



THESE

présentée à

l'Université Lille 1 Sciences et Technologies

pour obtenir le titre de

Docteur de l'Université

Discipline : Mécanique, Energétique, Matériaux

soutenue par

Georges AYOUB

le 14 octobre 2010

**Comportement en grandes déformations et fatigue des polymères :
modélisation constitutive et prédiction de la durée de vie en fatigue**

**Large deformation behavior and fatigue of polymers:
constitutive modeling and fatigue life prediction**

– JURY –

R. ESTEVEZ	Professeur	Université de Grenoble	Président
S. AHZI	Professeur	Université de Strasbourg	Rapporteur
A. BOUKAMEL	Professeur	LMA de Marseille	Rapporteur
F. MERAGHNI	Professeur	ENSAM de Metz	Examineur
N. SAINTIER	Maître de conférences	ENSAM Bordeaux	Examineur
F. DEMILLY	Ingénieur de recherche	Valdunes	Invité
P. CHARRIER	Ingénieur de recherche	Trelleborg group	Invité
J.M. GLOAGUEN	Professeur	Université de Lille 1	Examineur
F. ZAIRI	Maître de conférences	Université de Lille 1	Co-directeur de thèse
M. NAIT ABDELAZIZ	Professeur	Université de Lille 1	Directeur de thèse

LABORATOIRE de MECANIQUE de LILLE

U.M.R C.N.R.S 8107

Boulevard Paul Langevin, Cité Scientifique, 59655 VILLENEUVE D'ASCQ CEDEX

Ce mémoire est dédié à tous ceux qui m'ont encouragé ...

Remerciements

Remerciements

Ce travail de thèse a été réalisé au Laboratoire de Mécanique de Lille, sous la direction de Moussa Naït-Abdelaziz et Fahmi Zaïri avec un financement du ministère de l'enseignement supérieure et de la recherche.

Je remercie vivement Moussa Naït-Abdelaziz, de m'avoir accueilli au sein de son équipe depuis ma deuxième année de mon parcours d'ingénieur à Polytech'Lille, soit six ans d'étroite collaboration. Je remercie également vivement Fahmi Zaïri de m'avoir suivi de près au cours de ma thèse. Je les remercie pour les nombreuses et longues séances de discussion et débat scientifique pour mener à bien cette thèse. Je tiens à souligner ma gratitude envers Moussa et Fahmi, ils m'ont appris à être un chercheur (qui trouve !). J'ai beaucoup apprécié le travail avec eux autant d'un point de vu professionnel qu'humain.

Je tiens à souligner l'aide précieuse apporté par Jean-Michel Gloaguen à travers les discussions que nous avons pu avoir ensemble sur les matériaux et leurs méthodes d'élaboration, ce qui m'a permis d'approfondir mes connaissances dans la microstructure des matériaux polymères. Je le remercie et je remercie également l'équipe de Jean-Marc Lefebvre du Laboratoire Unité Matériaux et Transformation qui ont, à travers une collaboration entre les deux équipes, permis d'enrichir ma thèse par des essais de caractérisation des matériaux utilisés.

Je remercie les collègues que j'ai pu côtoyer....

Je tiens à exprimer mes remerciements aux membres du jury, qui ont accepté d'évaluer mon travail de thèse. Je remercie Monsieur Rafael Estevez de m'avoir fait l'honneur de présider mon jury de thèse. Je remercie Messieurs Saïd Ahzi et Adnane Boukamel d'avoir accepté de rapporter sur mon mémoire de thèse. Enfin, je remercie Messieurs Fodil Meraghni et Nicolas Saintier d'avoir examiner mon travail. Je les remercie pour la lecture soigneuse et l'évaluation de ma thèse, pour leurs remarques et les discussions menées lors de ma soutenance de thèse.

Je souhaite remercier Monsieur Pierre Charrier de Trelleborg group d'avoir fourni les éprouvettes de fatigue en élastomères, et pour ses conseils précieux apporter au cours de nos entretiens téléphoniques. Je le remercie aussi d'avoir accepté de faire partie de mon jury de thèse en tant qu'invité et d'avoir examiné mon rapport. Je remercie également Monsieur François Demilly de la société Valdunes, pour avoir accepté de participer à ma soutenance de thèse en tant que membre invité du jury.

Enfin, je remercie toute ma famille pour avoir toujours été présent à mes cotés durant toutes ces années, plus particulièrement mon père et ma mère, Max, Nicole, Mireille et Jackie. Je les remercie pour leur très précieux soutien et encouragement.

Tables des matières

Introduction générale	1
Chapitre 1. Structure, comportement et fatigue des polymères	5
1. Généralités	5
1.1. Petit historique.....	5
1.2. Qu'est-ce qu'un polymère ?	7
1.3. Comportement mécanique des polymères	10
1.3.1. Dépendance à la température	11
1.3.2. Dépendance au temps.....	12
1.3.3. Loi de comportement en grandes déformations.....	14
1.3.4. Comportement sous chargements cycliques	18
1.3.4.1. Effet Payne	18
1.3.4.2. Comportement hystérétique	20
1.3.4.3. Effet Mullins.....	21
1.3.4.4. Adoucissement cyclique.....	24
2. Etat de l'art sur la modélisation du comportement	26
2.1. Déformation et contrainte en transformations finies.....	26
2.1.1. Cinématique.....	26
2.1.2. Description des déformations et des contraintes.....	29
2.1.2.1. Tenseurs des déformations	29
2.1.2.2. Tenseurs des contraintes.....	30
2.2. Classification des modèles de comportement	31
2.2.1. Elasto-plasticité en grandes déformations.....	33
2.2.2. Viscoélasticité en grandes déformations	35
2.2.3. Elasto-viscoplasticité en grandes déformations	36
2.2.4. Elasticité en grandes déformations.....	38
2.2.4.1. Modèles statistiques	39
2.2.4.2. Modèles phénoménologiques.....	42
2.2.5. Couplage des différentes théories	43
3. Etat de l'art sur la fatigue des élastomères.....	47
3.1. Classification des lois d'endommagement par fatigue	48
3.1.1. Mécanismes d'endommagement par fatigue.....	48
3.1.2. Lois d'endommagement par fatigue.....	49

Tables des matières

3.1.3.	Échelles d'étude de l'endommagement par fatigue	49
3.1.4.	Lois d'endommagement par fatigue	49
3.2.	Bases physiques des lois d'endommagement par fatigue	51
3.2.1.	Propagation de fissures	51
3.2.2.	Critère en déformation principale maximale	54
3.2.3.	Critère en contrainte principale maximale	55
3.2.4.	Critères énergétiques.....	56
3.2.4.1.	Densité d'énergie de déformation.....	56
3.2.4.2.	Densité d'énergie de fissuration.....	57
3.2.4.3.	Tenseur de contrainte d'Eshelby.....	59
3.3.	Lois de cumul de dommage	61

Chapitre 2. Modélisation du comportement en grandes déformations des polymères.....64

1.	Introduction.....	64
2.	Effet du taux de cristallinité sur le comportement mécanique du PE en grandes déformations	65
2.1.	Structure et propriétés physiques du PE	66
2.1.1.	Présentation des matériaux	66
2.1.2.	Analyse thermique	68
2.1.2.1.	Analyse par calorimétrie différentielle à balayage	68
2.1.2.2.	Analyse thermomécanique dynamique	71
2.1.3.	Caractérisation microstructurale	73
2.1.3.1.	Analyse par diffusion des rayons X au petit angle	73
2.1.3.2.	Analyse par microscopie à force atomique	75
2.2.	Réponse contrainte - déformation du PE	77
2.2.1.	Description des essais expérimentaux	77
2.2.2.	Résultats expérimentaux	78
2.2.2.1.	Effet du taux de cristallinité.....	78
2.2.2.2.	Effet de la vitesse de déformation.....	82
2.3.	Modélisation du comportement mécanique du PE	83
2.3.1.	Présentation du modèle hyperélastique - viscoplastique	84
2.3.1.1.	Résistance <i>A</i> : interaction intermoléculaire.....	85
2.3.1.2.	Résistance <i>B</i> : alignement des chaînes moléculaires	88
2.3.2.	Procédure d'identification des paramètres.....	91

Tables des matières

2.3.2.1.	Paramètres élastiques	91
2.3.2.2.	Paramètres plastiques.....	92
2.3.3.	Confrontation du modèle hyperélastique - viscoplastique aux résultats expérimentaux.....	98
2.3.4.	Amélioration des capacités du modèle hyperélastique - viscoplastique	101
2.4.	Remarques et conclusions partielles	103
3.	Vers une prédiction du comportement cyclique des polymères thermoplastiques	105
3.1.	Formulation du modèle	105
3.1.1.	Résistance B	106
3.1.2.	Résistance A	107
3.2.	Etude de sensibilité	110
3.3.	Description des essais expérimentaux	111
3.3.1.	Matériau et géométrie des éprouvettes	111
3.3.2.	Méthodes expérimentales.....	113
3.3.3.	Résultats expérimentaux	113
3.3.4.	Comparaison du modèle aux données expérimentales	116
3.4.	Remarques et conclusions partielles	128

Chapitre 3. Modélisation du comportement en fatigue des élastomères en utilisant une théorie d'altération du réseau macromoléculaire130

1.	Introduction.....	130
2.	Description des essais expérimentaux	131
2.1.	Matériaux et méthodes Modélisation.....	131
2.2.	Discussion sur le comportement mécanique du SBR sous chargement cyclique	133
3.	Modélisation	141
3.1.	Modèle viscoélastique en grandes déformations	142
3.1.1.	Branche A : résistance d'équilibre	142
3.1.2.	Branche B : résistance dépendant du temps	143
3.2.	Cinétique d'altération du réseau	144
3.3.	Identification du modèle proposé	147
3.4.	Validation du modèle proposé	150
4.	Remarques et conclusions partielles	158

Chapitre 4. Prédiction de la durée de vie en fatigue multiaxiale des polymères.....160

1.	Introduction.....	160
----	-------------------	-----

Tables des matières

2.	Programme expérimentale et observations	161
2.1.	Matériau et moyen d'essais.....	161
2.2.	Description des essais de fatigue et résultats	164
2.2.1.	Conditions expérimentales.....	164
2.2.2.	Plan de propagation des fissures	171
2.2.3.	Evolution de la charge ou du couple appliqué.....	173
2.2.4.	Observation des faciès de rupture	174
3.	Validité des modèles existants.....	175
3.1.	Critère de rupture en déformation.....	176
3.2.	Critères de rupture en contrainte.....	177
3.2.1.	Contrainte de Cauchy principale maximale.....	177
3.2.2.	Contrainte de Dang Van maximale.....	178
3.3.	Critères de rupture en énergie.....	182
3.3.1.	Energie de déformation.....	182
3.3.2.	Energie de fissuration de Mars	183
3.3.3.	Critère basé sur le tenseur d'Eshelby.....	186
4.	Nouveau modèle basé sur la mécanique de l'endommagement continu pour la prédiction de la durée de vie en fatigue : formulation et résultats	188
4.1.	Formulation multiaxiale du concept de la mécanique de l'endommagement continu	189
4.2.	Comparaison entre le modèle et les résultats expérimentaux	195
4.3.	Modèle d'endommagement couplé à la densité d'énergie de fissuration	197
4.3.1.	Equations de base du concept de la densité d'énergie de fissuration	197
4.3.2.	Couplage entre mécanique de l'endommagement continu et densité d'énergie de fissuration	198
4.4.	Calculs par élément finis.....	199
4.5.	Résultats et discussions.....	202
4.6.	Extension du modèle avec prise en compte de la « valeur moyenne » du chargement	207
5.	Remarques et conclusions partielles	213
Conclusions et perspectives		215
Annexe A		218
Annexe B		220
Annexe C		222

Tables des matières

Annexe D	227
Annexe E	228
Références	232

Introduction générale

Ce mémoire est dédié à l'étude du comportement mécanique, sous chargement monotone et cyclique, des polymères.

Les polymères ont connu leur essor industriel avec le XXe siècle. Des polymères naturels tels que le caoutchouc, la cellulose et la caséine en subissant des transformations chimiques étaient à l'origine des premières matières plastiques. L'usage des polymères a commencé quinze siècles avant J.-C. avec les égyptiens qui les ont employés dans des colles à base de gélatine, caséine ou albumine. A la fin du XVe siècle Colomb apporta en Europe des plantes de caoutchouc. Le caoutchouc est la fusion des deux termes donnés par les Amérindiens pour désigner l'arbre « Cao » qui pleure « Tchu ». La sève de l'hévéa (une des variétés d'arbre utilisées pour produire le caoutchouc) se présente sous forme d'un liquide d'apparence laiteuse, appelé latex. En 1835, la réaction de polymérisation du chlorure de vinyle a été découverte accidentellement par Regnault. Le procédé de vulcanisation du caoutchouc naturel par le soufre découvert, également de manière accidentelle, par Goodyear en 1839 annonça les prémices de l'utilisation massive des polymères dans l'industrie. Les années 1900-35 étaient un tournant important dans l'apparition des polymères synthétiques grâce à la compréhension et l'élaboration des procédés de polymérisation de nombreux monomères notamment suite aux travaux du prix Nobel de chimie Staudinger. La seconde guerre mondiale a été un accélérateur du progrès dans le domaine de la pétrochimie et du développement industriel des polymères, grâce aux immenses programmes de recherche, lancés par les pays en guerre visant une indépendance aux ressources naturelles vis-à-vis des pays développés. Les polymères sont de nos jours utilisés dans une large gamme d'applications, dans l'industrie aérospace et automobile, le transport des fluides et dans l'électronique notamment. Étant donné l'intérêt croissant porté aux polymères et leur utilisation comme composants de structures mécaniques, il est fondamental de comprendre leur comportement sous différentes conditions de chargement. Les polymères présentent un comportement non linéaire très complexe dépendant d'une part de facteurs externes (tels que la triaxialité, la vitesse de déformation et la température) et d'autre part de paramètres structuraux (tels que le degré de cristallinité, la masse moléculaire et l'enchevêtrement entre chaînes). C'est la raison pour laquelle la conception de produits fabriqués à partir de ce type de matériaux révèle un véritable défi : la prédiction de leur comportement et leurs performances sous chargement monotone et cyclique. Par conséquent, un

Introduction générale

outil de prédiction en mesure de décrire les différents aspects du comportement des polymères doit être encore proposé pour répondre à ces enjeux d'actualité.

Afin d'atteindre cet objectif, la connaissance de la microstructure et du comportement mécanique des polymères est fondamentale. Selon le comportement thermomécanique, on distingue trois grandes classes de polymères; les thermoplastiques, les thermodurcissables et les élastomères. Les polymères thermoplastiques et élastomères sont traités dans ce travail. Les thermoplastiques sont constitués de chaînes plus ou moins linéaires liées entre elles par des forces de van der Waals. Selon la régularité des chaînes ces polymères peuvent cristalliser (semi-cristallins) ou non (amorphes). Les matériaux caoutchoutiques ou élastomères sont des polymères amorphes formés de chaînes peu compactées (à température ambiante) et très mobiles ; pour assurer une stabilité de forme indispensable, diminuer leur propension au fluage et prévenir une souplesse excessive, les chaînes formant les caoutchoucs sont généralement liées entre elles par des liaisons primaires et stables. Les principaux élastomères sont le caoutchouc naturel « NR » et le styrène butadiène « SBR ». Les polymères ont un comportement très complexe dont la modélisation reste difficile. Comme mentionné auparavant, ces matériaux sont formés de motifs de monomères, liés entre eux par des liaisons intermoléculaires faibles qui assurent la cohésion du polymère aux basses températures. Leur comportement est fortement dépendant de la température. Les thermoplastiques ont un comportement viscoélastique - viscoplastique ou élastique - viscoplastique très prononcé, les élastomères sous grandes déformations ont un comportement visco - hyperplastique. Le comportement mécanique de ces deux types de polymères dépend fortement des effets de la température, du temps et, sous chargement cyclique, des phénomènes dissipatifs non linéaires sont de plus observés. Plusieurs processus de déformation interviennent dans la réponse d'un polymère thermoplastique et se succèdent le long du trajet de chargement. Ces processus, considérés individuellement, définissent les cinq classes de comportements mécaniques existants :

- L'élasticité linéaire apparaît pour les très petites déformations, au voisinage de l'instant initial de l'application du chargement. Dans ce domaine, le régime est dit à « réversibilité instantanée ».
- La viscoélasticité linéaire se produit pour les petites déformations durant lesquelles le module de fluage reliant la contrainte et la déformation n'est plus constant et dépend du temps. Le processus de déformation associé à cette classe de comportement est à « réversibilité retardée ».
- La viscoélasticité non linéaire apparaît dans les petites et moyennes déformations dès lors que le principe de superposition de Boltzmann n'est plus applicable. Dans ce régime

Introduction générale

commence à apparaître une déformation résiduelle croissante suivant l'effet grandissant de la viscosité.

- L'élasto-viscoplasticité est souvent assimilé au comportement précédent, mais se distingue par son application pour les grandes déformations.
- L'hyperélasticité liée à l'extensibilité et l'alignement des chaînes de monomère, qui se distingue très clairement en très grandes déformations.

Le comportement des matériaux élastomères est plus simple que celui des thermoplastiques, en effet il n'y a pas de phénomène de plastification observé. On peut donc associer aux élastomères trois classes de comportements mécaniques définis auparavant, l'élasticité linéaire, la viscoélasticité non linéaire et l'hyperélasticité.

Récemment, de nombreux travaux ont été menés pour comprendre le comportement des matériaux polymères. Parmi les modèles de comportement des matériaux polymères, on peut faire la distinction entre deux groupes :

- (i) les modèles phénoménologiques : proposant une formulation mathématique décrivant le comportement macroscopique des polymères sans se référer à la microstructure,
- (ii) les modèles physiques : reliant les observations expérimentales à une évolution macromoléculaire bien qu'il soit difficile de vérifier un lien direct entre les paramètres des modèles et la microstructure en raison de la complexité des processus mis en jeu.

