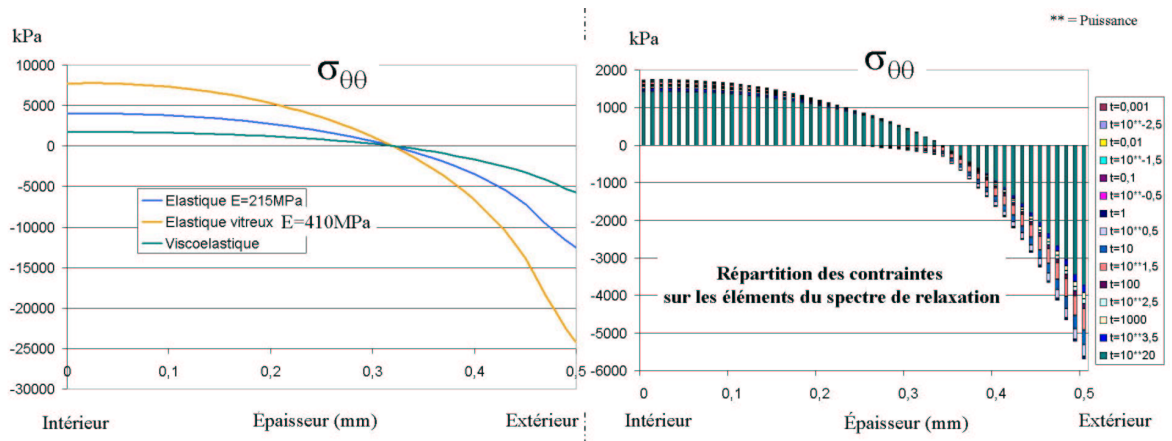


Figure 5.7 : refroidissement libre. Comparaison des modèles élastiques non thermo dépendant ( $E=215\text{MPa}$ ,  $E=410\text{MPa}$ ) et viscoélastique et répartition des contraintes sur le spectre de relaxation discret

### 5.3 Condition aux limites $u(Re)=0$

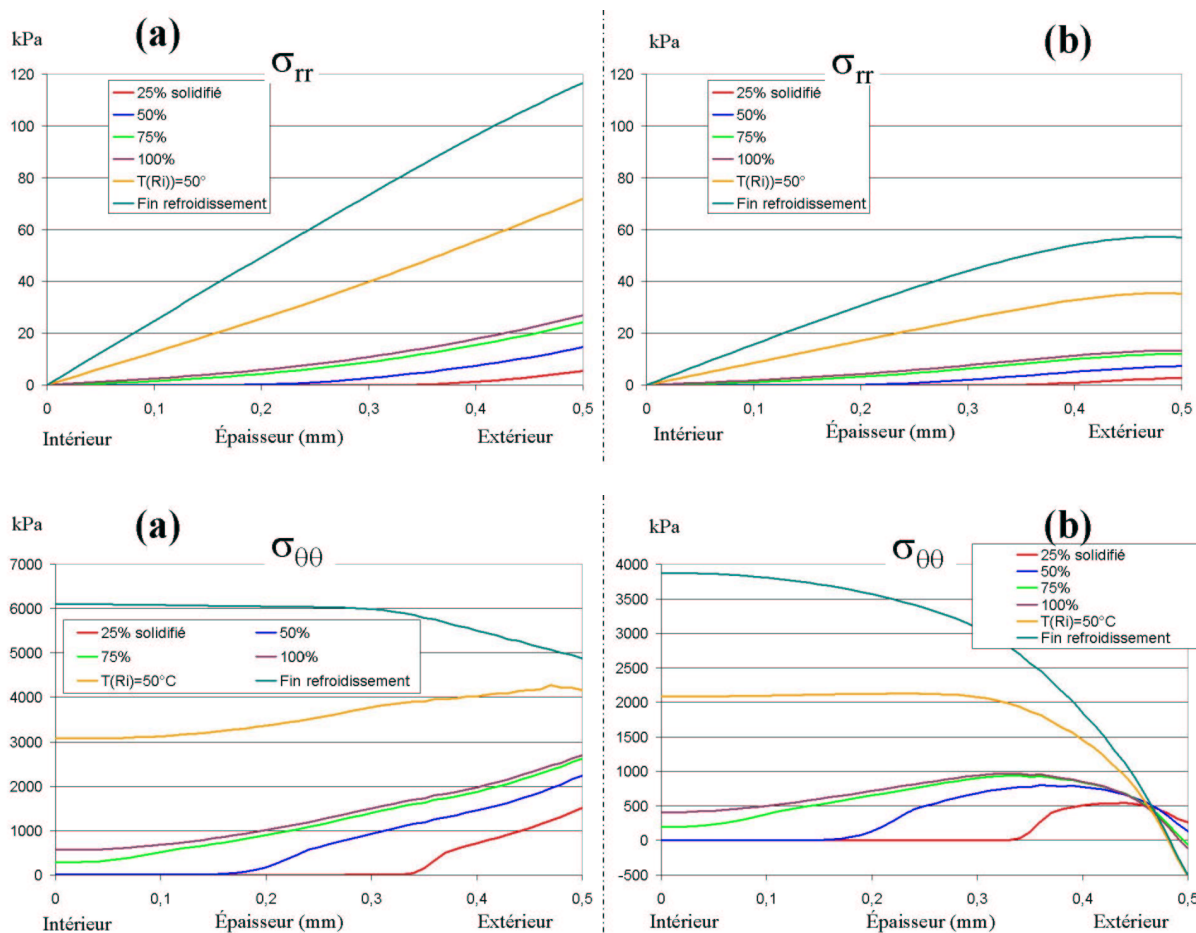
L'évolution des contraintes est représentée Figure 5.8 pour le modèle viscoélastique. Celle-ci est similaire à celle obtenue avec le modèle élastique. Le profil des contraintes finales est cependant très inférieur au profil obtenu pour le comportement vitreux (Figure 5.10). La prise en compte de la relaxation diminue d'un facteur 4 les contraintes  $\sigma_{\theta\theta}$ .

La dépression nécessaire à maintenir le contact est donc diminuée du même ordre de grandeur. Celle-ci est représentée Figure 5.11 pour le matériau viscoélastique. Quelle que soit la condition aux limites axiales, la dépression est supérieure à la dépression du procédé (~100 mbar) pour ce matériau (dépression 60KPa ~ 600 mbar). Le modèle prédit donc une évolution des conditions aux limites radiales lors du refroidissement.

L'influence des conditions aux limites axiales (bords encastrés ou libres) est importante sur l'évolution de la dépression nécessaire pour maintenir le contact. La prise en compte des forces axiales et donc des frottements est un paramètre de premier ordre pour prédire l'évolution des contraintes  $\sigma_{\theta\theta}$ . La conditions aux limites axiales de bords encastrés est équivalente à appliquer la force d'étirage représentée Figure 5.11. Celle-ci est du même de grandeur que les forces de frottement mesurées.

Nous constatons une légère diminution de la dépression (en valeur absolue) après la position 1,5m. A cette position le refroidissement est terminé, la dépression n'a donc plus à compenser la rétraction. La diminution est due à la relaxation des contraintes.

La répartition des contraintes sur le spectre de relaxation discret apparaît sur la Figure 5.9. L'essentiel des déformations est contenu dans l'élément ayant le temps de relaxation le plus long correspondant au comportement dit caoutchoutique.



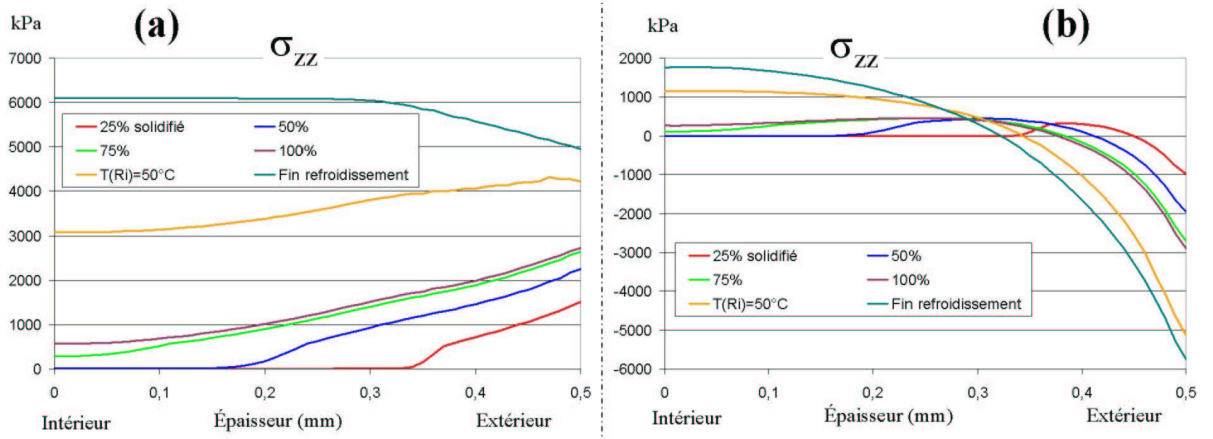


Figure 5.8 : condition  $u(Re)=0$ . Contraintes résiduelles (dépression non relâchée) - (a) Déplacement axial nul :  $A1=0$  - (b) Force axiale nulle. Avant relâchement de la condition aux limites.