Ce travail de thèse est dédié à l'étude du comportement mécanique, sous chargement monotone et cyclique, des polymères. Le mémoire est subdivisé en quatre chapitres :

- Dans un premier chapitre, un état de l'art sur la modélisation du comportement mécanique des polymères ainsi que sur la fatigue sera exposé. Dans ce chapitre, seront également rappelés des généralités sur la structure et le comportement mécanique des polymères.
- Dans un deuxième chapitre, nous proposerons des outils de modélisation assez généraux pour pouvoir décrire le comportement mécanique allant de celui des élastomères à celui des thermoplastiques.
- Dans un troisième chapitre, l'extension de la modélisation au problème du comportement cyclique à partir d'une approche par altération du réseau macromoléculaire sera proposée.
- Dans un quatrième chapitre, on se proposera de développer un outil de prédiction de la durée de vie en fatigue des pièces en élastomères.

Introduction générale

Dans le chapitre 2, le comportement en grandes déformations d'un polymère semi-cristallin représentatif (le polyéthylène) sera étudié. Le comportement mécanique sera analysé en chargement monotone et en décharge pour différents taux de cristallinités (allant de 15 à 72%). Un modèle inélastique à base physique, écrit sous une formulation en grandes déformations, sera proposé pour décrire le comportement mécanique du polyéthylène. L'influence de la cristallinité sur le comportement mécanique sera explicitement prise en compte dans la modélisation. Les capacités du modèle proposé à reproduire le comportement mécanique typique des thermoplastiques (pour les forts taux de cristallinité) jusqu'au comportement mécanique plus typique des élastomères (pour les faibles taux de cristallinité) seront démontrés.

Le chapitre 3 portera sur l'étude expérimentale et la modélisation du comportement contrainte - déformation en fatigue des polymères. En effet, les applications des polymères nécessitent à la fois une bonne connaissance du comportement sous un chargement variable monotone et/ou cyclique mais également la connaissance des propriétés de tenue à la fatigue. A l'inverse des métaux, les industries utilisatrices des matériaux polymères ne disposent pas de critères de rupture multiaxiaux sous chargements variables permettant d'optimiser les pièces par rapport à leurs durées de vie. Par conséquent, la compréhension des processus d'endommagement et la prédiction de la durée de vie sous chargement multiaxial des polymères sont fondamentales. Bien que plusieurs théories aient été plus ou moins récemment présentées pour décrire l'effet Mullins, très peu ont été proposées pour décrire l'adoucissement au-delà de l'effet Mullins. Le comportement mécanique sous chargement cyclique et ce, jusqu'à rupture d'un élastomère typique (le styrène-butadiène) sera décrits, et les principales caractéristiques de la réponse mécanique mises en évidence. Utilisant le même cadre que celui proposé pour modéliser le polyéthylène, un modèle visco-hyperélastique sera proposé pour appréhender la réponse des matériaux caoutchoutiques soumis à des chargements cycliques. Une loi d'évolution des paramètres macromoléculaires sera proposée pour décrire la dégradation de la réponse mécanique du styrène-butadiène subissant un endommagement cyclique.

Le chapitre 4 portera sur le développement d'un outil de prédiction de la durée de vie en fatigue des pièces en élastomères. Dans le but de prédire la durée de vie en fatigue du styrène-butadiène, des essais cycliques sous chargements multiaxiaux à amplitudes constantes et variables ont été effectués (traction, torsion, traction + torsion). Un nouveau critère basé sur la théorie de la mécanique de l'endommagement sera proposé pour prévoir la durée de vie sous sollicitations multiaxiales.

Enfin, les principaux résultats de la thèse seront discutés dans une conclusion générale et les perspectives que ce travail aura soulevées seront esquissées.

Chapitre 1. Structure, comportement et fatigue des polymères

Dans ce chapitre, nous présenterons un certain nombre de généralités sur les matériaux polymères. Nous passerons en revue leurs caractéristiques physico-chimiques et mécaniques et enfin leur comportement en fatigue. Les différentes approches permettant de décrire leur comportement intrinsèque seront passées en revue. Les modèles existant pour prédire leur durée de vie en fatigue seront également présentés.

1. Généralités

1.1. Petit historique

En 1496, à l'occasion d'un de ces voyages en Amérique, Colomb observe les indiens jouer avec une balle formée par un étrange mélange. Intrigué, il en rapportera un échantillon à Isabelle de Castille qui finançait son expédition. En fait, le caoutchouc était déjà connu des Incas, des Mayas, des Olmèques et des Aztèques pour la fabrication d'objets courants tels que les bottes, les balles, les récipients et les toiles enduites. En 1736, le français Charles-Marie de la Contamine redécouvre cette substance élastique lors de son expédition en Amérique du Sud. Il francise le mot « cao tchu », signifiant « bois qui pleure » en indien, en caoutchouc et en rapporte quelques échantillons en Guyane française. Les premières études scientifiques sur le caoutchouc sont attribuées à l'ingénieur français François Fresneau qui imprègne ses bottes de latex pour les imperméabiliser. Malheureusement, le caoutchouc étant sensible aux variations de température (il se fige à froid et devient visqueux à chaud), son utilisation restera très limitée. Les premières applications industrielles du caoutchouc voient le jour dans le textile en 1791, avec le brevet déposé par l'industriel britannique Samuel Peal dans l'imperméabilisation des tissus par traitement avec une solution de caoutchouc dissous dans l'essence de térébenthine. Par la suite, la fabrication de tissus imperméables prend un certain essor lorsque Charles Macintosh découvre en 1823 que le caoutchouc brut peut se dissoudre dans le benzol, un solvant économique. Peu à peu, la production de pièces en caoutchouc se

développe. En 1830, l'usine des frères Michelin consacrée à la fabrication de balles pour enfants voit le jour. En 1835, la réaction de polymérisation du chlorure de vinyle a été découverte accidentellement par Regnault. En 1839, Charles Goodyear fait une découverte capitale, puisqu'il montre qu'en présence de soufre et d'une source de chaleur, l'élasticité de la gomme est fixée et son adhésivité supprimée. Par la suite, ce procédé appelé vulcanisation fera l'objet d'un brevet par Thomas Hancock. En 1862, l'anglais Alexander Parkes présente la Parkesine (issue de la cellulose), l'un des plus anciens polymères artificiels, lors de l'exposition universelle de Londres. Cette découverte est à la base de l'industrie plastique moderne. En 1888, John Dunlop invente le premier pneumatique constitué d'une chambre à air enveloppée dans une toile en coton tissée et collée sur une jante en bois. Ainsi, l'ère du pneumatique débute avec Dunlop et les frères Michelin qui équiperont d'abord les bicyclettes puis les automobiles.

L'utilisation des polymères au XIXe siècle était limitée à l'utilisation de la matière première naturelle. Le développement des polymères synthétiques et leur industrialisation ont commencé avec le début du XXe siècle. Le premier polymère synthétique, un polymère phénol-formaldéhyde, a été présenté sous le nom de « Bakélite », par Leo Baekeland, en 1909. La même année a vu naître le premier caoutchouc synthétique avec le brevet du chimiste allemand Fritz Hofmann. Les années 1900-35 furent un tournant important dans l'apparition des polymères synthétiques grâce à la compréhension et l'élaboration des procédés de polymérisation de nombreux monomères notamment suite aux travaux du prix Nobel de chimie Hermann Staudinger. En 1919, le chimiste allemand Hermann Staudinger, considéré comme le père de la science macromoléculaire, introduit la notion de macromolécule puis réalise la polymérisation de nombreux monomères éthyléniques. Les années suivantes ont vu l'apparition des premiers caoutchoucs synthétiques tels que le polybutadiène (PB) et le polychloropène (CR). Les recherches du chimiste américain Carothers conduisent à la synthèse du néoprène en 1931, polymère dont le monomère est le chloropène. La première moitié du XXe siècle était propice à la découverte et l'industrialisation des polymères synthétiques, notamment avec la fabrication industrielle du polychlorure de vinyle (PVC), la découverte du polyméthacrylate de méthyle (PMMA) et sont industrialisées sous le nom de plexiglas, la synthèse du polyéthylène (PE) et du polyamide (PA), etc.

La seconde guerre mondiale a joué le rôle d'accélérateur et des progrès ont été réalisés dans le domaine de la pétrochimie et du développement industriel des polymères, surtout grâce à des immenses programmes de recherche lancés par l'industrie de guerre. L'industrie du

caoutchouc synthétique allemande et américaine connaît un fort développement puisqu'en 1942, les japonais prennent le contrôle de près de 90% de la production mondiale de caoutchouc naturel. La recherche menée aux Etats-Unis sur le caoutchouc synthétique a débouché sur la synthèse d'un polymère de l'isoprène (IR) de composition chimique identique au caoutchouc naturel. A la même époque (1940), le caoutchouc butyle est obtenu par copolymérisation de l'isobutène avec le butadiène ou l'isoprène. Depuis la seconde guerre mondiale, la production des polymères n'a cessé de croître, même si les deux chocs pétroliers de 1973 et 1979, et actuellement l'annonce prochaine de la fin du pétrole ont fait que l'industrie des polymères relance l'utilisation du caoutchouc naturel et cherche des substituts aux produits pétroliers, à travers notamment la synthèse de polymères issus de produits végétaux.

1.2. Qu'est-ce qu'un polymère ?

On appelle « polymère » un système formé par un ensemble de macromolécules de même nature chimique. Chaque macromolécule est le résultat de l'enchaînement de plusieurs dizaines à plusieurs milliers d'unités de répétition identiques appelées « monomères » et liées entre elles par des liaisons primaires.

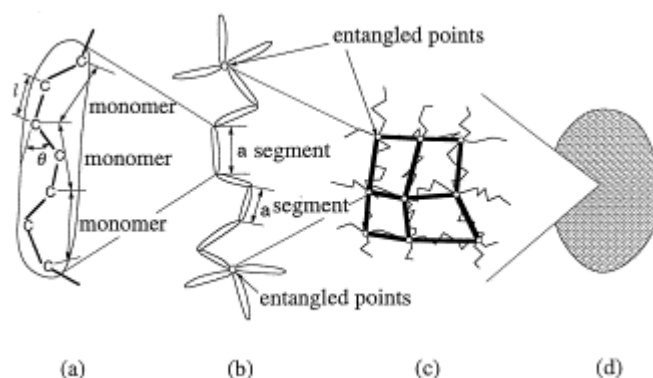


Figure 1.1.1. Schématisation de la structure des polymères (amorphes) à différentes échelles (Tomita, 2000) : (a) constitution d'un segment de chaîne, (b) macromolécule, (c) enchevêtrements macromoléculaires, (d) structure macroscopique homogène et isotrope.

La polymérisation est la réaction chimique qui permet de passer de l'unité de répétition ou monomère au polymère. Si celui-ci peut être défini par un seul type d'unité de répétition, on parle d'homopolymère, si deux ou trois espèces de monomères sont en jeu, il s'agit alors de copolymères. L'élément du monomère contenant une seule liaison capable de rotation est

défini par les physiciens comme étant l'unité structurale ou le segment élémentaire. Cet élément est caractérisé par sa longueur et l'angle qu'il fait avec les deux segments élémentaires voisins (figure 1.1.1).



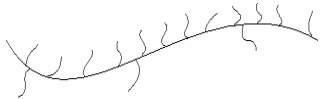
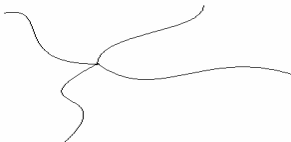


Désignation	Architecture des macromolécules	Exemple	Mère ou unité constitutive
Macromolécule linéaire		Polyéthylène haute densité (HDPE)	$\left(\begin{array}{cc} \text{H} & \text{H} \\ & \\ -\text{C} & -\text{C}- \\ & \\ \text{H} & \text{H} \end{array} \right)_n$
Homopolymère branché		Polyéthylène basse densité (LDPE)	$\left(\begin{array}{cc} \text{H} & \text{H} \\ & \\ -\text{C} & -\text{C}- \\ & \\ \text{H} & \text{H} \end{array} \right)_n$
Homopolymère à branches courtes		Polyéthylène linéaire de basse densité (LDPE)	$\left(\begin{array}{cc} \text{H} & \text{H} \\ & \\ -\text{C} & -\text{C}- \\ & \\ \text{H} & \text{H} \end{array} \right)_n$
Polymère en étoile à quatre branches		Styrène-butadiène bloc copolymère	$\left[\text{CH}_2 - \text{CH} = \text{CH} - \text{CH}_2 - \underset{\text{m}}{\text{CH}} - \text{CH}_2 \right]_n$ 
Polymère réticulé		Caoutchouc vulcanisé, caoutchouc naturel	$\begin{array}{c} \text{CH}_2 \\ \\ -\text{CH}_2 - \text{C} = \text{CH} - \text{CH}_2 - \end{array}$

Tableau 1.1.1. Exemple d'architecture des macromolécules (Kaush et al., 2001).

La structure de la macromolécule est définie par la composition chimique du monomère, la disposition des atomes et des liaisons, l'ordre d'enchaînement et les aspects topologiques. En général, les polymères sont formés à partir des neuf éléments chimiques suivants : le carbone, l'hydrogène, l'azote, l'oxygène, le fluor, le silicium, le phosphore, le soufre et le chlore (Kaush et al., 2001). Le squelette de la macromolécule est le plus souvent composé d'atomes de carbone. D'autres atomes ou des groupements latéraux peuvent être attachés au squelette par liaison primaire. Selon que les enchaînements covalents se développent dans une, deux ou trois directions de l'espace, on distingue les macromolécules; mono-, bi- et tridimensionnelles. La dimensionnalité d'une macromolécule est directement liée à la fonctionnalité des unités constitutives, c'est-à-dire au nombre de liaisons établies avec leurs

voisines. Le tableau 1.1.1 présente des exemples d'architecture de macromolécules et la structure chimique d'un monomère correspondant.

Les dispositions configurationnelles (arrangement topologique des atomes au sein du monomère) et conformationnelles (agencement relatif des monomères d'une même molécule) sont les spécificités de réalisation (cinétique de refroidissement...) conduisant à un état partiellement ou totalement désordonné de la matière. Lorsque l'arrangement des chaînes macromoléculaires au sein du matériau est totalement désordonné, le polymère est dit amorphe et les chaînes sont enchevêtrées sous forme de pelotes statistiques. En dépit de cette absence d'ordre à l'échelle moléculaire, et si l'on occulte les éventuels effets d'orientation consécutifs à la mise en forme, les polymères amorphes à l'état solide sont macroscopiquement isotrope et homogènes (figure 1.1.1). Lorsque les chaînes macromoléculaires sont partiellement ordonnées en domaines cristallins, le polymère est alors dit semi-cristallin. Pour qu'un polymère cristallise, il est nécessaire que sa chaîne macromoléculaire montre une forte régularité, mais aussi que sa cinétique de cristallisation ne soit pas trop lente. Les polymères cristallisables auront une configuration régulière (isotactique ou syndiotactique) ainsi qu'une conformation globale régulière, zig-zag planaire ou hélice pour les polymères thermoplastiques (Haudin, 1995). Cependant, les chaînes macromoléculaires ne sont jamais rigoureusement régulières, et la moindre irrégularité dans l'enchaînement des motifs monomères composant la chaîne, ou la présence d'une ramification, va avoir pour effet de modifier, de limiter, voire d'empêcher la cristallisation.

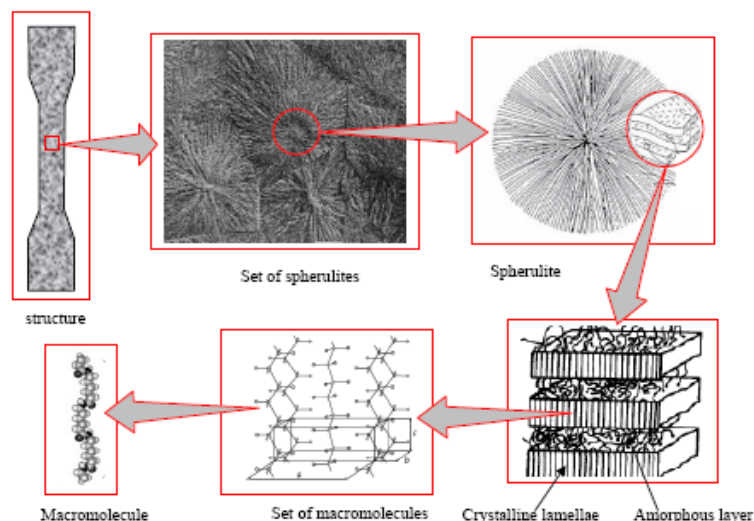


Figure 1.1.2. Schématisation de l'organisation en lamelles cristallines des polymères semi-cristallins.

C'est pourquoi les polymères ayant cristallisés sont appelés polymères semi-cristallins car les polymères ne sont jamais entièrement cristallisés. Aussi, coexistent dans un semi-cristallin matière cristallisée et matière amorphe (Oudet, 1994). Lors de la cristallisation, les chaînes macromoléculaires régulières, qui peuvent mesurer quelques micromètres de longueur, s'organisent et se replient pour former des lamelles (figure 1.1.2). L'épaisseur et la régularité des lamelles dépendent des conditions de cristallisation et de la rigidité de la chaîne, des ramifications, et des défauts d'enchevêtrement. Ces imperfections favorisent les connexions entre lamelles; elles sont reliées par des morceaux de chaînes macromoléculaires appartenant à d'autres lamelles; ces pontages sont appelés chaînes liens. Parfois, la chaîne macromoléculaire est mal orientée, et forme des repliements. A la périphérie des lamelles, les chaînes liens, les repliements, les bouts de chaînes et les impuretés ne peuvent pas cristalliser et vont former une phase amorphe inter-lamellaire.

Dans tous les cas, la transition vitreuse, une des propriétés physiques particulières des polymères est due à la présence de zones amorphes. Un polymère optimise sa stabilité thermodynamique afin d'adopter une structure ordonnée en se cristallisant, lors d'un refroidissement à partir de l'état liquide et dès que la température devient inférieure à la température de fusion T_f . Le polymère conserve son état liquide/caoutchoutique bien en dessous de T_f jusqu'à une certaine température T_g , appelée température de transition vitreuse, si la vitesse de refroidissement est trop rapide pour permettre la cristallisation. T_g est la température à partir de laquelle la mobilité moléculaire n'est plus suffisante pour permettre au système de rester dans un état amorphe. La température de transition vitreuse T_g est une frontière qui marque le passage du système d'un état en équilibre à un état hors de l'équilibre, le polymère passe de l'état liquide caoutchoutique à l'état vitreux, la viscosité augmente alors rapidement de plusieurs ordres de grandeur.