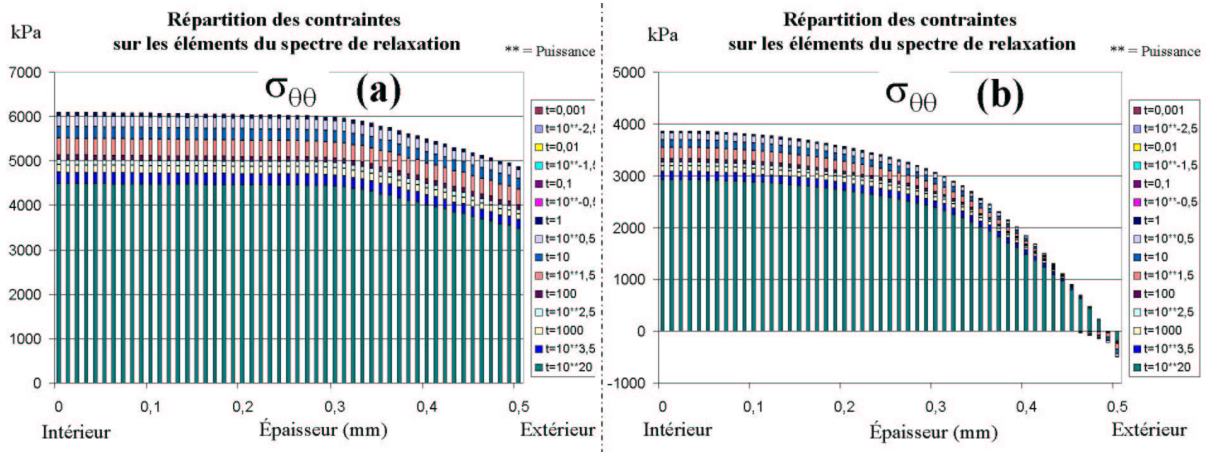


Figure 5.9 : Condition  $u(Re)=0$ . Répartition des contraintes sur le spectre de relaxation discret. (dépression non relâchée) - (a) Déplacement axial nul :  $A1=0$  - (b) Force axiale nulle.

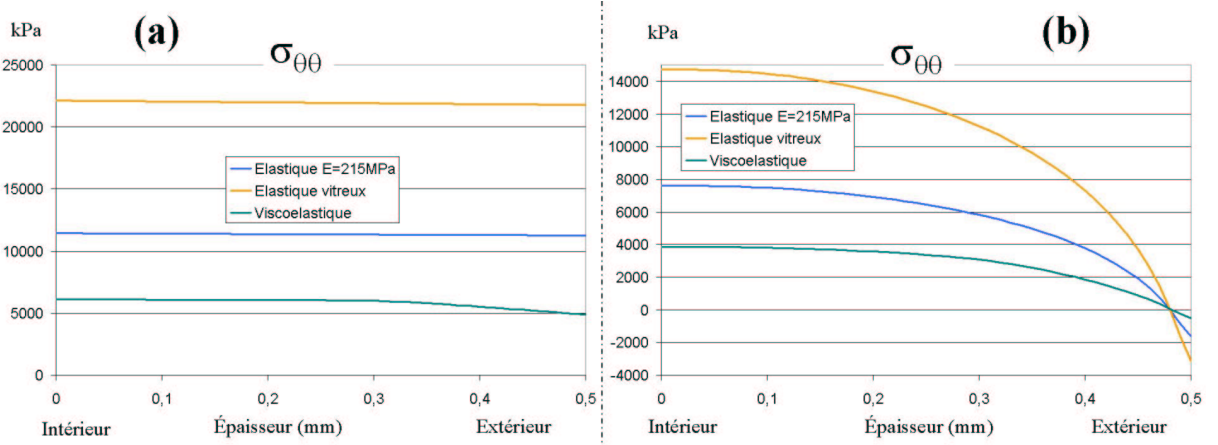


Figure 5.10 : comparaison des profils de contrainte – modèles élastiques non thermo dépendant ( $E=215\text{MPa}$ ,  $E=410\text{MPa}$ ) et viscoélastique - (a) Déplacement axial nul :  $A1=0$  - (b) Force axiale nulle

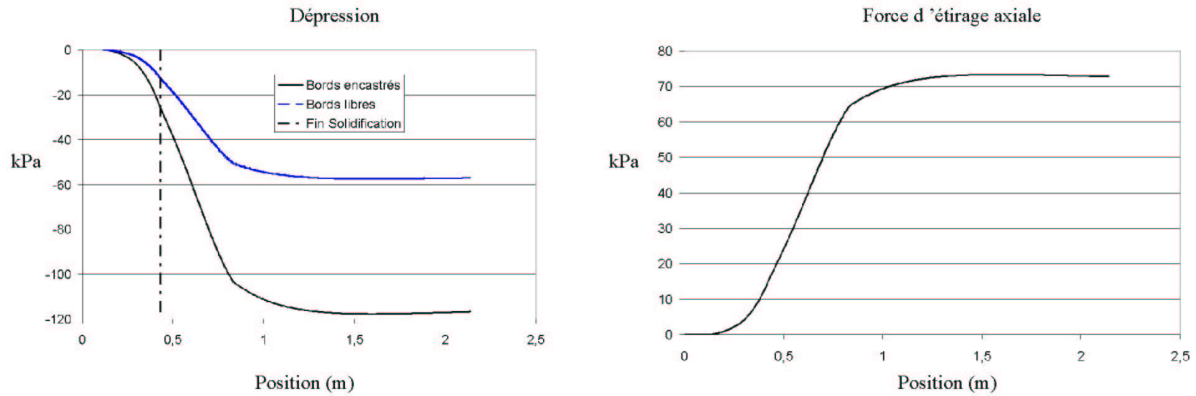


Figure 5.11 : dépression nécessaire pour maintenir le contact :  $u(Re)=0$  – Force d'étirage axiale correspondant à la condition aux limites axiales bords encastrés

#### 5.4 Prise en compte de la perte de contact et des frottements

Les forces de frottement sont prises en compte par une loi de Coulomb (5.38) de la même façon que pour le modèle élastique. La force axiale comprend également la force d'étirage initiale nécessaire pour étirer le tube entre la filière et la chambre de calibrage qui a été mesurée à environ 10N.

$$\begin{aligned}
 P_{\text{conformateur}} &> \sigma_{rr}(Re) \\
 \Rightarrow \Delta F_{\text{frottement}} &= (P_{\text{conformateur}} - \sigma_{rr}(Re)) \\
 &\quad * \text{Coefficient frottement} (= 0,3) * 2 * \pi * Re * \Delta L
 \end{aligned}
 \tag{5.38}$$

$\Delta L$  longueur de la tranche.

##### Formation des contraintes résiduelles

Pour le modèle viscoélastique, la transition n'est pas aussi distincte entre les deux conditions aux limites. Après la perte de contact entre le tube et la chambre de calibrage, les contraintes se relaxent et il est toujours nécessaire d'appliquer un « incrément de dépression » afin de garantir la condition  $\sigma_{rr}(Re) = P_{\text{conformateur}}$ . La dépression induit donc des contraintes dans toute l'épaisseur du tube après la perte de contact. Seulement la relaxation étant plus faible dans les couches extérieures déjà refroidies, ce phénomène entraîne au final une concentration des contraintes dans les couches extérieures.

Cette répartition est mise en évidence Figure 5.12 et Figure 5.13. Pour le modèle élastique, les contraintes sont identiques au refroidissement libre dans les couches solidifiées après la perte de contact. Pour le modèle viscoélastique les contraintes se concentrent dans les couches extérieures. Afin de comparer les deux modèles, nous avons utilisé un module de 100MPa qui permet d'avoir une évolution de  $\sigma_{rr}(Re)$  similaire pour les deux modèles (Figure 5.11, la dépression nécessaire pour maintenir le contact était 4 fois plus élevée pour le modèle élastique vitreux :  $E = 410\text{MPa} \rightarrow 100\text{MPa}$ ).

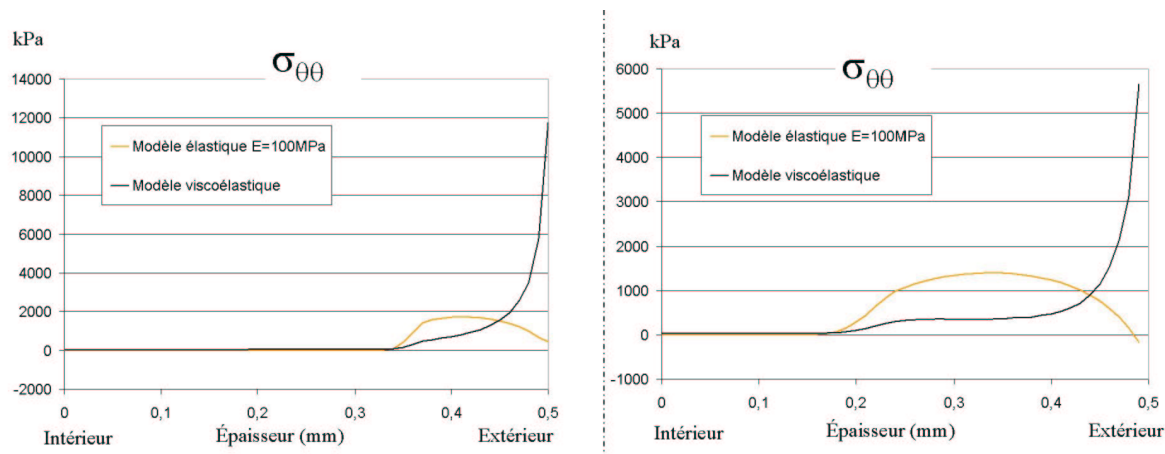


Figure 5.12 : répartition dans l'épaisseur des contraintes dues à la dépression (dépression non relâchée) au début du refroidissement (avant et après la perte de contact)

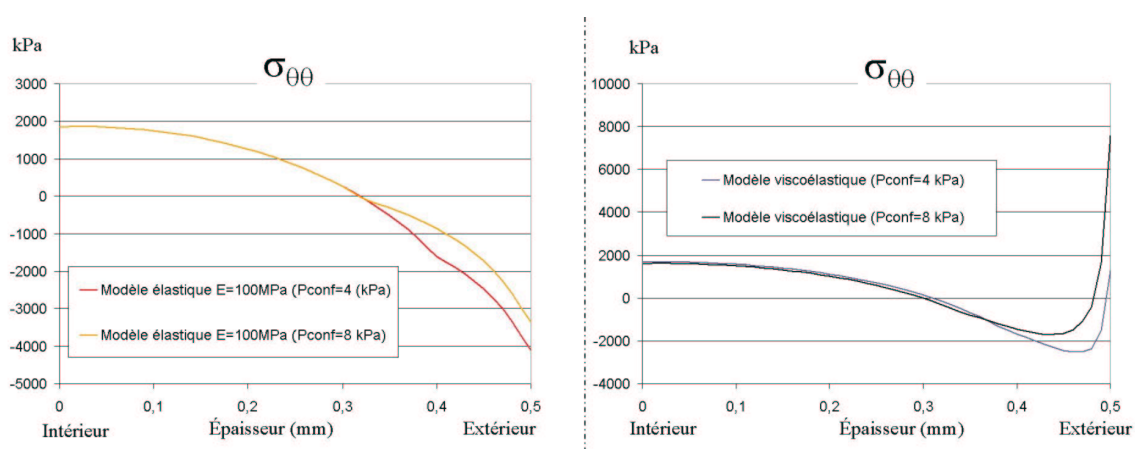


Figure 5.13 : répartition dans l'épaisseur des contraintes dues à la dépression (dépression non relâchée) à la fin du refroidissement. Comparaison entre les modèles élastiques et viscoélastiques

La Figure 5.14 montre la prise en compte des forces de frottement entraîne la formation de contraintes de traction très élevées dans les couches extérieures. Les forces de frottement induisent un retournement du profil des contraintes résiduelles  $\sigma_{\theta\theta}$  et  $\sigma_{zz}$  permettant de trouver l'ouverture du tube. Ce niveau de contrainte dans les couches extérieures sort des hypothèses de la loi de comportement utilisée. Mais nous constatons également Figure 5.14 qu'actuellement le modèle surévalue les forces de frottement par rapport aux mesures. Cet écart est dû à la prise en compte du frottement pour des dépressions inférieures à 100 kPa, contrairement aux résultats expérimentaux.

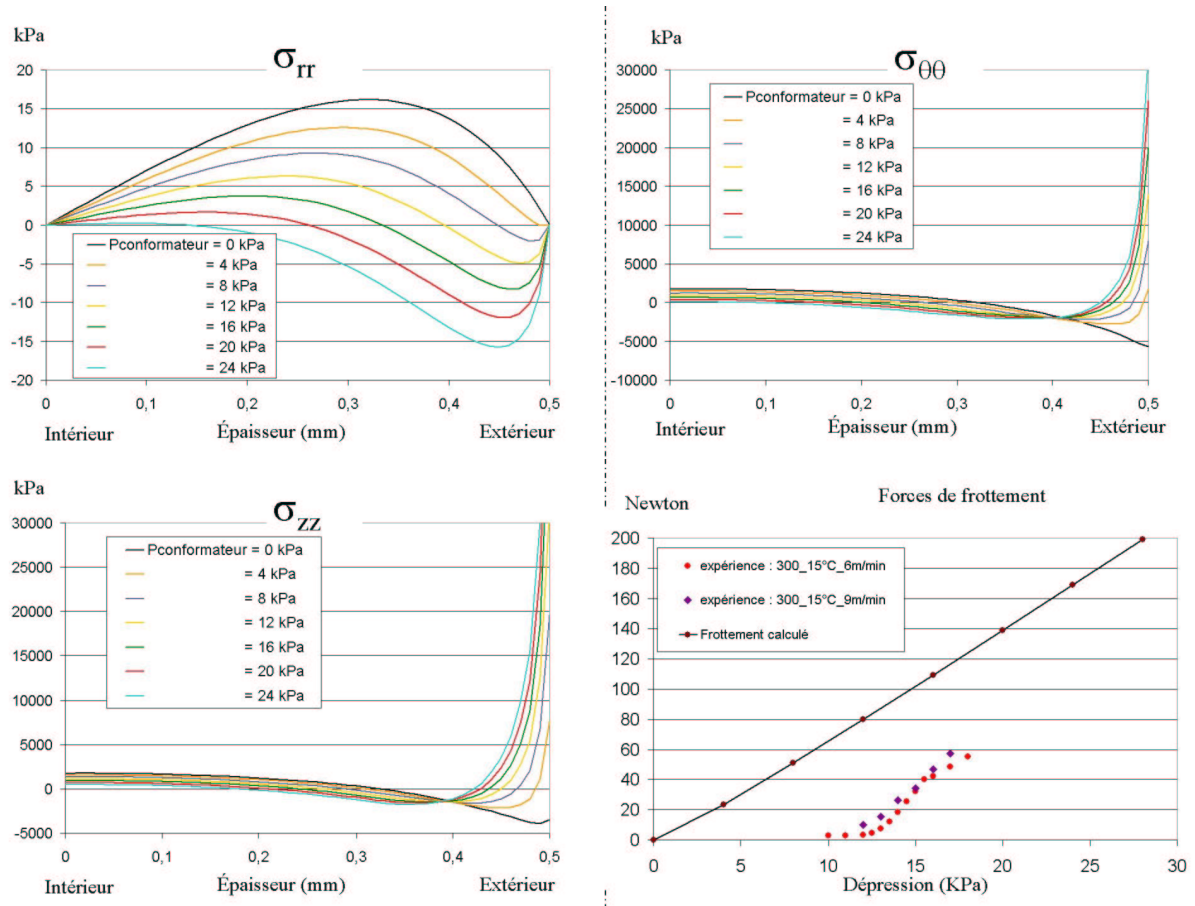


Figure 5.14 : profils de contraintes (dépression relâchée) et forces de frottement en fonction de la dépression

#### 5.4.1 Modification de la loi de frottement

Les frottements mesurés expérimentalement ne correspondent pas à l'évolution obtenue par le modèle (Figure 5.14) : pour les dépressions inférieures à 8 kPa les forces de frottement mesurées sont quasiment nulles. Afin de mieux coller au procédé, nous ne prendrons en compte les frottements que si la dépression dans le conformateur est supérieure à 8kPa ( $P_{\text{conformateur}} > 8\text{kPa} (=P_{\text{frottement-limite}})$ ) alors l'incrément de force de frottement sera fonction de  $P_{\text{conformateur}} - P_{\text{frottement-limite}}$  (5.39).

$$\begin{aligned}
 P_{\text{conformateur}} < P_{\text{frottement-limite}} = 8\text{kPa} &\Rightarrow F_{\text{frottement}} = \Delta F_{\text{frottement}} = 0 \\
 (P_{\text{conformateur}} - P_{\text{frottement-limite}}) > \sigma_{rr}(Re) & \\
 \Rightarrow \Delta F_{\text{frottement}} = ((P_{\text{conformateur}} - P_{\text{frottement-limite}}) - \sigma_{rr}(Re)) & \\
 * \text{Coefficient frottement} * 2 * \pi * Re * \Delta L &
 \end{aligned}
 \tag{5.39}$$

Cette modification empirique permet d'obtenir par le calcul une évolution des forces de frottement proche des mesures (Figure 5.15).