1.3. Comportement mécanique des polymères

Les polymères manifestent un comportement viscoélastique et/ou viscoplastique non linéaire fortement dépendant de la température et du temps. Ces deux facteurs clés dans le comportement mécanique des polymères sont successivement décrits dans la suite.

1.3.1. Dépendance à la température

Comme déjà précisé dans le paragraphe précédent, les polymères admettent deux états : l'état vitreux qui se traduit par l'apparition d'un édifice ordonné tout à fait comparable à celui des métaux et l'état caoutchoutique qui correspond à un état désordonné de la matière. L'existence des deux régimes de comportement mécanique des polymères résulte de la variation de mobilité moléculaire en fonction de la température. L'influence de la température sur le comportement des polymères est mise en évidence lors du passage de l'état vitreux à l'état caoutchoutique défini dans la zone de transition vitreuse, qui est accompagné par une chute du module d'élasticité de plusieurs ordres de grandeurs. Dans l'état vitreux, le matériau a un comportement viscoplastique alors que, dans l'état caoutchoutique, le matériau présente un comportement élastique qui supporte des déformations réversibles très importantes. Dans la figure 1.1.3 on distingue les plateaux vitreux et caoutchoutique, significatifs des deux états possibles des polymères. La zone autour de T_g est une zone où le comportement est très dépendant de la température d'utilisation. La dépendance à la température n'affecte évidemment pas uniquement le modèle d'élasticité mais toutes les autres propriétés observables, à savoir la limite d'élasticité, les propriétés plastiques et à rupture.

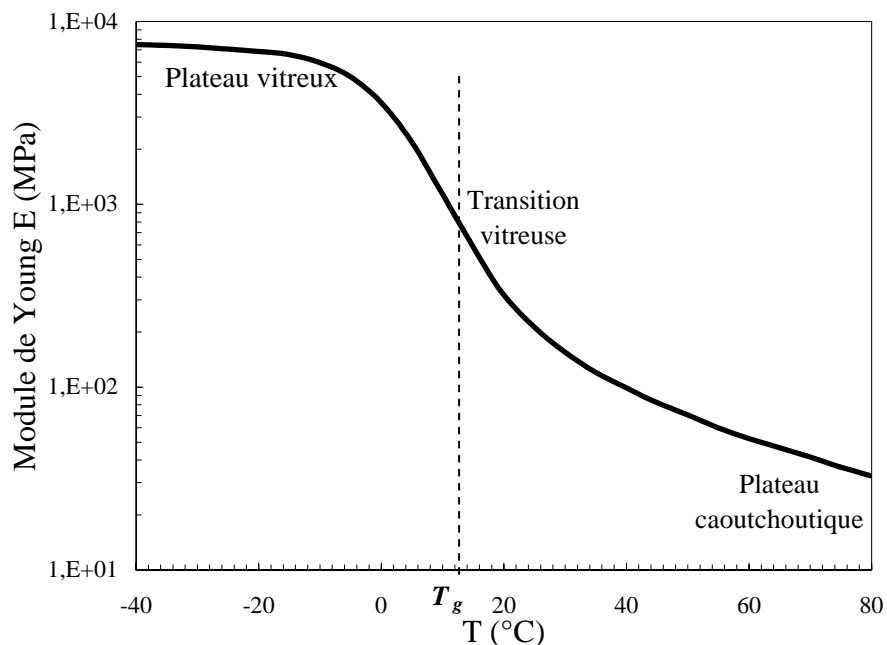


Figure 1.1.3. Différents comportements mécaniques d'un polymère amorphe typique (PBU) en fonction de la température.

1.3.2. Dépendance au temps

Les polymères ont un comportement fortement dépendant au temps qui peut être caractérisé par la réversibilité retardée ou différée de leur déformation dans le temps. Des essais de fluage-recouvrance peuvent mettre en évidence la présence de déformations différées (figure 1.1.4). Un essai de fluage-recouvrance consiste à appliquer brutalement à un échantillon une contrainte maintenue constante σ_0 sur une durée suffisamment longue avant de la supprimer, et suivre la réponse en déformation en fonction du temps.

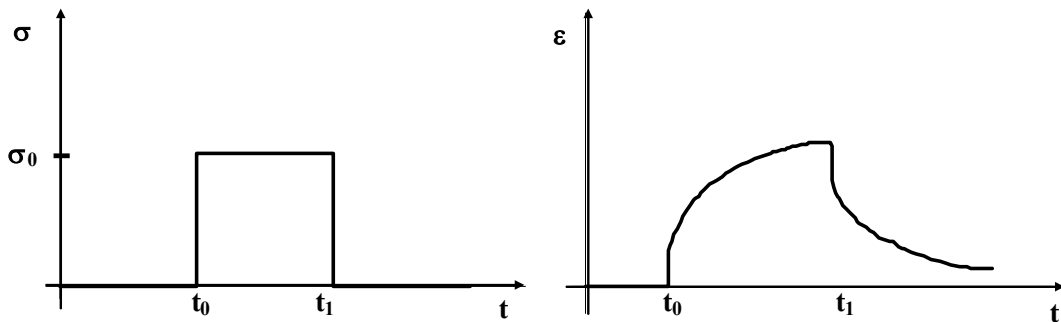


Figure 1.1.4. Réponse d'un polymère élasto-viscoplastique lors d'un essai de fluage.

La figure 1.1.4 montre qu'à l'instant t_0 pour atteindre la contrainte de maintien σ_0 un saut de la déformation a lieu, correspondant à l'élasticité instantanée du matériau, et puis une augmentation progressive dans le temps est observée. En revanche, lorsque la contrainte de maintien est supprimée, on assiste à une contraction élastique immédiate de l'échantillon suivie d'un retour différé vers sa longueur initiale. L'essai de relaxation met clairement en évidence la réversibilité retardée de la contrainte. Un essai de relaxation consiste à imposer à un échantillon une déformation constante ε_0 et suivre la contrainte qui en résulte en fonction du temps (figure 1.1.5).

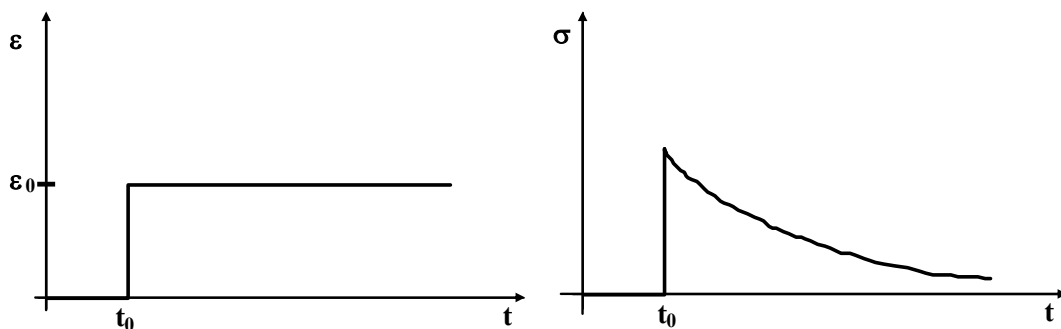


Figure 1.1.5. Réponse d'un polymère élasto-viscoplastique lors d'un essai de relaxation.

Ces essais simples de fluage et de relaxation, montrent que pour établir une relation entre la contrainte σ et la déformation ε , il faut trouver les relations liant la contrainte et la déformation à la vitesse de chargement $\dot{\sigma}$ ou à la vitesse de déformation $\dot{\varepsilon}$.

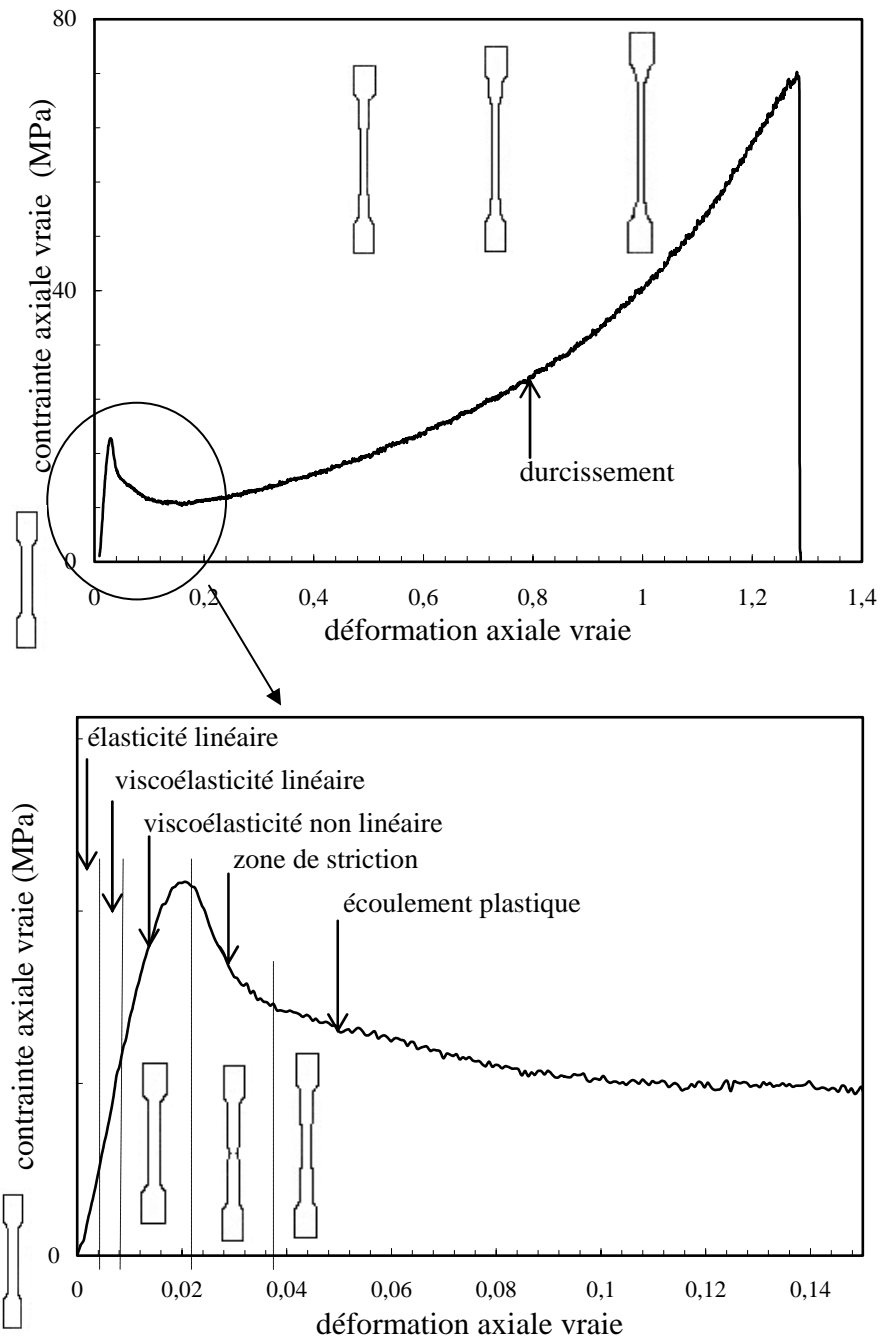


Figure 1.1.6. Courbe contrainte-déformation (essai de traction monotone) d'un polymère thermoplastique représentatif (PLA) avec mise en évidence des différents domaines identifiables (Belbachir et al., 2010).

L'effet de la vitesse de déformation sur le comportement mécanique des polymères, une conséquence de leur dépendance au temps, est aussi important que la température, l'augmentation de la vitesse de déformation ayant le même effet que la diminution de la température.

1.3.3. Loi de comportement en grandes déformations

La réponse mécanique d'un polymère fait intervenir plusieurs processus de déformation différents. Ces processus de déformation se succèdent à des instants différents le long du trajet de chargement. Ainsi, lors d'un essai de traction monotone à une température donnée, la courbe contrainte-déformation (figure 1.1.6) peut être décomposée en plusieurs domaines définissant le régime de déformation qui y prédomine.

Le domaine viscoélastique linéaire. La viscoélasticité linéaire se produit pour les petites déformations et, par définition, délimite le domaine d'application du principe de superposition de Boltzmann. Selon Boltzmann, l'état de contrainte ou de déformation d'un corps viscoélastique est fonction de toutes les sollicitations appliquées au matériau. Chaque nouvelle sollicitation contribue de manière indépendante à l'état final. La définition du principe de Boltzmann est la suivante : la réponse à la superposition de deux histoires de sollicitations est égale à la superposition de leurs réponses (figure 1.1.7). L'application du principe de superposition de Boltzmann induit que, si seule une fonction (de relaxation ou de fluage) est connue, pour toutes les valeurs positives du temps, $t > 0$, le comportement mécanique du matériau et également l'autre fonction sont complètement déterminés. Le principe de superposition de Boltzmann énonce que si l'état de la matière est, à un instant donné, gouverné par l'ensemble des événements qu'a connus le matériau précédemment, et que chacune des contraintes contribue indépendamment à l'état du matériau, il peut être exprimé de la manière suivante : si $J(t)$ est connu, la déformation à l'instant t , $\varepsilon(t)$ produite par une histoire quelconque de contrainte commençant au temps $-t_0$ est (Petitet et Barquins, 2008) :

$$\varepsilon(t) = \int_{-\infty}^t J(t-\tau) d\sigma(\tau) = J_0\sigma(t) + \int_{-t_0}^t \dot{J}(t-\tau)\sigma(\tau)d\tau \quad (1.1.1)$$

où J_0 est $J(t=0)$.

De même manière, si $G(t)$ est la contrainte, $\sigma(t)$ obtenue après une histoire quelconque de déformation, est :

$$\sigma(t) = \int_{-\infty}^t G(t-\tau) d\varepsilon(\tau) = G_0 \varepsilon(t) + \int_{-t_0}^t \dot{G}(t-\tau) \varepsilon(\tau) d\tau \quad (1.1.2)$$

Ainsi :

$$\int_0^t G(t-\tau) J(\tau) d\tau = t \quad (t \geq 0) \quad (1.1.3)$$

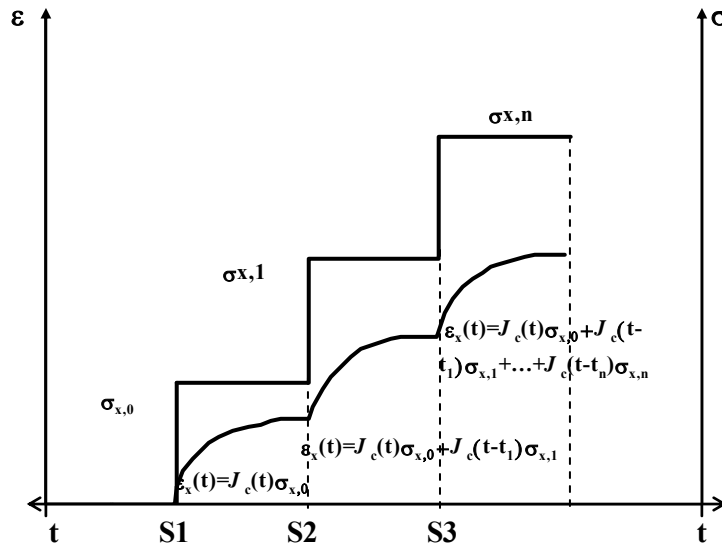


Figure 1.1.7. Illustration du principe de superposition de Boltzmann avec un essai de fluage.

La présence du régime viscoélastique est fortement conditionnée par la température d'essais. En effet, elle ne doit pas trop s'éloigner de la température de transition vitreuse dans la direction du plateau caoutchoutique ($T > T_g$). Pour ce mécanisme de déformation, le module de fluage n'est pas constant, comme le module de Young en élasticité linéaire, mais dépend du temps. Ce phénomène est dit à « réversibilité retardée » (Lemaitre et Chaboche, 1988). Lorsque la contrainte est supprimée, il subsiste une déformation rémanente (ou différée) qui disparaît entièrement au cours du temps parfois lentement. Le caractère dissipatif du phénomène se manifeste par la présence d'hystérésis dans la courbe contrainte-déformation pour un cycle de charge et décharge.

Le domaine viscoélastique non linéaire. Après la zone de viscoélasticité linéaire, pour les petites et moyennes déformations, la courbe contrainte-déformation parcourt le domaine de la viscoélasticité non linéaire qui peut être identifié en effectuant des essais de fluage ou de relaxation. En effet, on remarque que durant l'essai de fluage le module de fluage ne dépend

plus uniquement de la durée du chargement, mais également de l'intensité du chargement. On remarque de la même façon que le module de relaxation dépend de la durée du chargement ainsi que son intensité comme la montre la figure 1.1.8.

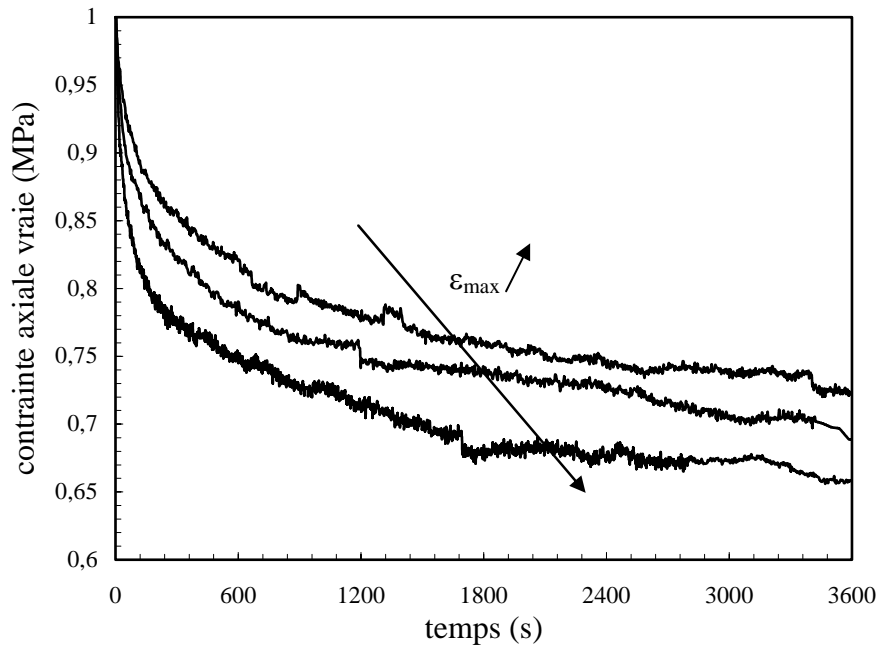


Figure 1.1.8. Courbes contrainte normalisée en fonction du temps pour un PEHD à différents niveaux de déformation maximale.

Comme la figure 1.1.9 le montre, une hystérésis apparaît pour un cycle de charge et décharge dans la courbe contrainte-déformation, ce qui traduit le caractère dissipatif du phénomène. La décharge initialement linéaire et rapide devient progressivement non linéaire, ceci étant accentué avec la déformation maximale imposée. Dans cette partie de la courbe, les composantes irréversibles de la déformation totale deviennent non négligeables et dominant de plus en plus. Cette irréversibilité est de nature visqueuse, à savoir issue du glissement entre les segments de chaînes que l'on nomme écoulement plastique. L'effet Payne, un phénomène lié directement à la viscoélasticité non linéaire, sera discuté dans la section suivante.

Le domaine viscoplastique. Une fois atteint le seuil d'écoulement σ_y , appelé aussi seuil de plasticité, l'éprouvette présente le phénomène de striction et le matériau rentre dans le domaine de déformation viscoplastique. Cette partie de la courbe peut se décomposer en deux zones. La première est une zone d'instabilité plastique ou striction, qui correspond à une chute de contrainte juste après avoir atteint le seuil de plasticité. Il faut noter que le phénomène de striction existe pour certains polymères seulement, alors que pour d'autres, le seuil

d'écoulement est inexistant comme pour les élastomères. La seconde zone correspond à un allongement du polymère pratiquement à vitesse constante caractérisant le phénomène d'étirage ou d'écoulement plastique stationnaire. En plus de l'écoulement plastique dû à la viscosité, on observe également pendant l'écoulement plastique un phénomène irréversible généré par des bandes de cisaillement, c'est-à-dire des déformations plastiques localisées dans une très petite zone.

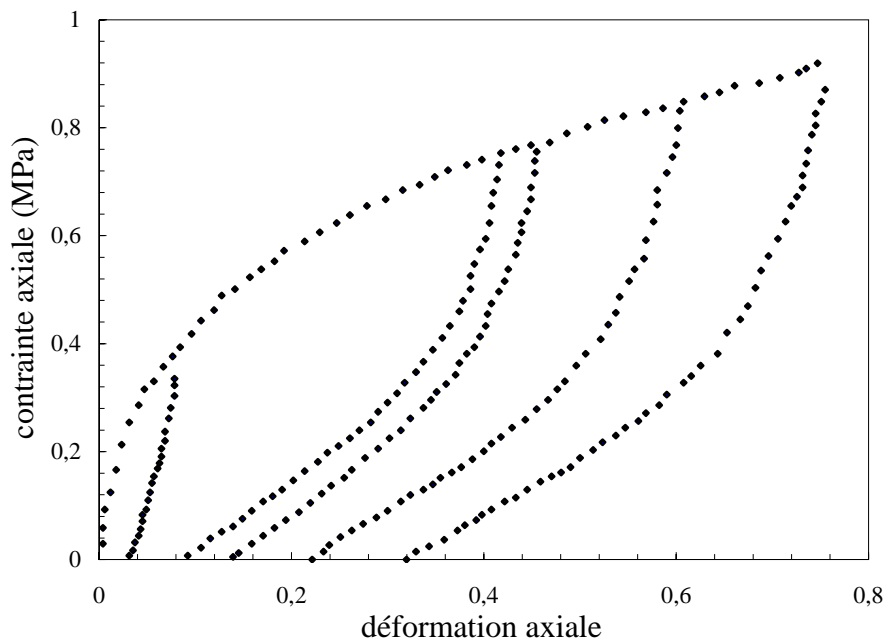


Figure 1.1.9. Courbe contrainte-déformation pour un chargement en traction monotone avec décharges à différents niveaux de déformation d'un thermoplastique (Drozdov et al., 2009).

Le domaine de durcissement plastique. Après le plateau plastique le niveau de contrainte augmente rapidement et d'une façon non linéaire. Cette autre particularité dans le comportement des polymères est liée à leur microstructure formée de longues chaînes de monomère qui s'alignent dans la direction de la sollicitation. Ce durcissement structural est souvent associé à une déformation de type hyperélastique voire visco-hyperélastique dans la mesure où il a lieu en très grandes déformations et qu'il dépend fortement de la température et du temps.

En effet, pour les matériaux caoutchoutiques, le seuil d'écoulement est inexistant. Sur la courbe contrainte-déformation de la figure 1.1.10 on distingue deux processus de déformation : une élasticité linéaire en petites déformations suivie par un durcissement viscoélastique non linéaire en grandes déformations.

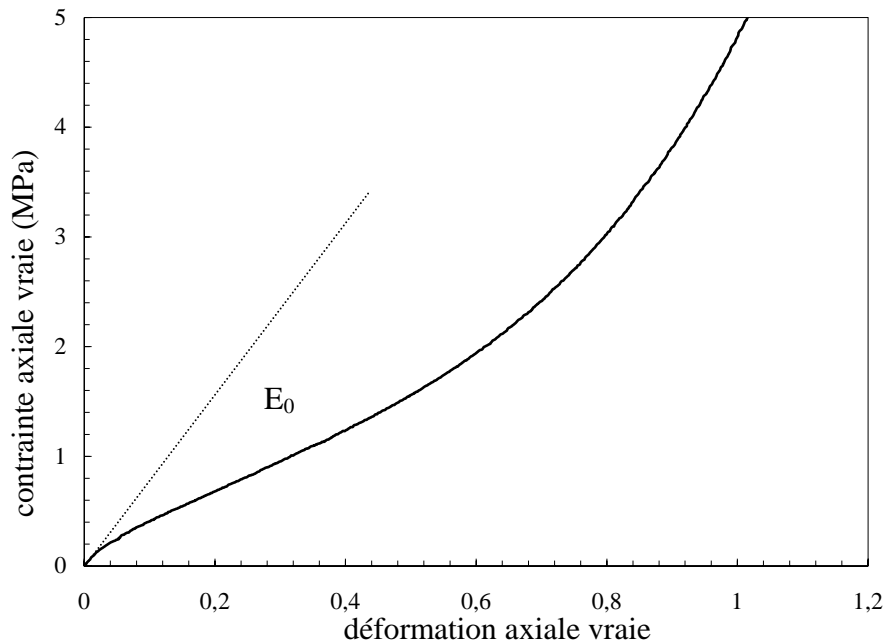


Figure 1.1.10. Courbe contrainte-déformation typique d'un matériau élastomère.

1.3.4. Comportement sous chargements cycliques

En plus des différents mécanismes de déformation non linéaires qui caractérisent le comportement monotone des polymères, ces matériaux présentent d'autres particularités lorsqu'ils sont soumis à une sollicitation cyclique. Quatre principales caractéristiques rencontrées sous des chargements cycliques sont résumées dans la suite.

1.3.4.1. Effet Payne

Du fait du comportement viscoélastique non linéaire des polymères, une non linéarité de leur réponse mécanique en sollicitation cyclique est observée au voisinage de la transition vitreuse pour des déformations allant de 0.1 à 20 %. Ce phénomène, connu sous le nom d'effet Payne (Payne, 1960), est lié à la présence des charges dans la matrice polymère. En effet, les polymères ont la particularité de présenter simultanément deux composantes mécaniques : le comportement du solide caractérisé par un module élastique, d'origine entropique et le comportement visqueux du liquide se manifestant par un retard à la réponse et une perte d'énergie à chaque cycle de déformation. La mesure de la réponse d'un polymère en

sollicitation dynamique permet ainsi de caractériser ses propriétés viscoélastiques. La figure 1.1.11 illustre la décomposition de la déformation en deux composantes (Martinon, 1998), l'une est en phase par rapport à la contrainte appliquée (déformation élastique de module G'), l'autre est en quadrature retard (déformation visqueuse de module G''). On a donc $G^* = G' + iG''$ où G' est le module de conservation (relié à l'énergie élastique emmagasinée) et G'' est le module de perte (relié à l'énergie visqueuse dissipée). On définit également le facteur de perte $\tan(\delta) = G''/G'$ qui mesure la perte d'énergie par frottement interne du matériau.

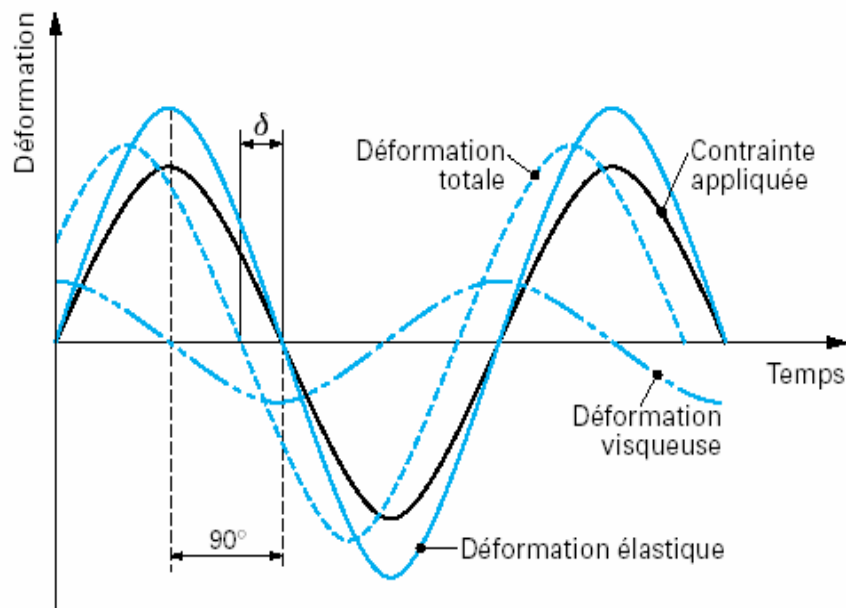


Figure 1.1.11. Composantes de la déformation en régime sinusoïdal pour un élastomère (Martinon, 1998).

Ainsi, la figure 1.1.12 montre que le module initial G'_0 d'une matrice non chargée, correspondant au module dans le plateau caoutchoutique discuté auparavant, reste constant alors que celui d'une matrice chargée chute au cours de la déformation de cisaillement γ . Précisons, néanmoins, que le polymère chargé présente un module plus important que celui de la matrice quel que soit le niveau de déformation ; ceci est dû à la présence d'une phase (charge) plus rigide que la matrice. Par ailleurs, le module de perte ($\tan(\delta) = G''/G'$) présenté sur la figure 1.1.12 est en évolution pour une bonne partie de la déformation traduisant une dissipation d'énergie de l'élastomère chargé.

Notons enfin, que d'autres paramètres pouvant influencé l'amplitude de l'effet Payne ne sont pas présentés dans cette bibliographie. Nous citerons à titre d'exemple la fraction volumique des charges, leur dispersion dans la matrice, leur surface spécifique ainsi que leur structure.

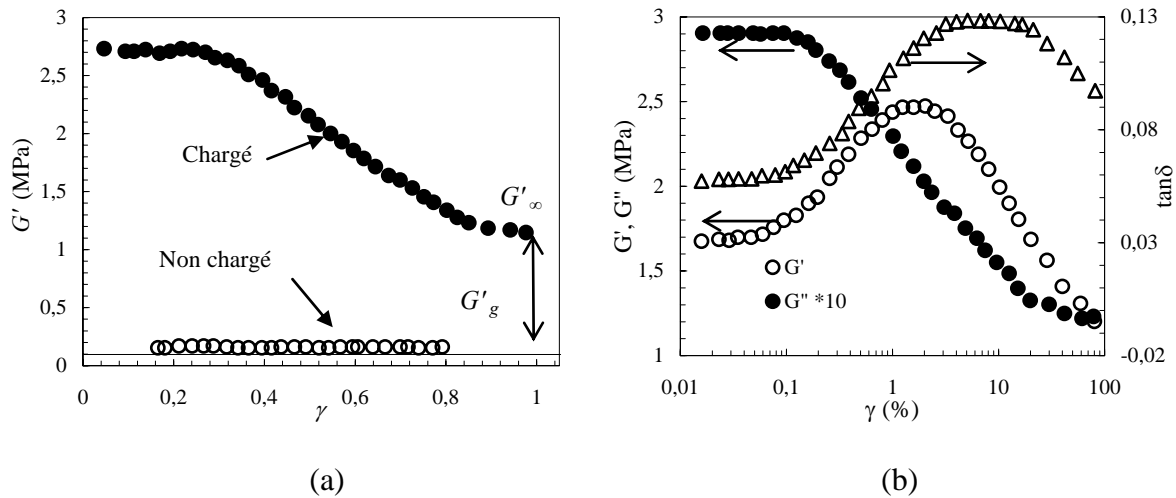


Figure 1.1.12. Mise en évidence de l'effet Payne : (a) évolution du module élastique pour la matrice et le matériau chargé, (b) courbes typiques d'effet Payne pour un élastomère chargé (module de conservation, de perte et facteur de perte) (Ramier, 2004).

1.3.4.2. Comportement hystérétique

La nature visqueuse des matériaux polymères leur confère un comportement hystérétique. Le comportement contrainte-déformation d'un polyéthylène haute densité en traction uniaxiale en charge-décharge à différents niveaux de déformation est tracé à la figure 1.1.13.

Le comportement visqueux de ce matériau est clairement visible à travers les hystérésis formées à chaque cycle charge-décharge. Ce comportement typique des polymères résulte de la friction des chaînes macromoléculaires entre elles, mais également lorsque le matériau est renforcé par des charges, de la friction chaînes/charges ainsi que des interactions charges/charges (Heuillet, 1997; Lu, 1991). Cette différence de comportement entre le chargement et le déchargement provoque une perte d'énergie dans le matériau qui se transforme en chaleur. Leur nature isolante peut alors piéger cette chaleur et entraîner une divergence thermique (surchauffe). On notera également qu'une augmentation de température risque également d'accélérer le vieillissement/fluage/relaxation précisément dans les zones les plus contraintes.

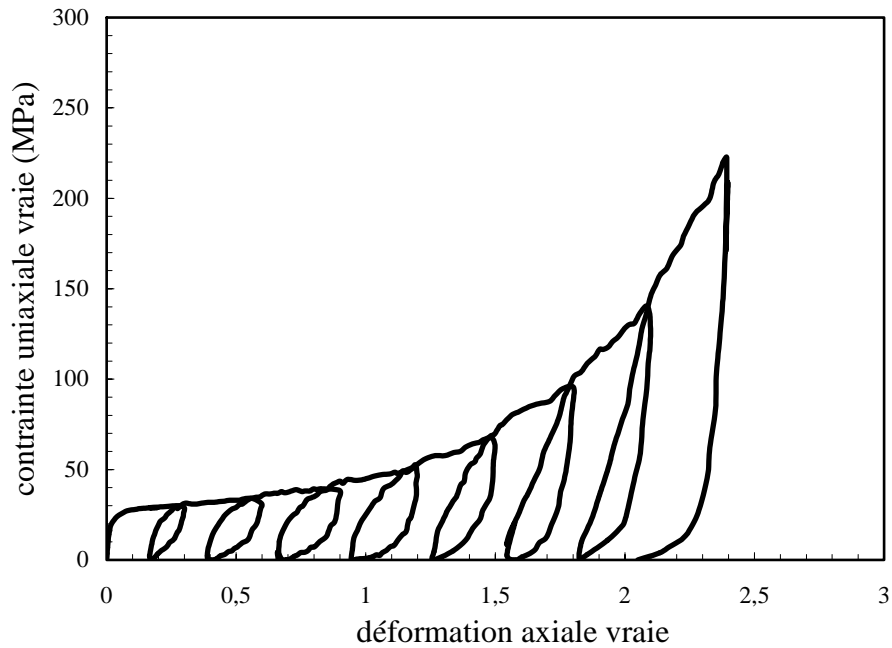


Figure 1.1.13. Comportement charge-décharge à différents niveaux de déformation d'un polyéthylène haute densité (Ayoub et al., 2010).

1.3.4.3. Effet Mullins

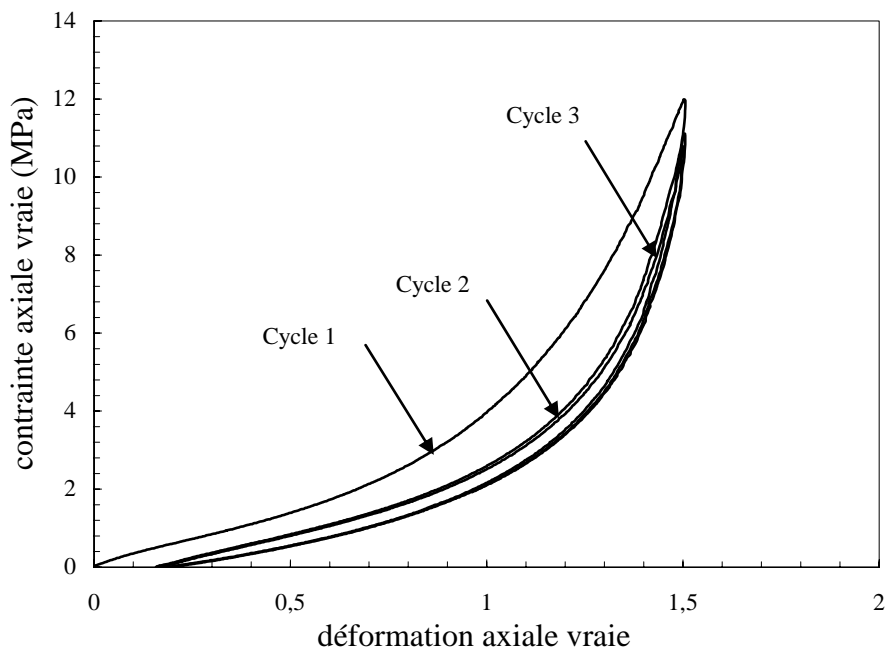


Figure 1.1.14. Comportement cyclique d'un élastomère chargé de noir de carbone.

L'effet Mullins consiste en un adoucissement de la loi de comportement après une première sollicitation. Lorsqu'un chargement cyclique pour un niveau de déformation donné est

appliqué sur un polymère, il est couramment observé que son comportement mécanique est modifié après l'application d'un premier chargement. En effet, ce dernier entraîne une perte de rigidité pour les chargements suivants, qui peut atteindre plusieurs dizaines de pourcent en fonction de la déformation macroscopique imposée (figure 1.1.14).