Sur la Figure 5.15 l'influence de la dépression et des forces de frottement est localisée dans le quart extérieur du tube : la dépression fige des contraintes de traction dans les couches extérieures. Le profil de contrainte du reste de l'épaisseur est indépendant de la dépression et des forces de frottement. Ces observations sont en accord avec les premiers résultats obtenus pour les tubes multicouches.

Les contraintes axiales permettent de retrouver le défaut dit de tulipe se produisant lors du passage en étuve. Ce défaut sera dû aux contraintes résiduelles axiales qui tendent à évaser le tube et à l'orientation figée dans les couches extérieure due aux importantes déformations (l'orientation sera partiellement relâchée lors du passage à l'étuve).

Le profil de contrainte résiduelle peut maintenant être traduit en degré d'angle d'ouverture lors de la découpe du tube (Figure 5.16). Les résultats obtenus par le modèle sont proches des ouvertures mesurées, surtout que comme nous allons le constater au paragraphe suivant, ce résultat est très sensible aux paramètres du procédé et aux caractéristiques du matériau.

L'influence du frottement est intéressante pour l'étude des contraintes résiduelles puisqu'elle permet l'inversion du profil des contraintes résiduelles, mais est très néfaste pour le produit extrudé. Dès que les forces de frottement apparaissent, elles introduisent des forces de traction voire même de l'orientation figée dans les couches extérieures. Ceci aura pour effet d'évaser le tube avec ou sans passage à l'étuve et de provoquer son rebut.

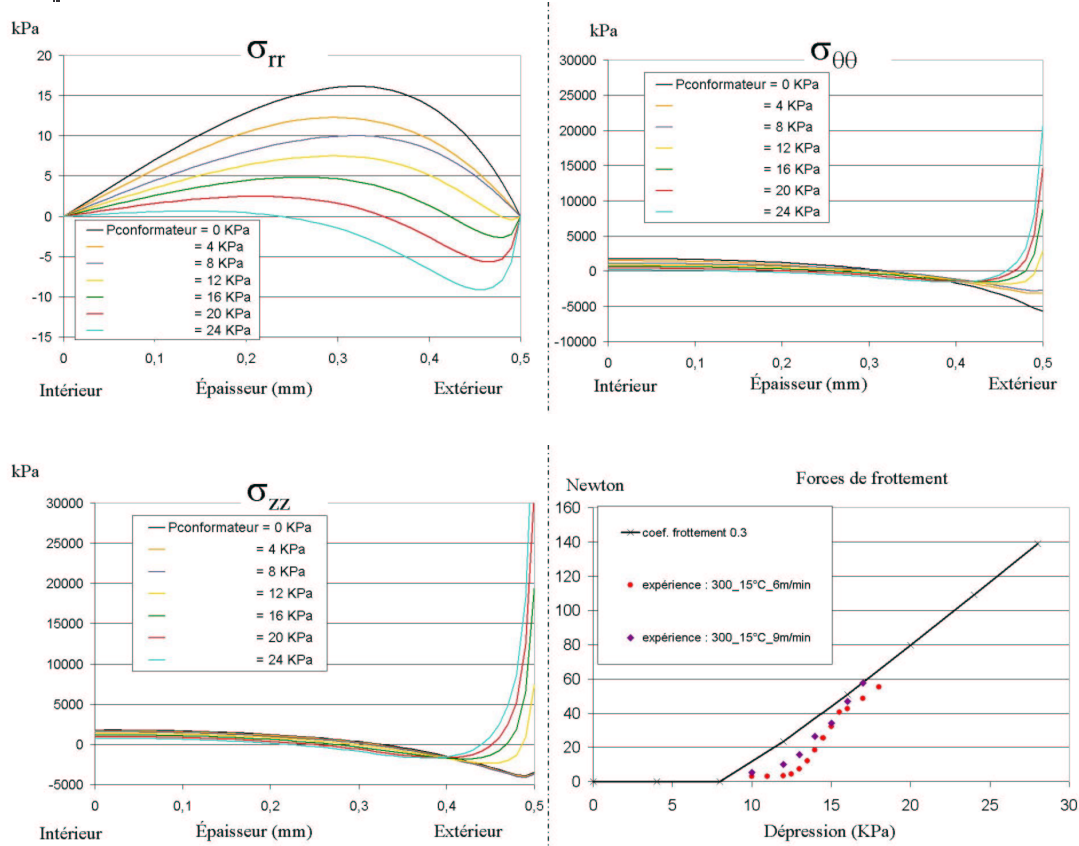


Figure 5.15 : évolution du profil des contraintes pour différentes dépressions (Profil après avoir relâché la dépression) et évolution des frottements en fonction de la pression dans le conformateur

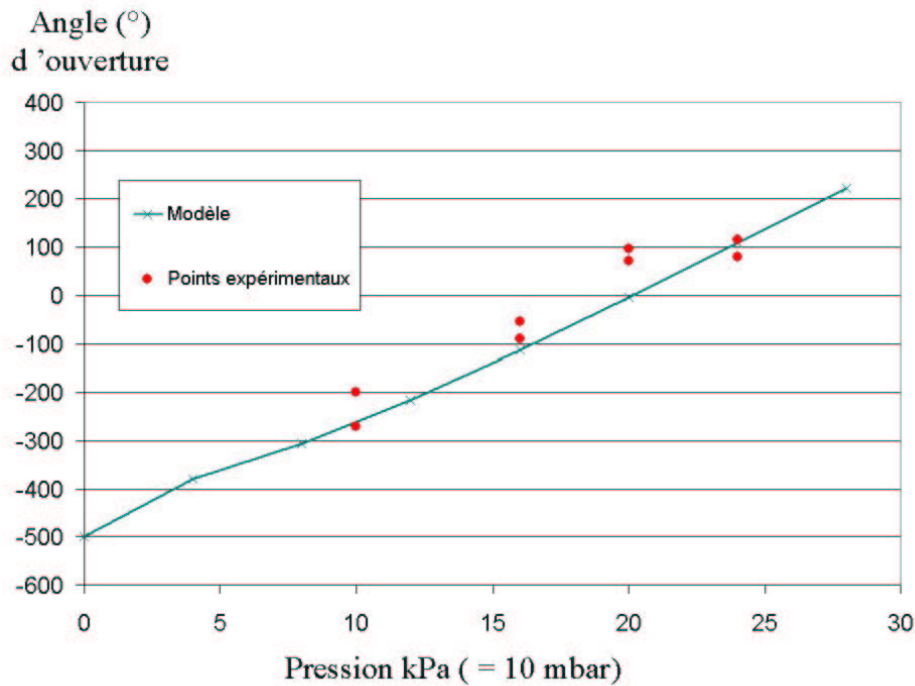


Figure 5.16 : ouverture du tube, comparaison modèle–expérience. Polyéthylène basse densité

### 5.5 Sensibilité de l'ouverture du tube.

Le procédé de calibrage des tubes est sensible aux divers paramètres du procédé. La dépression dans le conformateur est certes le paramètre principal, mais le procédé est aussi sensible par exemple à la température de l'eau de refroidissement, aux forces de frottement, aux propriétés de chaque lot de matière, ... . Les résultats du calcul complet que nous avons présenté Figure 5.16 sont aussi dépendants des caractéristiques du matériau qui sont forcément déterminées avec une certaine erreur expérimentale.

Pour ces deux raisons, il est intéressant d'étudier la sensibilité des résultats, angle d'ouverture en fonction de la pression dans le conformateur, en définissant arbitrairement les limites haute et basse de certains paramètres du procédé et/ou caractéristiques du matériau.

Le résultat final est la somme de deux types de contrainte résiduelle ayant un effet opposé : les contraintes dues à la contraction du matériau qui produisent la fermeture du tube ( $P_{\text{conf}}=0$ ) et les contraintes  $\sigma_{\theta\theta}$  de traction dues à la dépression et aux forces axiales qui produisent son ouverture. La sensibilité globale des paramètres dépendra de la sensibilité de chacun de ces types de contraintes résiduelles.