Base physique	Schéma
Rupture de chaînes (Blanchard et Parkinson, 1952; Bueche, 1960)	
Glissement moléculaire (Houwink, 1956)	
Rupture de charge (Kraus et al., 1966)	
Désenchevêtrement (Hanson et al., 2005)	
Modèle à deux couches (Fukahori, 2005)	

Tableau 1.1.2. Principales interprétations physiques de l'effet Mullins (Diani et al., 2009).

On remarque, néanmoins, que l'énergie dissipée est d'autant plus importante pour le premier cycle, pour un cyclage au même niveau de déformation, et se stabilise au fur et à mesure du chargement. Ce phénomène d'adoucissement fut observé pour la première fois par Bouasse et Carrière (1903) et a été longuement étudié par Mullins (1948; 1957). Ce dernier suggéra quelques interprétations physiques de ce phénomène qui porte aujourd'hui son nom. Ce phénomène est observable sur l'ensemble des élastomères mais aussi sur des polymères thermoplastiques (Drozdov, 2009). Il est cependant plus prononcé dans le cas des matériaux chargés. Les principales observations phénoménologiques rapportées par Mullins (Mullins, 1948; 1957) peuvent être résumées comme suit :

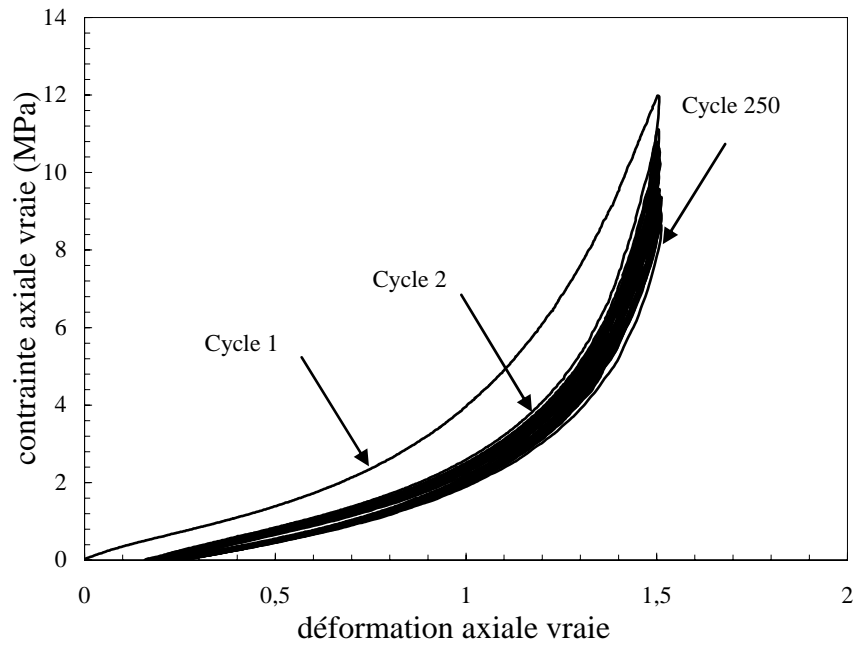
- L'adoucissement est uniquement observé pour des valeurs d'élongations supérieures à celle imposée précédemment dans l'histoire de chargement.
- Le niveau d'adoucissement augmente avec le volume de la fraction initiale de charges.
- Une anisotropie induite par l'effet Mullins est observée.
- Le recouvrement de l'adoucissement observé est très lent et la récupération complète n'est jamais atteinte.
- L'adoucissement est également observé pour des chargements non dilatants de type compression et cisaillement

Le tableau 1.1.2 propose un résumé et une représentation schématique des principales interprétations physiques données à l'effet Mullins. Ces interprétations physiques impliquent des changements de la microstructure, mais elles sont principalement dédiés aux caoutchoucs renforcés et ne peuvent s'étendre par exemple aux cas des polymères cristallisant. Comme le tableau 1.1.2 le montre, à ce jour, il n'existe pas de consensus pour la description physique de ce phénomène complexe. Cependant, il peut être trivialement attribuée à la réorganisation du réseau au cours du chargement. L'explication la plus soutenue dans la littérature est celle de Blanchard et Parkinson (1952) et Bueche (1960; 1961). Ces auteurs ont considéré l'amplification de la déformation locale au sein de la matrice pour expliquer l'effet Mullins par un mécanisme d'endommagement des chaînes polymériques attachées à des charges adjacentes. Ils suggèrent, en effet, que la rupture d'une chaîne intervient au moment où la distance entre deux charges atteint l'extension limite de celle-ci. Par conséquent, vu la différence des longueurs des chaînes dans le réseau, cette rupture peut se produire à tous les niveaux de déformation, ce qui explique l'adoucissement de la contrainte observé entre deux chargements consécutifs en déformation. Simo (1987) et Govindjee et Simo (1991) en

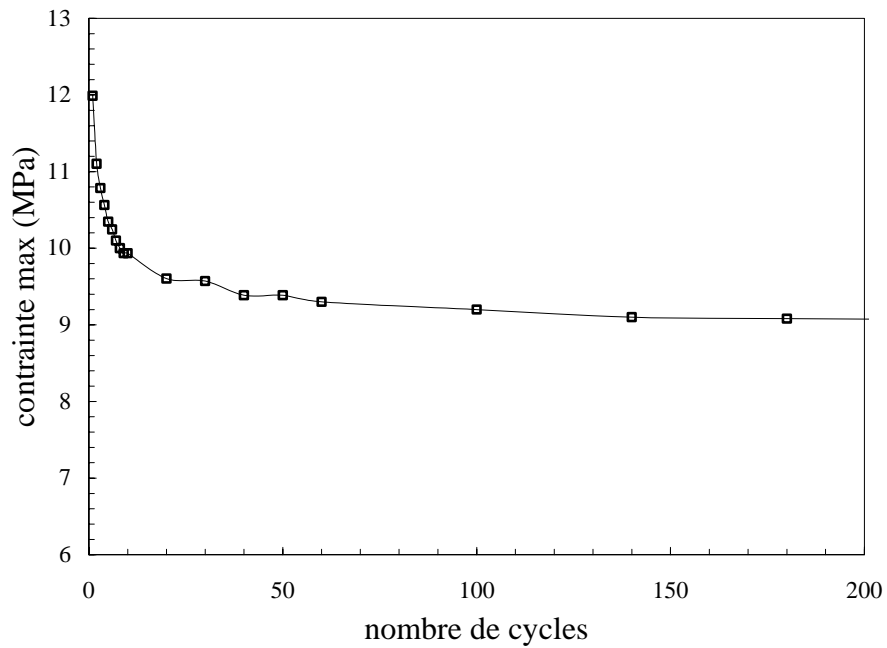
proposant une extension du modèle d'évolution du réseau de Bueche (1960; 1961), ont estimé que la déformation induite par le mouvement relatif entre les charges et la matrice de caoutchouc est la cause de l'adoucissement de la contrainte. Harwood et al. (1967) a suggéré que l'adoucissement est entièrement dû à la réorganisation du réseau moléculaire dans la matrice caoutchoutique. Mullins (1948; 1969) et Mullins et Tobin (1957) ont considéré le matériau élastomère comme un composite constitué par des phases molles et dures. Ils ont postulé que le réseau caoutchoutique évolue sous l'effet du chargement : une partie de la phase dure est cassée et transformée en phase molle, la fraction de phase molle augmentant avec l'augmentation de la déformation. L'idée principale de ce modèle à deux phases a été d'intégrer une fonction d'adoucissement qui contrôle la transformation de phases, et qui peut être considéré comme une règle d'évolution de l'endommagement. Cette procédure implique, les justifications physiques données par Johnson et Beatty (1993) et Beatty et Krishnaswamy (2000), que le réseau élastomérique a un réarrangement quasi-irréversible en raison de la limite d'extensibilité. Plus tard, Qi et Boyce (2004) ont adopté le concept de Mullins et Tobin (1957) et ont introduit une évolution de la fraction volumique du domaine mou pendant l'étirement. Marckmann et al. (2002) et Chagnon et al. (2006) ont proposé une théorie d'altération du réseau pour l'effet Mullins, en négligeant les effets de l'hystérésis et visqueux. La théorie utilisée propose une évolution des paramètres à base physique du modèle à huit chaînes de Arruda et Boyce (1993). Cette approche tient compte de deux types de liaisons, les enchevêtrements et les liens faibles dus à des interactions intermoléculaires. Au cours de l'étirement certaines chaînes atteignent la limite de leur extensibilité et de la même manière certaines liaisons faibles se brisent. Par conséquent, le nombre de liaisons rigides entre enchevêtrements diminue, cette dernière quantité étant directement pris en compte dans le modèle à huit chaînes de Arruda et Boyce (1993). Plus récemment, la théorie de l'altération du réseau a également été employée par Belbachir et al. (2010) pour capturer le comportement mécanique d'un biopolymère soumis à des irradiations UV.

1.3.4.4. Adoucissement cyclique

Comme la figure 1.1.15 le montre l'adoucissement cyclique consiste en une dégradation des propriétés mécaniques des polymères après sollicitation cyclique au même niveau de déformation, le phénomène étant exacerbé à mesure que la déformation augmente. On remarque aussi une chute du niveau de l'énergie dissipée à chaque cycle.



(a)



(b)

Figure 1.1.15. Comportement cyclique d'un élastomère chargé de noir de carbone : (a) courbe contrainte-déformation jusqu'à 250 cycles, (b) évolution de la contrainte maximale en fonction du nombre de cycles.

2. Etat de l'art sur la modélisation du comportement

Une loi de comportement est une formulation mathématique des observations expérimentales reliant à tout instant t les états de contrainte σ et déformation ε . Le temps devient une variable lorsque les matériaux sont visqueux, comme dans le cas des polymères, l'expression de la loi de comportement en vitesse devenant indispensable. Elle relie alors le taux de contrainte au taux de déformation. La partie élastique de la déformation relie linéairement l'état de contrainte. Avec cette dernière condition, il devient nécessaire de disposer de l'expression du taux de déformation non élastique à retrancher du taux de déformation totale pour calculer le taux de contrainte.

En considérant que la déformation non élastique est isochore, on s'intéresse uniquement au taux de déformation plastique par cisaillement $\dot{\gamma}^p$. Sans préjuger de son orientation et de son amplitude, $\dot{\gamma}^p$ s'écrit :

$$\dot{\gamma}^p = f(T, P, \dots, t) \quad (1.2.1)$$

En général, pour les polymères, f est fonction de nombreux facteurs influents tels que la température T , le temps t ou la pression P et des facteurs internes tels que la cristallinité, la longueur des chaînes ou le taux d'enchevêtrement des chaînes. L'identification de f peut s'effectuer de façon purement phénoménologique ou repose sur des arguments physiques.

2.1. Déformation et contrainte en transformations finies

2.1.1. Cinématique

Avant tout établissement de lois de comportement en déformations finies, il est nécessaire de faire la distinction entre la configuration déformée et initiale. Dans le cas où la configuration choisie, pour écrire les équations d'équilibre et calculer les déformations et les contraintes, est la configuration initiale on utilisera le terme de description lagrangienne. A l'inverse, on parlera de description eulérienne lorsque la configuration choisie est la configuration actuelle.

Soit un solide en mouvement d'une configuration initiale C_0 à une configuration actuelle C_t (figure 1.2.1). Ce mouvement est décrit par la fonction $\mathbf{x} = \mathbf{x}(\mathbf{X}, t)$ donnant la position \mathbf{x} de la particule M à l'instant courant t qui, avant déformation, occupait la position \mathbf{X} . A un instant t donné, cette fonction décrit la déformation du solide entre sa configuration de référence C_0 et sa configuration actuelle C_t .

Ainsi, on peut définir le vecteur déplacement comme :

$$\mathbf{u}(\mathbf{X}, t) = \mathbf{x}(\mathbf{X}, t) - \mathbf{X} \quad (1.2.2)$$

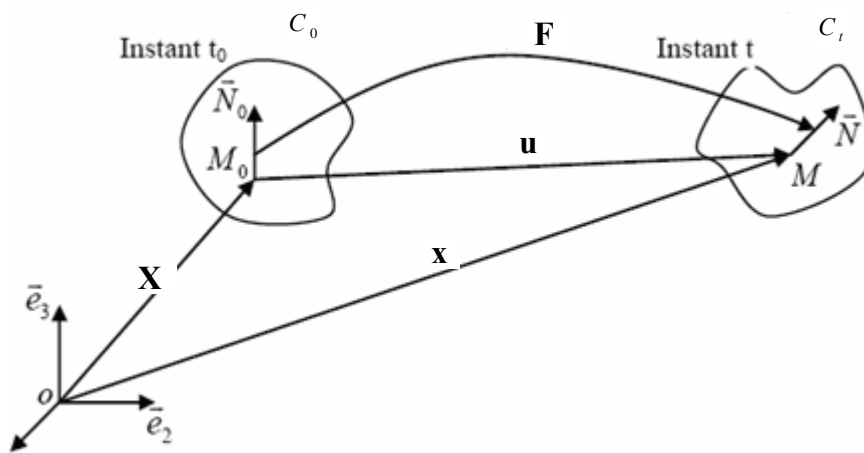


Figure 1.2.1. Configuration initiale C_0 et transformation dans la configuration actuelle C_t .

Dans le cadre de la théorie des grandes déformations, nous considérons le tenseur gradient de déformation \mathbf{F} donné par :

$$\mathbf{F} = \frac{\partial \mathbf{x}}{\partial \mathbf{X}} \quad (1.2.3)$$

Le déterminant de \mathbf{F} , noté J (pour Jacobien), représente la variation locale de volume et est toujours positif en vertu du principe de non-interpénétration de la matière :

$$J = \det \mathbf{F} > 0 \quad (1.2.4)$$

Suivant l'approche proposée par Lee (1969), le tenseur gradient de déformation totale \mathbf{F} est décomposé en une partie élastique \mathbf{F}^e et une partie plastique \mathbf{F}^p de façon multiplicative :

$$\mathbf{F} = \mathbf{F}^e \mathbf{F}^p \quad (1.2.5)$$

La figure 1.2.2 représente schématiquement le principe de la décomposition multiplicative sur un chemin de chargement. Les parties élastique \mathbf{F}^e et plastique \mathbf{F}^p du tenseur gradient de déformation totale peuvent être écrites en utilisant la décomposition polaire :

$$\mathbf{F}^e = \mathbf{V}^e \mathbf{R}^e \quad (1.2.6)$$

et

$$\mathbf{F}^p = \mathbf{V}^p \mathbf{R}^p \quad (1.2.7)$$

où \mathbf{V} et \mathbf{R} sont respectivement les composantes d'extension et de rotation.

Le tenseur gradient de vitesse \mathbf{L} est exprimé de la façon suivante :

$$\mathbf{L} = \dot{\mathbf{F}}\mathbf{F}^{-1} = \mathbf{D} + \mathbf{W} \quad (1.2.8)$$

où \mathbf{D} est le tenseur taux de déformation (partie symétrique) et \mathbf{W} est le tenseur taux de rotation (partie antisymétrique) de \mathbf{L} .

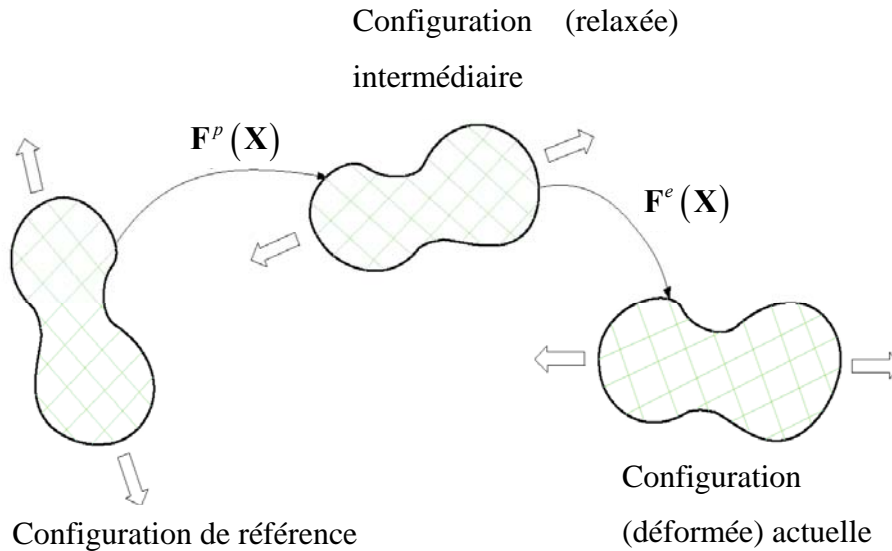


Figure 1.2.2. Décomposition du tenseur gradient de déformation totale \mathbf{F} suivant l'approche proposée par Lee (1969).

Le tenseur \mathbf{L} peut aussi être décomposé de la manière suivante :

$$\mathbf{L} = \mathbf{L}^e + \mathbf{L}^p \quad (1.2.9)$$

où \mathbf{L}^e et \mathbf{L}^p sont respectivement les tenseurs gradient de vitesse élastique et plastique :

$$\mathbf{L}^e = \dot{\mathbf{F}}^e \mathbf{F}^{e-1} = \mathbf{D}^e + \mathbf{W}^e \quad (1.2.10)$$

et

$$\mathbf{L}^p = \mathbf{F}^e \dot{\mathbf{F}}^p \mathbf{F}^{p-1} \mathbf{F}^{e-1} = \mathbf{D}^p + \mathbf{W}^p \quad (1.2.11)$$

Si l'écoulement plastique est irrotationnel, le tenseur taux de rotation plastique \mathbf{W}^p est supposé égal à zéro.

2.1.2. Description des déformations et des contraintes

2.1.2.1. Tenseurs des déformations

Les tenseurs des déformations permettent de caractériser complètement la transformation subie par le solide entre la configuration initiale C_0 à une configuration actuelle C_t . On considère deux vecteurs $d\mathbf{X}_1$ et $d\mathbf{X}_2$ dans la configuration de référence se transformant respectivement en $d\mathbf{x}_1$ et $d\mathbf{x}_2$ après déformation.

Nous pouvons définir différentes quantités. Relativement à la configuration de référence, le tenseur des dilatations de Cauchy-Green droit $\mathbf{C} = \mathbf{F}^T \mathbf{F}$ mesure les variations de longueur et d'angle :

$$d\mathbf{x}_1 d\mathbf{x}_2 = (\mathbf{F} d\mathbf{X}_1)(\mathbf{F} d\mathbf{X}_2) = (d\mathbf{X}_1 \mathbf{F}^T)(\mathbf{F} d\mathbf{X}_2) = d\mathbf{X}_1 \mathbf{C} d\mathbf{X}_2 \quad (1.2.12)$$

Relativement à la configuration actuelle, cette mesure se fait par le tenseur des dilatations de Cauchy-Green gauche $\mathbf{B} = (\mathbf{F}^{-1})^T \mathbf{F}^{-1}$:

$$d\mathbf{X}_1 d\mathbf{X}_2 = (\mathbf{F}^{-1} d\mathbf{x}_1)(\mathbf{F}^{-1} d\mathbf{x}_2) = (d\mathbf{x}_1 (\mathbf{F}^{-1})^T)(\mathbf{F}^{-1} d\mathbf{x}_2) = d\mathbf{x}_1 \mathbf{B}^{-1} d\mathbf{x}_2 \quad (1.2.13)$$

A partir de ces deux tenseurs, deux mesures classiques de la déformation sont définies : un tenseur lagrangien \mathbf{E} , dit de Green-Lagrange, et un tenseur eulérien \mathbf{A} , dit d'Euler-Almansi :

$$\begin{aligned} \mathbf{E} &= \frac{1}{2}(\mathbf{C} - \mathbf{I}) \\ \mathbf{A} &= \frac{1}{2}(\mathbf{I} - \mathbf{B}^{-1}) \end{aligned} \quad (1.2.14)$$

où \mathbf{I} représente le tenseur identité.

Chaque tenseur de déformation ainsi défini est symétrique, défini positif et possède donc six composantes indépendantes. Considérons le tenseur des déformations de Cauchy-Green droit \mathbf{C} , ses invariants principaux I_1 , I_2 et I_3 , apparaissent dans l'expression caractéristique de \mathbf{C} soit :

$$\det(\mathbf{C} - \lambda \mathbf{I}) = -\lambda^3 + I_1 \lambda^2 - I_2 \lambda + I_3 \quad (1.2.15)$$

Si on note C_1 , C_2 et C_3 les valeurs propres positives de \mathbf{C} , et λ_1 , λ_2 et λ_3 les valeurs propres de \mathbf{F} , nous définissons les invariant principaux :

$$I_1 = \text{tr}(\mathbf{C}) = C_1 + C_2 + C_3 = \lambda_1^2 + \lambda_2^2 + \lambda_3^2 \quad (1.2.16)$$

$$I_2 = \frac{1}{2} [\text{tr}(\mathbf{C})^2 - \text{tr}(\mathbf{C}^2)] = C_1 C_2 + C_2 C_3 + C_1 C_3 = \lambda_1^2 \lambda_2^2 + \lambda_2^2 \lambda_3^2 + \lambda_1^2 \lambda_3^2 \quad (1.2.17)$$

$$I_3 = \det(\mathbf{C}) = C_1 C_2 C_3 = \lambda_1^2 \lambda_2^2 \lambda_3^2 = J^2 \quad (1.2.18)$$

2.1.2.2. Tenseurs des contraintes

Les contraintes autour d'un point sont définies à partir de la résultante des efforts internes à travers un élément de surface relatif à une configuration donnée (figure 1.2.3). Comme pour le cas des déformations, on peut utiliser soit la description lagrangienne ou bien eulérienne ou même une formulation mixte. Rappelons que les trois configurations sont identiques dans le cas des petites déformations.

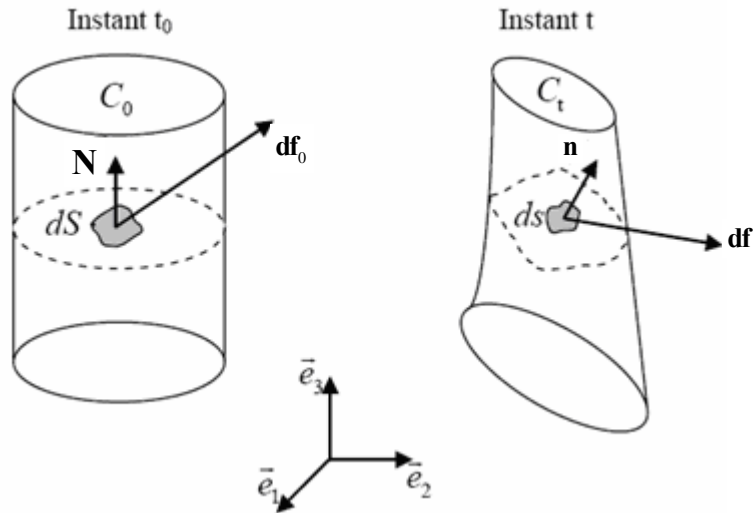


Figure 1.2.3. Vecteurs de contrainte dans la configuration initiale et déformée.

Dans la configuration actuelle les efforts \mathbf{df} internes s'exercent sur une surface orientée $ds\mathbf{n}$ qui nous conduira à l'expression du tenseur symétrique des contraintes de Cauchy :

$$\mathbf{df} = \mathbf{T}n ds \quad (1.2.19)$$

En grandes transformations, les formules de transport convectif permettent de réécrire l'expression des surfaces et des efforts internes sur la configuration initiale et donc d'introduire deux nouveaux tenseurs de contraintes. Le tenseur non symétrique de Piola-Kirchhoff de première espèce ou tenseur de Boussinesq \mathbf{II} est défini à partir des efforts internes dans la configuration initiale, transformée inverse de la surface orientée $ds\mathbf{n}$:

$$d\mathbf{f} = \mathbf{II}N dS \quad (1.2.20)$$

En transformant artificiellement la résultante des efforts internes sur la configuration initiale, on définit le tenseur symétrique de Piola-Kirchhoff de seconde espèce \mathbf{S} qui est dépourvu de sens physique mais qui est purement lagrangien :

$$d\mathbf{f} = \mathbf{S}N dS \quad (1.2.21)$$

Ces trois tenseurs de contraintes sont liés par la relation suivante :

$$\mathbf{T} = J^{-1}\mathbf{IIF}^T = J^{-1}\mathbf{FSF}^T \quad (1.2.22)$$

2.2. Classification des modèles de comportement

Le domaine de validité des lois de comportement avancées est souvent limité, au vu du comportement mécanique complexe des polymères. Les simplifications peuvent concerner entre autres :

- **Le champ de sollicitation.** Des lois de comportement unidirectionnelles associées à un essai particulier sont proposées, simplifiant les essais modélisés en une simple expression scalaire (une seule composante de contrainte et/ou déformation - traction, compression, cisaillement, torsion -).
- **La dépendance en fonction des variables expérimentales.** Du fait du nombre de paramètres considérable d'une loi de comportement prenant en compte l'influence de plusieurs variables expérimentales, les auteurs ont choisi de limiter leurs champs d'études.
- **La décomposition de la déformation totale.** Les différentes composantes identifiées dans la partie observation expérimentale seront alors négligées. Souvent, seule la déformation viscoplastique est prise en considération.
- **Le type de comportement étudié.** Les modèles décrivant la viscoélasticité linéaire/non linéaire et les modèles décrivant la réponse comprenant la composante

permanente de déformation sont dissociés. Les modèles sont départagés respectivement en modèles viscoélasto-viscoplastiques et élasto-viscoplastiques suivant qu'ils tentent ou non de retranscrire l'effet viscoélastique.

Dans ce paragraphe nous présentons des formulations de loi de comportement pour les polymères par des approches rhéologiques par éléments discrets. La rhéologie, étude des écoulements, permet de relier les contraintes, les déformations, et leurs dérivées, et caractérise la nature des comportements. En effet, le principe des modèles rhéologiques est de représenter de façon simplifiée le comportement des polymères à partir d'un assemblage d'éléments mécaniques (des briques élémentaires) tels que des ressorts et des amortisseurs. Ainsi, les comportements les plus complexes se bâtissent ensuite à partir des briques élémentaires en formant des assemblages de ressorts et/ou amortisseurs en parallèle ou en série. La conception d'un modèle complet nécessite enfin le choix d'une généralisation qui permette de passer de l'étude sous chargement uniaxial à celle des chargements multiaxiaux. Ces formulations ont été principalement utilisées pour reproduire le comportement aux faibles déformations, à savoir les essais de fluage et de spectrométrie mécanique et donc le comportement viscoélastique.

Les comportements « de base » des polymères cités dans la section précédente peuvent être représentés par des systèmes mécaniques élémentaires. Comme la figure 1.2.4 le schématise, les éléments les plus courants sont :

- Le ressort qui symbolise l'élasticité linéaire, l'élasticité non linéaire et/ou l'hyperélasticité (figure 1.2.4a).
- L'amortisseur qui schématise la viscosité, linéaire (figure 1.2.4b) ou non linéaire (figure 1.2.4c).
- Le patin qui modélise l'apparition de déformations permanentes lorsque la charge est suffisante (figure 1.2.4d). Le comportement est dit plastique parfait si le seuil d'apparition de la déformation permanente n'évolue pas avec le chargement. Le modèle est rigide parfaitement plastique si de plus, la déformation avant écoulement est négligée.

Des modèles rhéologiques sont formés en combinant ces éléments entre eux, ils représentent des systèmes mécaniques servant de support dans la définition des modèles. Les phénomènes physiques qui sont à la base des déformations, n'ont aucun rapport avec la représentation. Néanmoins, ces modèles rhéologiques permettent de comprendre la nature des relations à introduire pour chaque type de comportement, en pratiquant par exemple l'exercice qui consiste à combiner deux à deux les modèles élémentaires.

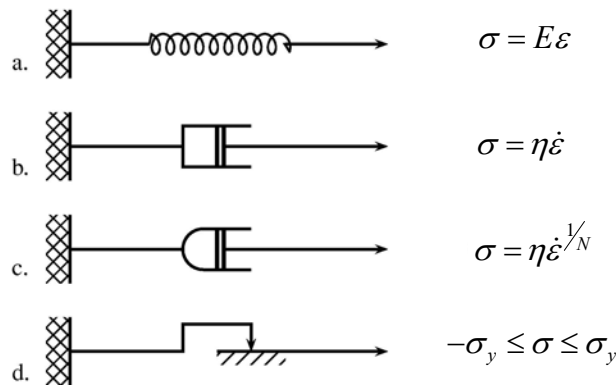


Figure 1.2.4. « Briques de base » pour la représentation des comportements.

On peut distinguer parmi trois types de comportement modélisés par des modèles rhéologiques :

Plasticité indépendante du temps :

$$\mathbf{L} = \mathbf{L}^e + \mathbf{L}^p \text{ et } \mathbf{L}^p = f(\dots) d\boldsymbol{\sigma} \quad (1.2.23)$$

Elasto-viscoplastique :

$$\mathbf{L} = \mathbf{L}^e + \mathbf{L}^p \text{ et } \mathbf{L}^p = f(\dots) dt \quad (1.2.24)$$

Viscoélasticité :

$$F(\boldsymbol{\sigma}, \dot{\boldsymbol{\sigma}}, \mathbf{L}, \dot{\mathbf{L}}) = 0 \quad (1.2.25)$$

Les comportements les plus complexes sont des combinaisons de ces trois modèles rhéologiques.

2.2.1. Elasto-plasticité en grandes déformations

L'association d'un ressort et d'un patin en série (figure 1.2.5a) produit un comportement élastique parfaitement plastique, modélisé à la figure 1.2.5c.

Le système ne peut pas supporter une contrainte dont la valeur absolue est plus grande que σ_y . Pour caractériser ce modèle, il faut considérer une fonction de charge f dépendant de la seule variable σ , et définie par :

$$f(\sigma) = |\sigma| - \sigma_y \quad (1.2.26)$$

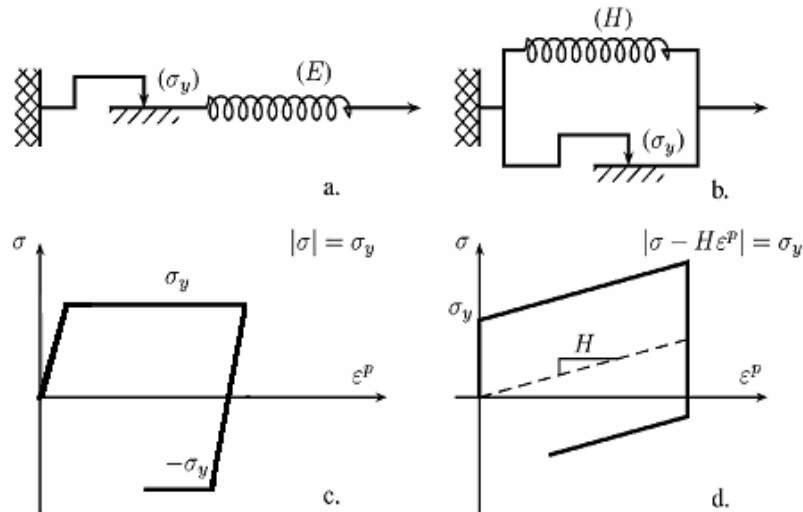


Figure 1.2.5. Association en série ou parallèle de patin et ressort.

Le domaine d'élasticité correspond aux valeurs négatives de f , et le comportement du système se résume :

$$\text{Domaine élastique si : } f < 0 \qquad \dot{L} = \dot{L}^e = \frac{\dot{\sigma}}{E} \qquad (1.2.27)$$

$$\text{Décharge élastique si : } f = 0 \text{ et } \dot{f} < 0 \qquad \dot{L} = \dot{L}^e = \frac{\dot{\sigma}}{E} \qquad (1.2.28)$$

$$\text{Écoulement plastique si : } f = 0 \text{ et } \dot{f} = 0 \qquad \dot{L} = \dot{L}^p \qquad (1.2.29)$$

L'association en parallèle d'un ressort et d'un patin, modèle de Prager (figure 1.2.5b), correspond au comportement illustré à la figure 1.2.5d. Dans ce cas, l'écrouissage est linéaire. Il est dit cinématique, car dépendant de la valeur actuelle de la déformation plastique. Sous cette forme, le modèle est rigide plastique. Il devient élasto-plastique si l'on rajoute un ressort en série. Pour caractériser ce modèle, il faut considérer une fonction de charge f dépendant de la contrainte σ et de la contrainte interne X et définie par :

$$\begin{aligned} f(\sigma) &= |\sigma - X| - \sigma_y \\ X &= H L^p \end{aligned} \qquad (1.2.30)$$

où H est la pente de la droite contrainte-déformation (figure 1.2.4d).

Il n'y aura présence d'écoulement plastique que si on vérifie à la fois $f = 0$ et $\dot{f} = 0$. Ce qui nous conduit à la condition suivante :

$$\frac{\partial f}{\partial \sigma} \dot{\sigma} + \frac{\partial f}{\partial X} \dot{X} = 0 \qquad (1.2.31)$$

D'où :

$$\text{signe}(\sigma - X)\dot{\sigma} + \text{signe}(\sigma - X)\dot{X} = 0 \quad (1.2.32)$$

soit $\dot{\sigma} = \dot{X}$.

Le taux de déformation plastique est fonction du taux de contrainte :

$$\dot{L}^p = \frac{\dot{\sigma}}{H} \quad (1.2.33)$$

Finalement, le taux de déformation plastique en fonction de la vitesse de déformation s'écrit :

$$\dot{L}^p = \frac{E}{E + H} \dot{L} \quad (1.2.34)$$

Dans le cas général les conditions de charge-décharge s'exprime alors :

$$\text{Domaine élastique si : } f(\sigma, A_i) < 0 \quad \dot{L} = \dot{L}^e = \frac{\dot{\sigma}}{E} \quad (1.2.35)$$

$$\text{Décharge élastique si : } f(\sigma, A_i) = 0 \text{ et } \dot{f}(\sigma, A_i) < 0 \quad \dot{L} = \dot{L}^e = \frac{\dot{\sigma}}{E} \quad (1.2.36)$$

$$\text{Ecoulement plastique si : } f(\sigma, A_i) = 0 \text{ et } \dot{f}(\sigma, A_i) = 0 \quad \dot{L} = \frac{\dot{\sigma}}{E} + \dot{L}^p \quad (1.2.37)$$

Le terme A_i représente les paramètres d'écrouissage. La condition de cohérence s'écrit : $\dot{f}(\sigma, A_i) = 0$.

2.2.2. Viscoélasticité en grandes déformations

Le modèle de Maxwell regroupe un amortisseur et un ressort en série (figure 1.2.6a), celui de Voigt un amortisseur et un ressort en parallèle (figure 1.2.6b). Leurs équations respectives sont :

$$\text{Eléments en séries, modèle de Maxwell : } \dot{L} = \frac{\dot{\sigma}}{E_0} + \frac{\sigma}{\eta} \quad (1.2.38)$$

$$\text{Eléments en parallèles, modèle de Voigt : } \sigma = HL + \eta\dot{L} \text{ ou } \dot{L} = \frac{(\sigma - HL)}{\eta} \quad (1.2.39)$$

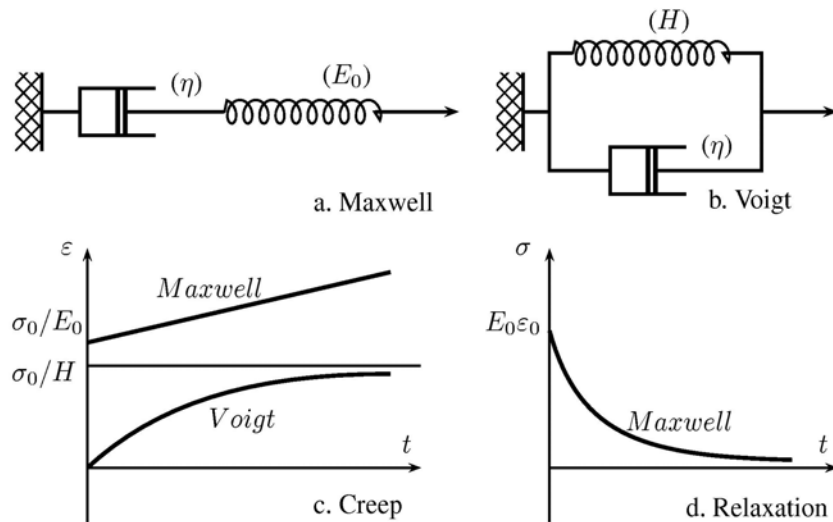


Figure 1.2.6. Principe des modèles de Maxwell et Voigt.