			Référence	
Refroidissement	Température de l'eau de refroidissement	$T_{\text{ext}} = 12^{\circ}\text{C}$	$T_{\text{ext}} = 16^{\circ}\text{C}$	$T_{\text{ext}} = 20^{\circ}\text{C}$



	Coefficient d'échange H (W.(m <sup>2</sup> .K) <sup>-1</sup> )	H=900 (W.(m <sup>2</sup> .K) <sup>-1</sup> )	H=1000 (W.(m <sup>2</sup> .K) <sup>-1</sup> )	H=1100 (W.(m <sup>2</sup> .K) <sup>-1</sup> )
Caractéristiques du matériau	E (t)	$E(t) = 0.9 E_{ref}$	$E_{ref}$	$E(t) = 1.1 E_{ref}$
	Taux de cristallinité	$\chi_c = 0.9 \chi_{c,ref}$	$\chi_{c,ref}$	$\chi_c = 1.1 \chi_{c,ref}$
Forces axiales	Force d'étirage dans l'air	0 N	10 N	30 N
	Coefficient de frottement avec valeur seuil = 8kPa	0.2	0.3	0.4

Tableau 2 : Limite haute et basse des paramètres/caractéristiques de l'étude de sensibilité

### 5.5.1 Influence du refroidissement :

La Figure 5.17 montre l'influence des conditions de refroidissement sur l'ouverture du tube tandis que les figures 5.18 à 5.20 décrivent l'influence sur les profils des contraintes après relâchement de la dépression.

La diminution de température de l'eau de refroidissement augmente la variation du volume spécifique entre la solidification et la fin du refroidissement, ce qui a pour effet de fermer davantage le tube.

La température de l'eau de refroidissement et le coefficient d'échange thermique, H, ont une influence sur la vitesse de refroidissement des couches extérieures. En augmentant le refroidissement des couches extérieures, on augmente la fermeture du tube. On fixe moins de contraintes de traction dans les couches extérieures car celles-ci étant plus froides, elles sont plus rigides, donc la déformation axiale permettant d'équilibrer les forces axiales est plus faible.

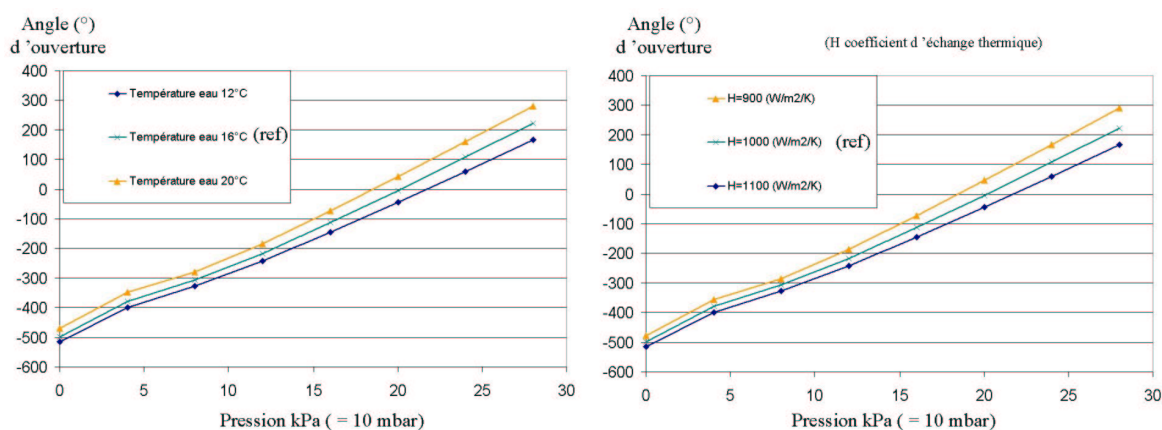


Figure 5.17 : influence du refroidissement : température de l'eau et coefficient d'échange thermique

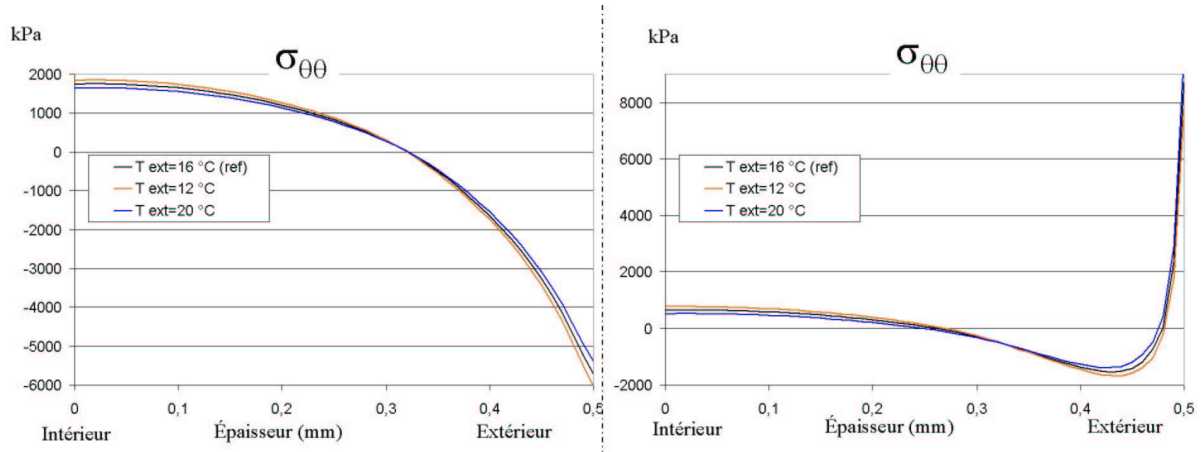


Figure 5.18 : influence du refroidissement : Température de l'eau. Profils de contraintes résiduelles

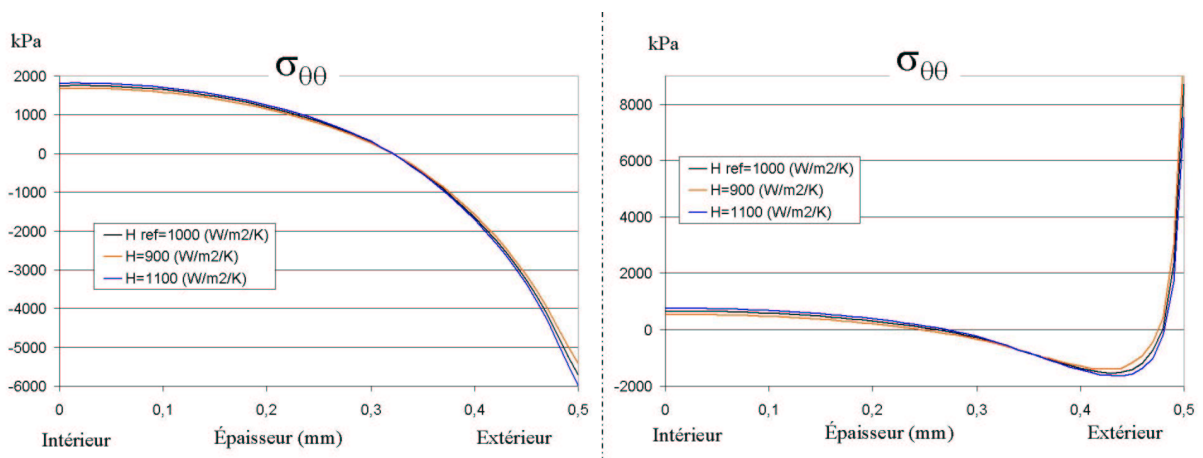


Figure 5.19 : influence du refroidissement : coefficient d'échange thermique H - Profils de contraintes résiduelles

### 5.5.2 Influence des caractéristiques du matériau ( $E(t)$ ) :

Si la dépression est nulle, la valeur de  $E(0)$  n'a pas d'influence sur l'angle d'ouverture après découpage. En effet, si la dépression est nulle, le profil des contraintes est proportionnel (cf. Figure 5.21) à  $E(0)$  et l'ouverture est inversement proportionnel à  $E(0)$  (cf. **Erreur ! Source du renvoi introuvable.**). Le résultat final sur l'ouverture est donc équivalent.

A des dépressions non nulles, l'augmentation de  $E(0)$  diminue l'angle d'ouverture. Cette influence est encore plus marquée lorsqu'il y a des frottements ( $P_{\text{conf}} > 8\text{kPa}$ ). En effet, si le matériau est plus rigide, la perte de contact se produit plus tôt mais surtout les déformations axiales nécessaires pour équilibrer les forces axiales sont plus faibles.

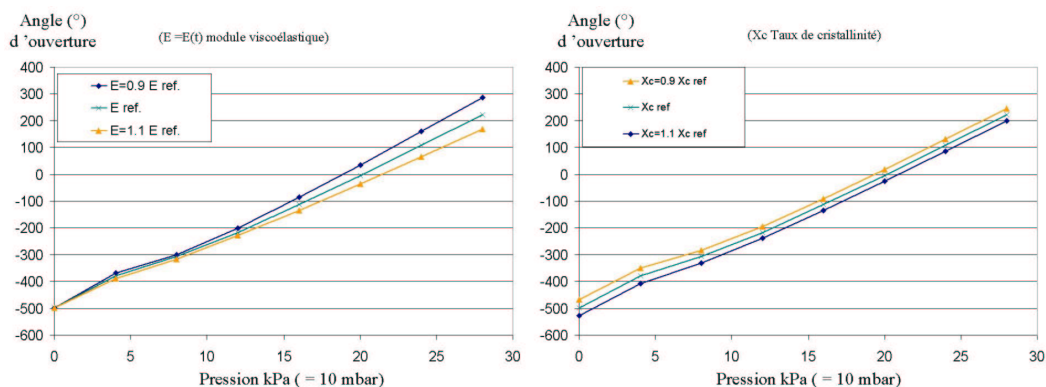


Figure 5.20 : influence du module  $E(0)$  et du taux de cristallinité

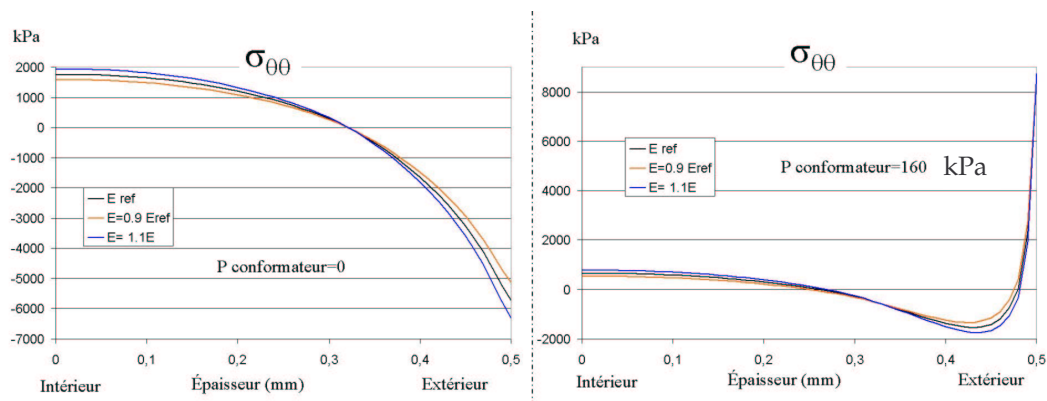


Figure 5.21 : influence du module de  $E(0)$  sur le profil des contraintes résiduelles pour 2 dépressions

### 5.5.3 Influence des forces axiales

La sensibilité à la force d'étirage initiale dépend de la dépression dans le conformateur (Figure 5.22). Si la dépression est nulle, l'ouverture est indépendante de ce paramètre puisque les contraintes  $\sigma_{\theta\theta}$  ne dépendent pas des conditions aux limites axiales. Cette remarque serait mise en défaut si nous considérions l'influence des contraintes  $\sigma_{zz}$  dans le calcul de l'ouverture des tubes.

L'ouverture des tubes est très sensible au coefficient de frottement entre le tube et la chambre de calibrage. Or la valeur de 0,3 du cas de référence n'a pas été mesurée mais a été choisie pour représenter au mieux l'évolution des forces de frottement mesurées (cf. paragraphe 5.4.1). L'évolution des frottements ne peut être qu'approchée et est certainement une source importante d'erreur.

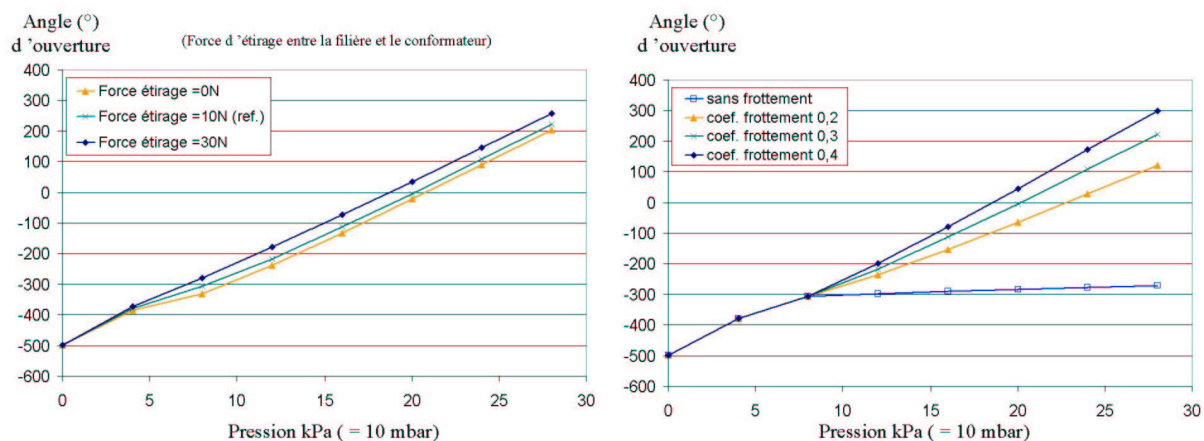


Figure 5.22 : influence de la force d'étirage initiale et du coefficient de frottement entre le tube et la chambre de calibrage

En combinant les paramètres/caractéristiques mini-maxi, nous obtenons l'intervalle d'ouverture de la Figure 5.23. L'intervalle des solutions est important. Or l'intervalle des données que nous avons choisi d'étudier est représentatif des variations possibles ou de l'erreur de mesure et nous n'avons pas considéré l'ensemble des paramètres pouvant avoir une influence (vitesse d'extrusion, épaisseurs, paramètres de la filière, de l'extrudeuse,...). La modélisation et le procédé réel de calibrage des tubes sont très sensibles aux paramètres du procédé et aux caractéristiques du matériau.

Nous remarquons sur la Figure 5.23 que les points expérimentaux sont au milieu donc la modélisation permet de borner la réalité.

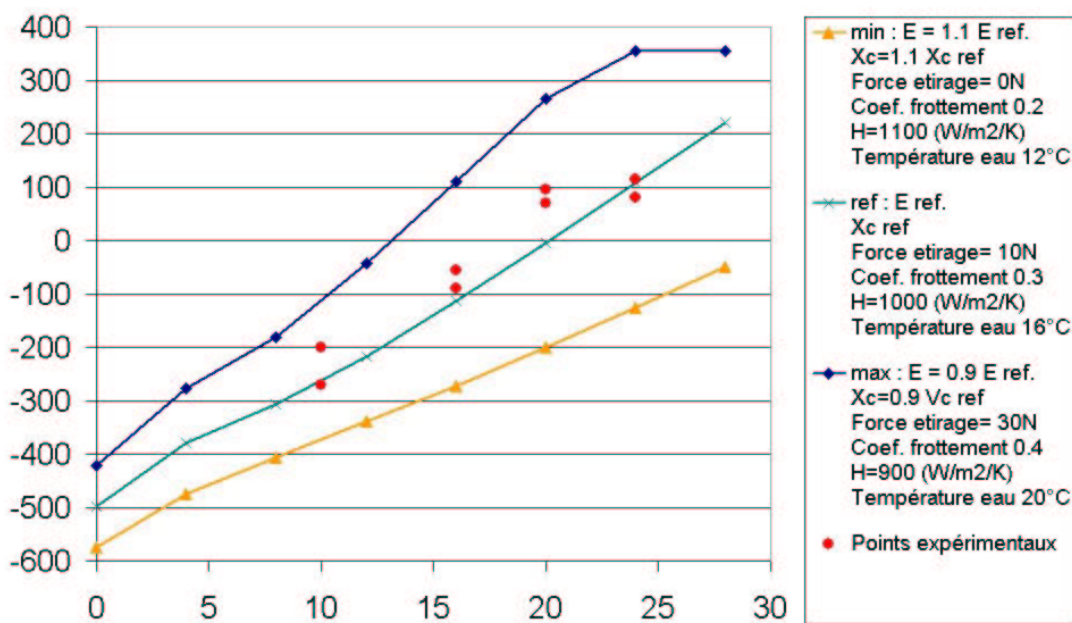


Figure 5.23 : combinaisons des cas extrêmes

## 5.6 Formation des contraintes pour un polyéthylène haute densité

Le polyéthylène haute densité a un module de relaxation environ 4 fois plus élevé et des temps de relaxation 10 fois plus grands que le polyéthylène basse densité. Le taux de cristallinité est plus élevé pour les polyéthylènes haute densité, ce qui provoque une variation du volume spécifique plus importante lors de la cristallisation.