Dans le cas de modèles et de chargement aussi simples, la réponse est obtenue instantanément par intégration directe des équations différentielles. Les formules obtenues sont respectivement, pour le modèle de Maxwell :

$$\text{Fluage sous une contrainte } \sigma_0 : \quad L = \frac{\sigma_0}{E} + \frac{\sigma_0}{\eta} t \quad (1.2.40)$$

$$\text{Relaxation à la déformation } \varepsilon_0 : \quad \sigma = L_0 E_0 \exp\left[-\frac{t}{\tau}\right] \quad (1.2.41)$$

Pour le modèle de Voigt :

$$\text{Fluage sous une contrainte } \sigma_0 : \quad L = \left(\frac{\sigma_0}{H}\right) \left(1 - \exp\left[-\frac{t}{\tau'}\right]\right) \quad (1.2.42)$$

Les constantes $\tau = \eta/E_0$ et $\tau' = \eta/H$ sont homogènes à un temps, τ désignant le temps de relaxation du modèle de Maxwell et τ' désignant le temps de fluage du modèle de Voigt.

2.2.3. Elasto-viscoplasticité en grandes déformations

La figure 1.2.7a indique comment, en rajoutant un simple amortisseur, il est possible de passer très simplement d'un modèle ayant un comportement plastique indépendant du temps à un modèle viscoplastique : le modèle obtenu est le modèle de Bingham généralisé.

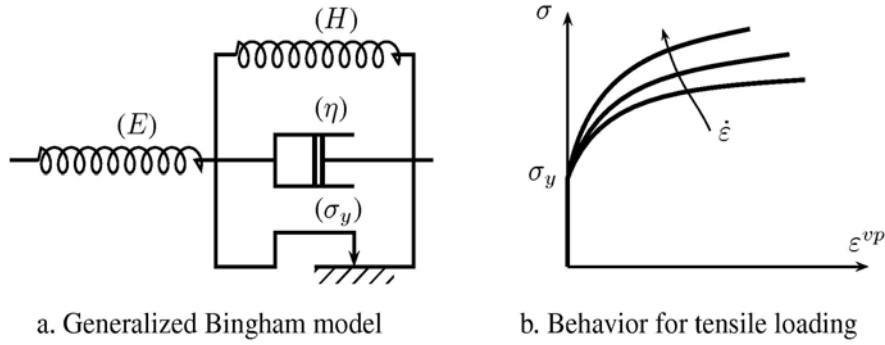


Figure 1.2.7. Modèle de Bingham généralisé.

La déformation élastique se lit aux bornes du ressort de caractéristique E , la déformation viscoplastique, que l'on nommera L^{vp} , aux bornes de l'assemblage en parallèle. La détermination des équations de ce modèle s'effectue en considérant les équations de comportement individuelles de chacun des éléments :

$$X = HL^{vp} \quad \sigma_v = \eta \dot{L}^{vp} \quad \sigma_p \leq \sigma_y \quad (1.2.43)$$

où X , σ_v et σ_p sont respectivement les contraintes dans le ressort de caractéristique H , dans l'amortisseur et dans le patin, avec $\sigma = X + \sigma_v + \sigma_p$.

Il y a donc comme pour le modèle plastique un domaine d'élasticité. On distingue trois régimes de fonctionnement :

$$(a) L^{vp} = 0 \quad |\sigma_p| = |\sigma - HL^{vp}| \leq \sigma_y \quad (1.2.44)$$

$$(b) L^{vp} > 0 \quad \sigma_p = \sigma - HL^{vp} - \eta \dot{L}^{vp} = \sigma_y \quad (1.2.45)$$

$$(c) L^{vp} < 0 \quad \sigma_p = \sigma - HL^{vp} - \eta \dot{L}^{vp} = -\sigma_y \quad (1.2.46)$$

Le cas (a) correspond à l'intérieur du domaine d'élasticité ($\sigma_p \leq \sigma_y$) ou à un état de décharge élastique ($|\sigma_p| = \sigma_y$ et $|\dot{\sigma}_p| \leq 0$), les deux autres cas à l'écoulement ($|\sigma_p| = \sigma_y$ et $|\dot{\sigma}_p| = 0$). En posant $\langle x \rangle = \max(x, 0)$, les trois cas peuvent se résumer par une seule expression :

$$\eta \dot{L}^{vp} = \langle |\sigma - X| - \sigma_y \rangle \text{signe}(\sigma - X) \quad (1.2.47)$$

ou encore :

$$\dot{L}^{vp} = \frac{\langle f \rangle}{\eta} \text{signe}(\sigma - X) \quad \text{avec} \quad f(\sigma, X) = |\sigma - X| - \sigma_y \quad (1.2.48)$$

En fluage, en supposant qu'on applique un échelon de contrainte (de 0 à $\sigma_0 > \sigma_y$) à partir d'un état de référence où toutes les déformations sont nulles, le modèle prévoit que la déformation viscoplastique est une exponentielle en fonction du temps t , avec un temps caractéristique $\tau_f = \eta/H$:

$$L^{vp} = \frac{\sigma_0 - \sigma_y}{H} \left(1 - \exp\left(-\frac{t}{\tau_f}\right) \right) \quad (1.2.49)$$

En relaxation, la réponse à un échelon de déformation (de 0 à L_0 tel que $EL_0 > \sigma_y$) fait cette fois intervenir un temps caractéristique de relaxation $\tau_r = \eta/(E + H)$:

$$\sigma = \sigma_y \frac{E}{E + H} \left(1 - \exp\left(-\frac{t}{\tau_r}\right) \right) + \frac{EL_0}{E + H} \left(H - E \exp\left(-\frac{t}{\tau_r}\right) \right) \quad (1.2.50)$$

Dans la littérature, de nombreuses lois ont tenté de représenter le comportement complexe élasto-viscoplastique des polymères dans sa globalité, c'est-à-dire sans négliger toute ou partie de la déformation élastique. Elles reposent pour la plupart sur un principe de séparation des variables et peuvent être formées de trois termes : une partie F caractérisant la sensibilité de la contrainte vis-à-vis de la déformation, une composante G traduisant la sensibilité de la contrainte vis-à-vis de la vitesse de déformation, et éventuellement un facteur d'échelle K_p .

Ces lois peuvent être divisées en trois catégories (Dahoun et al., 1991) :

- Les lois multiplicatives de type : $\sigma(L, \dot{L}) = K_p F(L) G(\dot{L})$ (Norton Hoff, Hollomon, Marciniak, Green, Wgoner).
- Les lois additives de type : $\sigma(L, \dot{L}) = F(L) + G(\dot{L})$ (Treloar, 1973; G'sell et Jonas, 1981).
- Les lois différentielles (G'sell et Jonas, 1981).

2.2.4. Elasticité en grandes déformations

Depuis 1940, de nombreux modèles ont été développés uniquement pour prédire la réponse hyperélastique des polymères en générale et plus particulièrement des élastomères. Un matériau élastique est dit hyperélastique lorsque sa courbe contrainte-déformation est non linéaire. Ces courbes sont obtenues par la dérivation d'un potentiel de déformation noté W .

Soit une structure soumise à un chargement mécanique, les différentes composantes du tenseur des contraintes peuvent être calculées à chaque point de cette structure, en dérivant ce potentiel par rapport aux différentes composantes du tenseur des déformations associé. En utilisant les équations classiques de la thermo-élasticité et avec l'hypothèse d'homogénéité, d'isotropie et d'incompressibilité des polymères la loi de comportement peut s'exprimer de trois manières. Dans la configuration initiale, en écrivant la seconde composante de la contrainte de Piola-Kirchhoff :

$$\mathbf{S} = 2 \frac{dW}{d\mathbf{C}} - p\mathbf{C}^{-1} \quad (1.2.51)$$

Dans la configuration actuelle, en écrivant la contrainte de Cauchy :

$$\mathbf{T} = 2 \frac{dW}{d\mathbf{B}} \mathbf{B} - p\mathbf{I} \quad (1.2.52)$$

Dans la configuration mixte, en écrivant la première composante de la contrainte de Piola-Kirchhoff :

$$\mathbf{\Pi} = 2 \frac{dW}{d\mathbf{F}} - p\mathbf{F}^{-T} \quad (1.2.53)$$

Parmi les modèles existant nous pouvons différencier les modèles macroscopiques (ou phénoménologiques) des modèles statistiques (macromoléculaires) introduisant des caractéristiques de la structure.

2.2.4.1. Modèles statistiques

Dans cette approche, dite physique, les modèles gaussiens et non gaussiens se distinguent. En 1953, Flory fut le premier à proposer un modèle statistique en utilisant une répartition gaussienne de la longueur des chaînes et une théorie de la déformation homogène pour décrire le comportement des matériaux élastomères. Il a considéré que l'entropie du réseau est la somme des entropies élémentaires des chaînes constitutives, que la longueur de chaque chaîne varie dans le même rapport que les dimensions du milieu macroscopique et que la déformation du matériau s'opère d'une façon isochore. En prenant en considération toutes ces hypothèses physiques, une densité d'énergie de déformation a été définie en fonction des trois elongations principales :

$$W = \frac{nk\theta}{2}(\lambda_1^2 + \lambda_2^2 + \lambda_3^2 - 3) \quad (1.2.54)$$

où n est le nombre de chaînes par unité de volume, k est la constante de Boltzmann et θ est la température absolue. Le module de cisaillement du matériau est représenté par le terme $nk\theta$. Le modèle à chaînes gaussien de Flory (1953) a le mérite d'être simple mais s'avère pertinent que pour de petites déformations. La répartition gaussienne considère que la chaîne moléculaire peut atteindre une longueur infinie, ce qui est physiquement impossible, c'est pour cette raison que la théorie statistique à chaînes non gaussienne est utilisée. Un certain nombre de modèles statistiques à chaînes non gaussiens, qui améliorent la prédiction pour une large gamme de déformation, ont été proposés pour caractériser le comportement des matériaux élastomères en transformation finie. L'élasticité d'une chaîne isolée a été décrite par Kuhn et Grun (1942), en considérant une chaîne macromoléculaire composée de N segments monomères de longueur l chacun. La longueur initiale d'une chaîne $r_0 = l\sqrt{N}$ est déterminée statistiquement, ainsi que sa longueur maximale déformée $r = lN$. L'expression de la densité d'énergie de déformation d'une chaîne isolée est formulée de la façon suivante :

$$W = nk\theta \left[\frac{\lambda}{\sqrt{N}} \beta + \ln \left(\frac{\beta}{\sinh(\beta)} \right) \right] \quad (1.2.55)$$

où $\beta = \mathcal{L}^{-1}(\lambda/\sqrt{N})$, $\lambda = r/r_0$ et \mathcal{L}^{-1} est l'inverse de la fonction de Langevin $\mathcal{L}(x) = \coth(x) - 1/x$.

Par conséquent, on peut calculer la contrainte de Cauchy dans une chaîne isolée :

$$T = \lambda \frac{\partial W}{\partial \lambda} = \lambda k\theta \sqrt{N} \mathcal{L}^{-1} \left(\frac{\lambda}{\sqrt{N}} \right) \quad (1.2.56)$$

En général, tous les modèles statistiques à chaînes non gaussiens sont fondés sur la théorie de Jernigan et Flory (1969) qui propose une forme modifiée de la probabilité de distribution de Kuhn et Grun (1942) permettant de prendre en compte la notion de limite d'extension de chaînes. Les modèles à p chaînes (figure 1.2.8) : Ces modèles statistiquement caractérisés considèrent la configuration moléculaire de chaînes orientées de façon aléatoire et utilisent la limite d'extensibilité des chaînes comme une mesure de la déformation. Ces modèles considèrent l'existence de p directions privilégiées, en supposant l'existence de n/p chaînes par unité de volume orientées, dans chacune de ces directions. La densité d'énergie de

déformation sur un réseau de chaîne est calculée en additionnant les efforts des n/p chaînes dans chaque direction.

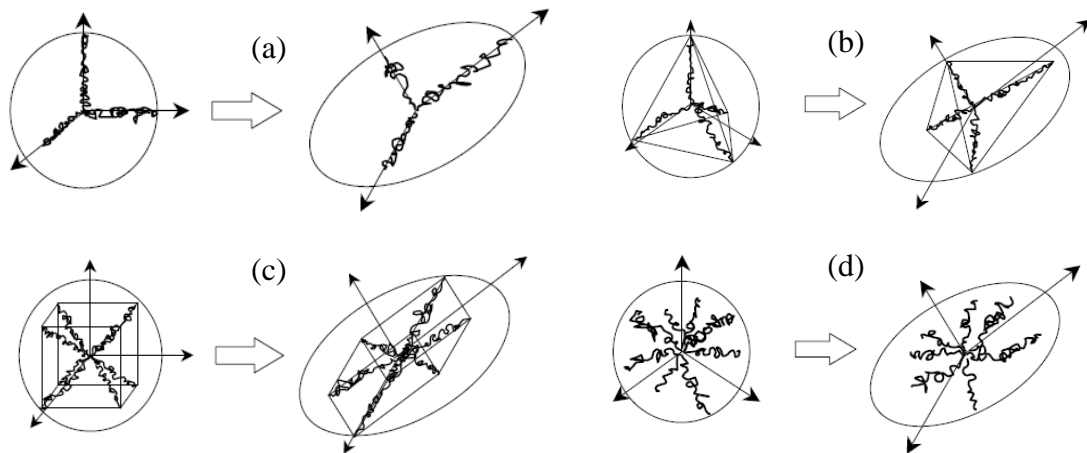


Figure 1.2.8. Modèle non gaussien de la littérature : (a) trois chaînes - James et Guth (1943), (b) quatre chaînes - Flory et Rehner (1943), (c) huit chaînes - Arruda et Boyce (1993), (d) réseau complet - Wu et van der Giessen (1993).

Parmi ces modèles, on peut citer par exemple le modèle à trois chaînes (figure 1.2.8a) de James et Guth (1943) qui ont écrit les contraintes principales de Cauchy en fonction des élongations correspondantes :

$$T_i = \frac{C_r \sqrt{N} \lambda_i}{3} \sqrt{N} \mathcal{L}^{-1} \left(\frac{\lambda}{\sqrt{N}} \right) - \tilde{p} \quad (1.2.57)$$

où $C_r = nk\theta$ est le module caoutchoutique et \tilde{p} est la pression hydrostatique.

Flory et Rehner (1943) ont proposé un modèle à quatre chaînes, construit d'une façon similaire que le modèle précédent. Le centre d'une sphère et les quatre sommets d'un tétraèdre définissent les directions privilégiées (figure 1.2.8b). La détermination de la relation contrainte-déformation de ce modèle est difficile à exprimer, et les résultats de ce modèle sont similaires à ceux du modèle à trois chaînes. Ces deux arguments font que le modèle à quatre chaînes n'est pas fréquemment utilisé.

Toujours en considérant la même approche, Arruda et Boyce (1993) ont développé le modèle à huit chaînes. Un cube inscrit dans une sphère unitaire et les demis diagonales du cube définissent les directions des privilégiées des chaînes (figure 1.2.8c). Du fait de la symétrie du modèle par rapport aux trois directions principales du tenseur de déformation font que les huit chaînes se déforment de la même quantité λ . La contrainte de Cauchy s'écrit alors de la manière suivante :

$$T_i = \frac{C_r \sqrt{N} \lambda_i^2}{3\lambda} \sqrt{N} \mathcal{L}^{-1} \left(\frac{\lambda}{\sqrt{N}} \right) - \tilde{p} \quad (1.2.58)$$

où la déformation de chaque chaîne s'écrit en fonction des élongations principales λ_1 , λ_2 et λ_3 :

$$\lambda = \sqrt{(\lambda_1^2 + \lambda_2^2 + \lambda_3^2)/3} \quad (1.2.59)$$

Wu et van der Giessen (1993) ont développé le modèle d'un réseau complet qui est relativement plus rigoureux. Dans ce modèle les directions privilégiées des chaînes sont définies d'une façon aléatoire à partir du centre dans une sphère unitaire (figure 1.2.8d). Pour obtenir la réponse contrainte-déformation du modèle une intégration numérique suivant toutes les directions de l'espace du domaine sphérique est nécessaire. Les contraintes principales de Cauchy se calculent par intégration sur le domaine :

$$\sigma_i = \frac{C_r \sqrt{N} \lambda_i^2}{4\pi} \int_0^\pi \int_0^{2\pi} \mathcal{L}^{-1} \left(\frac{\lambda}{\sqrt{N}} \right) \lambda^4 m_i^2 \sin(\theta) d\theta d\phi - \tilde{p} \quad \text{avec} \quad \begin{cases} m_1 = \sin(\theta) \cos(\phi) \\ m_2 = \sin(\theta) \sin(\phi) \\ m_3 = \cos(\theta) \end{cases} \quad (1.2.60)$$

où θ et ϕ sont les deux angles d'orientation des chaînes dans une configuration déformée et λ la déformation de chaque chaîne telle que:

$$\lambda^{-2} = \sum_{i=1}^3 m_i^2 / \lambda_i^2 \quad (1.2.61)$$

Wu et van der Giessen (1993) proposeront également une expression explicite de la contrainte en combinant les équations (1.2.57) et (1.2.58).

2.2.4.2. Modèles phénoménologiques

Mooney (1940) fut le premier à proposer explicitement un potentiel d'énergie de déformation à partir des invariants du tenseur des déformations de Cauchy-Green. Son expression était une extension du modèle de Treloar (1975). Rivlin (1948) a donné une forme généralisée de la dernière expression en utilisant la série de Taylor du potentiel de l'énergie de déformation. Plusieurs expressions du potentiel de l'énergie de déformation phénoménologiquement fondée ont été développées ces dernières années, Gent and Thomas (1958), Ogden (1972) et Yeoh (1990). Les expressions des densités d'énergie de déformation les plus utilisées sont présentées dans le tableau 1.2.1.