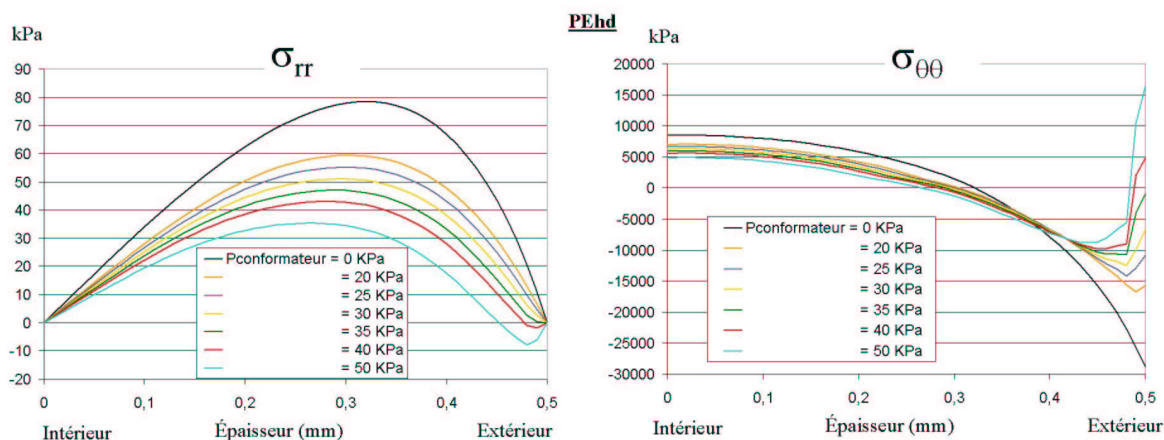
Les caractéristiques du matériaux sont celles décrites au 3<sup>ème</sup> chapitre et nous avons repris les paramètres procédés utilisés pour le polyéthylène basse densité. Le coefficient de frottement de la 3<sup>ème</sup> phase (passage dans la chambre de calibrage) est aussi égal à 0,3 mais le seuil de début de frottement est égal à 18 kPa comme mesuré expérimentalement.

Les profils des contraintes obtenus pour différentes dépressions sont reportés Figure 5.24 avec les forces de frottements correspondantes. Le coefficient de frottement de 0,3 et le seuil de 18kPa représente correctement les résultats expérimentaux. La dépression et les forces de frottements n'affectent que les contraintes situées dans les couches extérieures. Les variations des contraintes  $\sigma_{\theta\theta}$  et  $\sigma_{zz}$  sont plus brutales près de la surface extérieure que dans le cas du polyéthylène basse densité.

Les angles d'ouverture correspondants à ces profils de contraintes sont représentés Figure 5.25. Le modèle surestime la fermeture des tubes d'environ 100° par rapport aux résultats expérimentaux. La courbe représentant l'ouverture maxi correspond aux résultats que nous aurions pour la courbe supérieur de l'étude de sensibilité effectuée pour le polyéthylène basse densité. La fermeture est encore légèrement surestimée pour les dépressions élevées. Cependant l'erreur de prédiction du modèle reste convenable par rapport à l'influence des caractéristiques du matériau et à la précision avec laquelle nous pouvons les représenter.

Nous avons également reporté sur la Figure 5.25 les angles d'ouverture si il n'y avait pas de frottement entre le tube et la chambre de calibrage. Contrairement au polyéthylène basse densité, les forces de frottement ont peu d'influence sur l'angle d'ouverture du polyéthylène haute densité.

Les différences de propriétés entre les polyéthylènes basse et haute densité modifie le rapport entre les mécanismes de formations des contraintes résiduelles. La rigidité du polyéthylène haute densité diminue l'influence des conditions aux limites mécaniques qui s'était montrées de première importance dans le cas du polyéthylène basse densité. Le modèle avec les paramètre de l'ouverture maxi prédirait l'ouverture pour une différence de pression de l'ordre de 110 kPa.



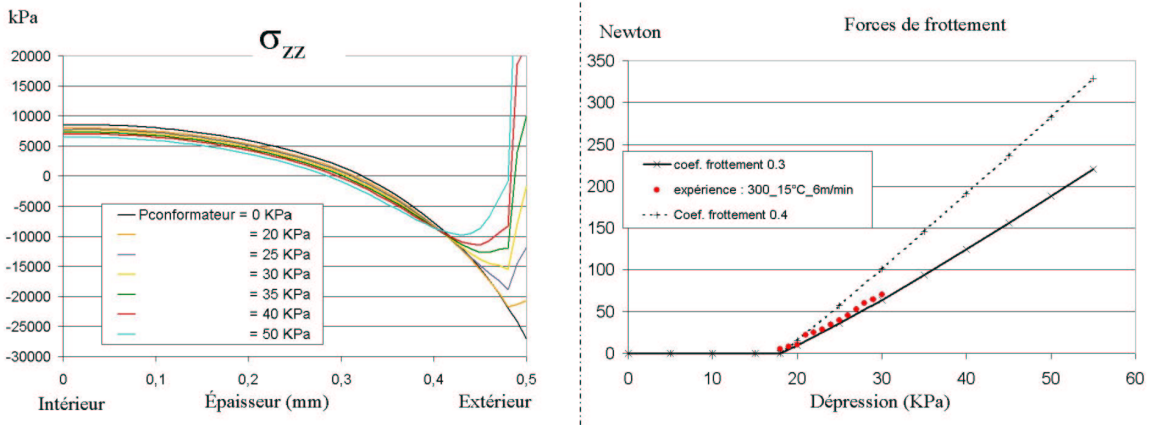


Figure 5.24 : profils de contraintes et forces de frottement en fonction de la dépression pour un polyéthylène haute densité

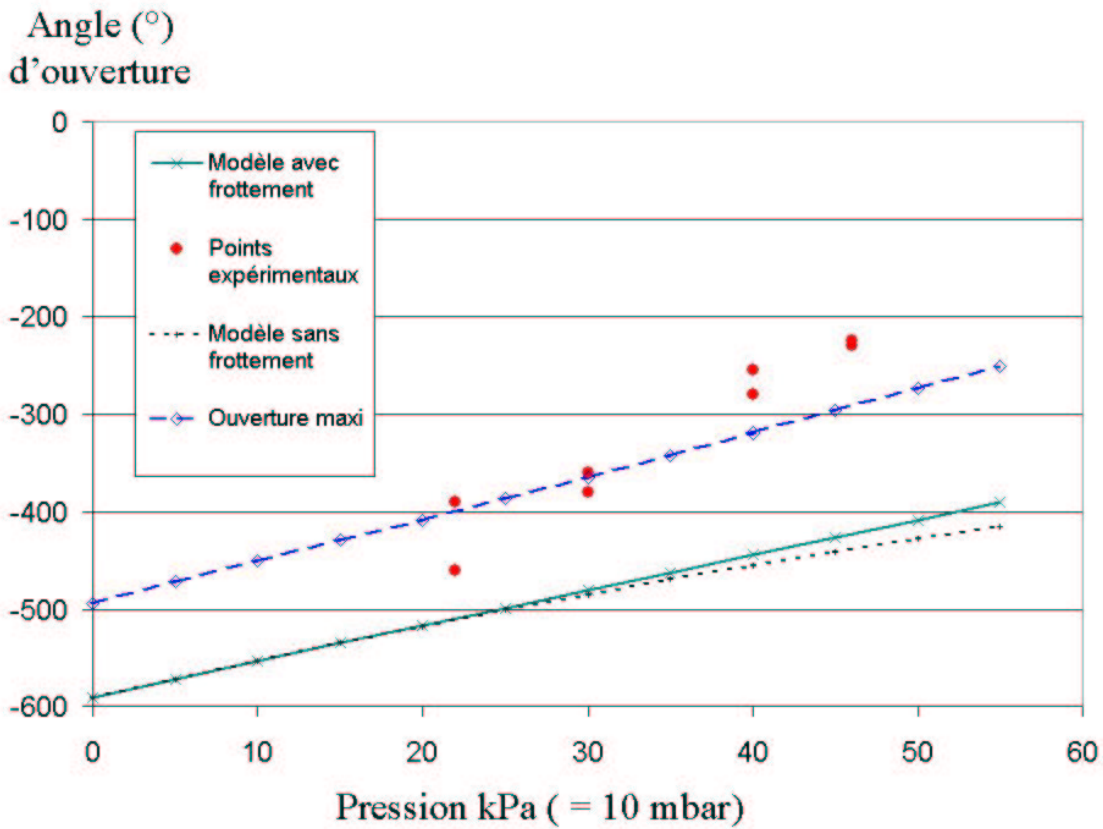


Figure 5.25 : ouverture du tube, comparaison modèle – expérience. Polyéthylène haute densité. (Ouverture maxi :  $E=0.9 E_{Pehd}$ ,  $\chi_c=0.9\chi_{c Pehd}$ , Force étirage =30N ; coefficient frottement =0.4,  $H =900(W/m^2K)$ , température eau refroidissement = 20°C)

## 6 Conclusion

---

Nous avons développé dans ce dernier chapitre un modèle incrémental permettant de prendre en compte la viscoélasticité des polymères. Ce modèle est basé sur les théories de la viscoélasticité linéaire et s'applique aux cas où le matériau est incompressible.

L'effet de la température sur les temps de relaxation est obtenu en transformant le couple temps/température en un temps virtuel défini pour une température de référence. Cette méthode permet de pouvoir considérer le problème comme isotherme pour les caractéristiques mécaniques.

Le calcul est réalisé de façon incrémental dans le temps afin de pouvoir faire évoluer les conditions aux limites que perçoit le tube lors du calibrage. Cette méthode est nécessaire pour prendre en compte l'évolution des frottements dans la chambre de calibrage.

L'utilisation de loi de comportement viscoélastique pour le matériau à l'état fluide permet de quantifier le transfert des contraintes aux premières couches cristallisées. Une relaxation rapide des contraintes dans les couches fluides induit des efforts importants dans les couches extérieures pouvant provoquer une forte orientation de ces dernières. Le modèle permet de valider les interprétations que nous avons faites pour les polyéthylènes basse densité linéaire. Les résultats sur la zone de transition ne sont cependant qu'indicatif à cause des approximations de la loi de comportement au moment de la solidification et des grandes déformations que subit le matériau dans la phase d'étirage.

Les mécanismes de formation des contraintes résiduelles restent identiques à ceux du modèle élastique décrit au 4<sup>ème</sup> chapitre. Le modèle viscoélastique permet par contre de prendre en compte les caractéristiques réelles du matériau en particulier la variation du volume spécifique du à la cristallisation et les modules du matériau. Le modèle développé a l'originalité par rapport à la littérature d'être basé sur le taux de cristallinité du matériau pour décrire l'évolution des caractéristiques du matériau lors du refroidissement. Le taux de cristallinité peut être déterminé à partir des résultats expérimentaux ou de loi cinétique de cristallisation de type Ozawa. Le modèle ne prends cependant pas en compte la compressibilité du matériau qui peut avoir un rôle significatif étant donné l'influence des déformations axiales sur les contraintes orthoradiales.

Une étude de sensibilité des paramètres du procédé et des caractéristiques du matériau confirme la variabilité du procédé d'où certaines difficultés de réglage rencontrés en production lors de changement de matière. Il est donc nécessaire pour maîtriser le procédé de calibrage de contrôler et de suivre précisément les paramètres du procédé.

Finalement le calcul permet de retrouver les résultats expérimentaux pour deux matériaux ayant des caractéristiques relativement différentes.

(Bellet et al., 1998)

M. Bellet, M. Rappaz et M. Deville, *traité des matériaux. 10. Modélisation numérique en science et génie des matériaux*, (1998).

(Ferry, 1970)

J. D. Ferry, *Viscoelastic properties of polymers*, Wiley - interscience, New York (1970).

(Huet, 1965)

C. Huet, "Etude par une méthode d'impédance du comportement viscoélastique des matériaux hydrocarbonés", thèse de Doctorat, Faculté des sciences de l'université de Paris, (1965).

(Leaderman, 1943)

Leaderman, "Elastic and Creep Properties of Filamentous Materials", *Textile Foundation*, pp. 175 (1943).

(Lee et T.G., 1965)

E. H. Lee et R. T.G., "On the generation of residual stresses in thermoviscoelastic bodies", *Transaction of the ASME*, pp. 874-880 (1965).

(Morland et Lee, 1960)

L. W. Morland et E. H. Lee, "Stress analysis for linear viscoelastic Materials with temperature variation", *Transactions of the society of rheology*, vol. 4, pp. 233-263 (1960).

(Stanisic et Mckinley, 1959)

M. M. Stanisic et R. M. Mckinley, "A note on thermal stresses in hollow cylinder", *Ingenieur Archiv* (1959).





## Conclusions Finales

Notre objectif dans cette étude aura été de se rapprocher progressivement du comportement et des caractéristiques des polyéthylènes afin de décrire les mécanismes de formation des contraintes résiduelles lors du calibrage des tubes.

Le modèle le plus simple, basé sur une loi de comportement liquide - solide élastique, a mis en évidence deux mécanismes de formation des contraintes résiduelles. Le premier est relié aux différences de température lors du refroidissement qui provoquent des différences de retrait dans l'épaisseur. Ceci met les couches extérieures du tube en compression et les couches intérieure en traction. Ce profil de contrainte fait se refermer le tube lorsqu'on le découpe suivant la génératrice

Le second mécanisme est relié aux efforts extérieurs qui s'appliquent sur le tube. La dépression dans le calibre maintient le tube contre la chambre de calibrage et l'empêche de se rétracter lors du refroidissement ce qui induit des contraintes de traction dans les couches solidifiées. En fait la dépression bloque le retrait thermique qui était à l'origine du premier mécanisme. Si la dépression est suffisante pour maintenir le tube jusqu'à la fin de la solidification le profil de contraintes résiduelles est nul. Les profils de contraintes intermédiaires sont obtenus par une évolution des conditions aux limites lors de la solidification, la dépression n'étant en faite pas suffisante pour maintenir le contact pendant toute la solidification.

Le modèle élastique a également mis en avant l'influence des forces axiales et en particulier les forces de frottement entre le tube et la chambre de calibrage. En étirant le tube, elles tendent à diminuer son diamètre. La dépression bloque cette rétraction en plus du retrait thermique. Ceci accentue les contraintes de traction dans les couches extérieures jusqu'à inverser le profil des contraintes résiduelles. Le tube peut alors s'ouvrir lorsqu'on le découpe suivant la génératrice.

Le modèle élastique est suffisant pour expliquer l'influence de la dépression sur le profil des contraintes résiduelles. Cependant les propriétés des matériaux que ce modèle peut prendre en compte restent assez éloignées de celui des polyéthylènes pendant le refroidissement.

Le modèle viscoélastique que nous avons développé est original par rapport à la bibliographie dans le sens où la variation du volume spécifique et les propriétés mécanique lors de la transition fluide – solide sont directement basés sur l'évolution du taux de cristallinité, paramètre du premier ordre sur le comportement physique du matériau.

Le taux de cristallinité peut être obtenu dans le modèle soit par le modèle de cristallisation d'Ozawa soit en reprenant directement les résultats obtenus par DSC. Celui-ci est alors utilisé pour déterminer l'évolution du volume spécifique et permet de tenir de l'importante rétraction du matériau qui se produit lors de la cristallisation. L'influence du retrait du à la cristallisation doit cependant être nuancé car il se produit à des températures pour lesquelles la relaxation des contraintes n'est pas négligeable. Pour des matériaux semi-cristallins tel que les polyéthylènes, il est donc nécessaire d'utiliser un modèle viscoélastique pour pouvoir prendre en compte le retrait lors de la cristallisation.

Afin de pouvoir appliquer les forces d'étirage et de frottement dès le début de la solidification, nous avons montré qu'il était nécessaire de tenir compte des contraintes dans les couches non solidifiées afin de charger progressivement les couches solidifiées. Le comportement viscoélastique des matériaux est pris en compte dans les états fluides et

solide par des lois de Maxwell multimode. La répartition des contraintes prédit dans les couches fluides et solides par le modèle viscoélastique permet d'avoir une première information sur l'importance des propriétés mécaniques du matériau à l'état fluide. Les calculs permettent d'expliquer en partie l'orientation mesurée dans les couches extérieures lors de l'étude des polyéthylènes basse densité linéaire.

Le modèle viscoélastique apporte peu de renseignements supplémentaires sur les mécanismes de formation des contraintes résiduelles finales mais il permet de les quantifier en utilisant des caractéristiques matériaux proches de celles des polyéthylènes lors du refroidissement.

Une étude numérique confirme que le procédé de calibrage est relativement sensible à tous les paramètres du procédé et caractéristiques du matériau même si la dépression reste le paramètre de premier ordre.

Finalement, les comparaisons entre les calculs et l'expérience montrent que nous sommes parvenus à borner la réalité en expliquant l'origine des contraintes résiduelles qui se forment lors du calibrage des tubes.