Mooney-Rivlin (1940)	$W(I_1, I_2) = C_1(I_1 - 3) + C_2(I_2 - 3)$
Néo-Hookéen (1943)	$W(I_1) = \frac{nk\theta}{2}(I_1 - 3) = \frac{\mu}{2}(I_1 - 3)$
Rivlin généralisé (1948)	$W(I_1, I_2) = \sum_{ij}^N C_{ij} (I_1 - 3)^i (I_2 - 3)^j$
Yeoh (1990)	$W(I_1, I_2) = C_{10}(I_1 - 3) + C_{20}(I_2 - 3)^2 + C_{30}(I_1 - 3)^3$
Ogden (1972)	$W(\lambda_1, \lambda_2, \lambda_3) = \sum_{i=1}^N \frac{\alpha_i}{\mu_i} (\lambda_1^{\alpha_i} + \lambda_2^{\alpha_i} + \lambda_3^{\alpha_i} - 3)$
Gent (1958)	$W = -\frac{E}{6}(\mathbf{I}_m - 3) \ln \left(1 - \frac{\mathbf{I}_1 - 3}{\mathbf{I}_m - 3} \right)$

Tableau 1.2.1. Modèle phénoménologique de comportement hyperélastique.

2.2.5. Couplage des différentes théories

Parmi les modèles de déformation proposés pour les polymères rigides (thermoplastiques), deux démarches fondamentales sont envisagées dont l'une privilégie le caractère intramoléculaire des interactions régissant chaque processus, l'autre introduit la notion de défauts en analogie avec les concepts de dislocations développés dans les métaux cristallins et les interactions sont alors de nature intermoléculaires. Même si la véritable nature des mécanismes moléculaires, mis en jeu lors de la déformation des polymères, n'est pas très bien connue du fait de la difficulté à étudier ces structures. Il est cependant certain qu'elle résulte de deux contributions essentielles : l'extension d'un réseau macromoléculaire et le franchissement de barrières énergétiques par les segments de chaînes en phase solide, si on en juge par la forte recouvrance des déformations à une température supérieure à T_g , et par la forte dépendance en température et en vitesse de déformation. La première contribution évoquée, peut également se justifier si on regarde le polymère comme un matériau constitué de longues chaînes de molécules qui s'imbriquent les unes dans les autres et qui vont évidemment tendre à s'aligner avec l'accroissement de la déformation. En effet, si on atteint la limite élastique les liaisons de van der Waals se rompent, libérant ainsi la rotation des chaînes. L'augmentation entropique provoquée par la réorganisation structurale induit alors

peu à peu le durcissement du matériau accompagné par une déformation plastique par cisaillement.

Depuis quelques années, certaines formulations combinant les théories évoquées précédemment ont vu le jour dans le but de relier les propriétés microstructurales au comportement macroscopique non linéaire. En particulier, le phénomène de durcissement dans les polymères étant associé à une réorientation progressive des chaînes macromoléculaires, la plupart des modèles rendent compte de ce durcissement structural à partir d'une élasticité caoutchoutique, combinant hyperélasticité pour le durcissement et viscoplasticité (voire viscoélasticité et viscoplasticité) pour la résistance intermoléculaire.

La première contribution tridimensionnelle est due à Boyce et al. (1988) par généralisation du modèle de Haward et Thackray (1968). Le modèle développé par Boyce et al. (1988) est basé sur la superposition d'une résistance isotrope et d'une résistance entropique simulant le durcissement du matériau en grandes déformations. Le modèle peut être écrit, en analogie avec la formulation générale des lois viscoplastiques appliquées aux métaux, de la manière suivante :

$$\mathbf{D}^p = \frac{3}{2} \dot{\gamma}^p \frac{\boldsymbol{\sigma}' - \mathbf{b}'}{J(\boldsymbol{\sigma} - \mathbf{b})} \quad (1.2.62)$$

où $\dot{\gamma}^p$ représente la vitesse de cisaillement liée à la résistance isotrope déduite du modèle d'Argon (Argon, 1973) et qui simule l'inclusion de défauts dans les chaînes moléculaires lors du cisaillement, ces défauts pouvant être représentés comme étant un double décrochement le long des chaînes.

Le terme $\dot{\gamma}^p$ s'exprime par :

$$\dot{\gamma}^p = \dot{\gamma}_0 \exp \left[-\frac{A\tilde{s}}{\theta} \left(1 - \left(\frac{J(\boldsymbol{\sigma} - \mathbf{b})}{\sqrt{3}\tilde{s}} \right)^{\frac{5}{6}} \right) \right] \quad (1.2.63)$$

où $\dot{\gamma}_0$ est un terme pré-exponentiel, A est un paramètre d'amortissement et θ est la température absolue.

La résistance entropique est définie à partir d'un modèle hyperélastique macromoléculaire à travers le tenseur des contraintes \mathbf{b} lié à l'orientation des chaînes, et traduisant l'anisotropie par consolidation directionnelle, et décrit selon les directions principales par un modèle moléculaire à trois chaînes incompressible :

$$b_i^{3-ch} = C_r \frac{\sqrt{N}}{3} \left[\lambda_i^p \mathcal{L}^{-1} \left(\frac{\lambda_i^p}{\sqrt{N}} \right) - \frac{1}{3} \sum_{j=1}^3 \lambda_j^p \mathcal{L}^{-1} \left(\frac{\lambda_j^p}{\sqrt{N}} \right) \right] \quad (1.2.64)$$

Le terme C_r est le module caoutchoutique, N le nombre de liaisons rigides entre les enchevêtrements, λ_i^p la valeur propre du tenseur des déformations plastiques pures et \mathcal{L}^{-1} l'inverse de la fonction de Langevin définie par : $\mathcal{L}(\beta) = \coth \beta - 1/\beta$.

La variable interne \tilde{s} est définie par :

$$\tilde{s} = s + \alpha P \quad (1.2.65)$$

où α est un terme de dépendance à la pression hydrostatique, et s représente la résistance au cisaillement tout au long de la déformation.

Dans l'expression (1.2.64) le réseau est représenté par un ensemble élémentaire de trois chaînes non Gaussiennes indépendantes et parallèles aux directions principales d'élongations, conformément au modèle initialement proposé par Wang et Guth (1952). Plus tard, Arruda et Boyce (1993) ont introduit la formulation à huit chaînes dans le modèle initial de Boyce et al. (1988) :

$$b_i^{8-ch} = C_r \frac{\sqrt{N}}{3} \mathcal{L}^{-1} \left(\frac{\lambda^p}{\sqrt{N}} \right) \frac{\lambda_i^{p^2} - \lambda^{p^2}}{\lambda^p} \quad (1.2.66)$$

$$\lambda^{p^2} = \frac{1}{3} \sum_{j=1}^3 \lambda_j^{p^2}$$

La combinaison linéaire proposée par Wu et van der Giessen (1995) dans le cadre de comportements hyperélastiques a également été injectée par ces auteurs dans le modèle de Boyce et al. (1988) :

$$b_i = (1 - \rho) b_i^{3-ch} + \rho b_i^{8-ch} \quad (1.2.67)$$

où ρ est un paramètre défini par :

$$\rho = \frac{0.85 \max(\lambda_1^p, \lambda_2^p, \lambda_3^p)}{\sqrt{N}} \quad (1.2.68)$$

Notons également les contributions de Timmermans (1997), Govaert et al. (2000) et van der Aa et al. (2000). La principale différence avec les modèles précédents réside dans la manière de modéliser le durcissement structural, ces derniers auteurs ayant choisi une représentation à partir d'une loi de type néo-hookéenne.

On peut également citer des approches plus phénoménologiques. Par exemple, Khan et Zhang (2001) ont proposé un modèle rhéologique viscoélastique-viscoplastique combinant ressorts et amortisseurs pour modéliser la réponse inélastique du polytétrafluoroéthylène. Plus tard, Khan et al. (2006) ont mis au point des équations similaires pour décrire le comportement inélastique en grandes déformations de l'Adiprene-L100. Zaïri et al. (2005a; 2005b; 2007; 2008) ont proposé un modèle viscoélastique-viscoplastique basé sur la théorie de Bodner

(Bodner et Partom, 1975) pour décrire le comportement non linéaire des polymères amorphes, en combinant également à la formulation, lorsque cela est nécessaire, la composante volumétrique de la déformation.

Il est important de noter que si l'approche physique est plus volontiers utilisée pour décrire le comportement des polymères amorphes, l'approche phénoménologique est généralement appliquée à l'étude des polymères semi-cristallins. Par ailleurs, la plupart des modèles développés dans la littérature sont dédiés aux polymères thermoplastiques vitreux. Très peu sont dédiés aux semi-cristallins.

Boyce et al. (2000) ont proposé un modèle dans le but de décrire le comportement élastique-viscoplastique d'un polymère amorphe (le polyéthylène téréphthalate) au dessus de sa transition vitreuse. Leur modèle dans la description du comportement mécanique comprend deux résistances en parallèle : celle due à l'interaction intermoléculaire et l'autre due à la résistance du réseau de chaînes macromoléculaires. Le processus de relaxation basé sur la reptation des chaînes (Doi et Edwards, 1986) est décrit par un durcissement visqueux (Bergstrom et Boyce, 1998). Afin d'introduire la cristallisation induite par la déformation dans le formalisme proposé par Boyce et al. (2000), Ahzi et al. (2003) et Makradi et al. (2005) ont introduit une partie cristalline dans la résistance intermoléculaire. Afin de décrire le comportement mécanique des polymères semi-cristallins, certains travaux ont considéré leur microstructure comme un agrégat d'inclusions composites à deux phases (Lee et al., 1993a; b). Van Dommelen et al. (2003) ont proposé une modélisation micromécanique pour simuler le comportement élastique-viscoplastique et l'évolution de la texture des polymères semi-cristallins pour des niveaux de déformations modérées. Le modèle a la capacité de décrire qualitativement le comportement contrainte-déformation du polyéthylène haute densité. Cependant, les résultats ont été présentés sans comparaisons à des données expérimentales.

Bien que ces modèles soient en mesure de reproduire d'une manière acceptable la réponse élastique-viscoplastique en grandes déformations des polymères, ils ne prennent pas en compte la réponse non linéaire de ces matériaux à la décharge. Pour combler cette lacune un certain nombre de modèles ont été développés, la plupart d'entre eux dans un cadre de déformation infinitésimale. On peut citer, par exemple, Colak (2005) qui a proposé une extension du modèle de Krempl (Krempl et al., 1984) pour prédire, en petites déformations, le chargement et le déchargement du poly(oxyde de phénylène). L'extension du modèle de Krempl (Krempl et al., 1984) consiste en l'introduction d'une variable dans la relation de la vitesse de déformation élastique pour améliorer la description du comportement en décharge. Plus récemment, Dusunceli et Colak (2008) ont étendu le modèle de Krempl en intégrant les

effets du degré de cristallinité. Les phases cristallines et amorphes ont été organisées de deux façons différentes, en parallèle et en série. Drozdov et Gupta (2003) et Drozdov et Christiansen (2008) ont proposé des équations constitutives pour décrire la viscoplasticité des polymères sous chargement monotone et cyclique. La comparaison entre les simulations et les expériences montre un très bon accord, mais l'application du modèle est quelque peu limitée en raison du nombre important de paramètres et de la gamme relativement faible de validité en déformation. Anand et Gurtin (2003) et Anand et Ames (2006) ont étendu le modèle de Boyce et al. (1988) de telle manière qu'il puisse décrire le comportement du matériau avec une résistance due à l'interaction moléculaire du réseau en parallèle avec N résistances décrivant les interactions intermoléculaires. Le modèle fournit un bon accord en terme de relation contrainte-déformation sous chargement monotone suivi d'un déchargement pour un polymère amorphe, mais il comporte un très grand nombre de paramètres matériaux.

3. Etat de l'art sur la fatigue des élastomères

Bien que ce chapitre a vocation d'être large, cette partie ne traitera que de la fatigue des élastomères, pour la simple et bonne raison que la fatigue traitée dans ce travail concernera cette classe de polymères.

La durée de vie en fatigue d'un composant en caoutchouc, se décompose en un temps nécessaire à créer un défaut d'une taille donnée et en un temps nécessaire pour propager ce défaut jusqu'à la rupture complète. Elle dépend de nombreux paramètres tels que la géométrie de la pièce en caoutchouc, les conditions de chargement, etc. Généralement, ces deux étapes dans l'étude de la fatigue sont séparées, bien que certains auteurs aient essayé de donner une approche unifiée, mais fondée sur la propagation des fissures. La compréhension qualitative et quantitative d'un phénomène physique tel que l'endommagement par fatigue d'un matériau s'effectue par la mesure de certaines propriétés physiques (comme la variation de la densité, de la masse molaire, etc.) et mécaniques (caractéristique monotones, cycliques, etc.) du matériau. Le dommage par fatigue d'un matériau s'exprime le plus souvent par les variables d'endommagement suivantes :

- Des variables liées (contraintes et déformations) à la sollicitation traduisant le chargement appliqué au composant mécanique.

- Des caractéristiques mécaniques monotones et cycliques (σ_D , N_r , etc.) qui sont par essence intrinsèques au matériau, peuvent être modifiées en fonction de la nature de la sollicitation.
- Des paramètres d'influence regroupant les facteurs d'échelle, d'états de surface, de gradient de contrainte et de triaxialité des contraintes.
- Des paramètres de service traduisant les conditions de fonctionnement du composant mécanique (température, surcharge, fréquence de la sollicitation, agressivité du milieu, etc.). La plupart de ces paramètres servent à définir les conditions initiales et finales du problème.

3.1. Classification des lois d'endommagement par fatigue

Nous pouvons définir à partir de la littérature quatre niveaux de classement des lois d'endommagement par :

- les mécanismes d'endommagement,
- le type d'approche de la loi,
- l'échelle du dommage par fatigue et,
- la base physique de la loi.

3.1.1. Mécanismes d'endommagement par fatigue

L'endommagement par fatigue d'un solide est, par définition, l'altération progressive de ses propriétés physiques et mécaniques pouvant conduire à sa rupture suite à l'application d'une sollicitation fluctuante. Dans une revue bibliographique, Mars et Fatemi (2002) ont distingué deux mécanismes principaux, comme pour tous les matériaux, décrivant la rupture des caoutchoucs dans des conditions de chargement de fatigue : la nucléation et la propagation des défauts jusqu'à la rupture complète du composant.

3.1.2. Lois d'endommagement par fatigue

Les lois d'endommagement par fatigue appartiennent à l'une ou l'autre des deux approches suivantes, qui caractérisent en fait la démarche scientifique utilisée pour décrire le dommage par fatigue :

L'approche phénoménologique. Ces lois se sont développées avec les progrès techniques qui permettent d'observer et de mesurer avec une grande précision certains paramètres indicateurs du dommage tels que la cavitation, les craquelures, fissures macroscopiques, etc. Elles tentent d'expliquer au mieux le mécanisme d'endommagement du matériau à l'aide de l'évolution de ces paramètres.

L'approche analytique. On retrouve ici les lois élaborées à partir des théories de la mécanique des solides.

3.1.3. Échelles d'étude de l'endommagement par fatigue

Deux niveaux d'échelles de mesure sont utilisés par les auteurs pour décrire le dommage par fatigue :

- des fissures microscopiques (ou petites fissures) pour traduire un dommage à l'échelle microscopique et,
- des quantités macroscopiques (matériau pré-fissuré, évolution de la contrainte, de la déformation, de l'énergie de déformation, etc.) captant le dommage à l'échelle macroscopique.

3.1.4. Lois d'endommagement par fatigue

Quelles que soient son approche et son échelle, chaque loi d'endommagement par fatigue a une base physique spécifique.

Mécanismes	Approches	Échelles	Bases physiques
propagation	phénoménologique	microscopique	propagation de fissure
nucléation		macroscopique	énergie de déformation
			déformation principale maximale
			contrainte de Cauchy principale maximale
	analytique	microscopique	énergie de fissuration
			mécanique configurationnelle

Tableau 1.3.1. Récapitulatif des différents critères.

Parmi l'ensemble des lois recensées, nous distinguons six types ou modèles à bases physiques :

- **Les modèles de propagation de fissures.** Ils permettent notamment de décrire les phénomènes de retard de propagation et revêtent un intérêt marqué dès lors que la croissance du dommage est directement liée à l'évolution des paramètres physiques de la propagation, comme l'accroissement de la longueur de fissure par exemple. Ils relèvent en générale de la mécanique de la rupture et sont pour l'essentiel basés sur l'intégration d'une expression de la vitesse de propagation de la fissure, parfois en prenant en compte l'interaction des niveaux de charges successifs et les dimensions, changeantes, de la partie de l'éprouvette non fissurée.
- **Les modèles basés sur l'énergie de déformation, la densité d'énergie de fissuration ou la mécanique configurationnelle.** Les lois d'endommagement sont développées à partir de théories basées ici sur les énergies de déformation. Elles présentent l'avantage de tenter de concilier les endommagements d'origines diverses : le fluage, la thermique et la fatigue.
- **Les modèles basés sur la déformation principale maximale ou la contrainte de Cauchy principale maximale.** Déformations ou contraintes, étant directement obtenues des essais, sont souvent utilisées comme critères de dommage. Les grandeurs principales paraissent comme physiquement pertinentes puisque les fissures s'initient essentiellement sur un plan perpendiculaire à la déformation maximale.

Le tableau 1.3.1 récapitule les différents critères de classification des lois et des critères d'endommagement par fatigue que nous venons de décrire.

3.2. Bases physiques des lois d'endommagement par fatigue

3.2.1. Propagation de fissures

Concernant la propagation des fissures par fatigue, la durée de vie en fatigue est définie comme le nombre de cycles nécessaire pour une fissure préexistante pour croître jusqu'à la rupture. Le taux d'énergie de déformation libéré T initialement introduit par Griffith (1920) pour un matériau fragile, et étendu par Rivlin et Thomas (1953) à la rupture des caoutchoucs, est généralement utilisé comme paramètre pour décrire la propagation des fissures et construire des lois empiriques (comme celle développée par Paris pour les métaux mais en utilisant le facteur d'intensité de contrainte). La quantité T est l'énergie de déchirement qui représente l'énergie mise en jeu pour accroître une fissure d'une longueur donnée. Quelques géométries d'échantillons simples à mettre en œuvre (figure 1.3.1) ont été utilisées pour mesurer l'énergie de déchirement et en déduire des relations simples pour les calculer.

Un résumé des expressions de l'énergie de déchirement T ainsi que ses valeurs critiques T_c pour les différentes éprouvettes sont présentés dans le tableau 1.3.2. Rivlin et Thomas (1953) ont montré que lorsque la valeur critique de l'énergie de déchirement est atteinte, la propagation instable des fissures sous un chargement statique se produit.

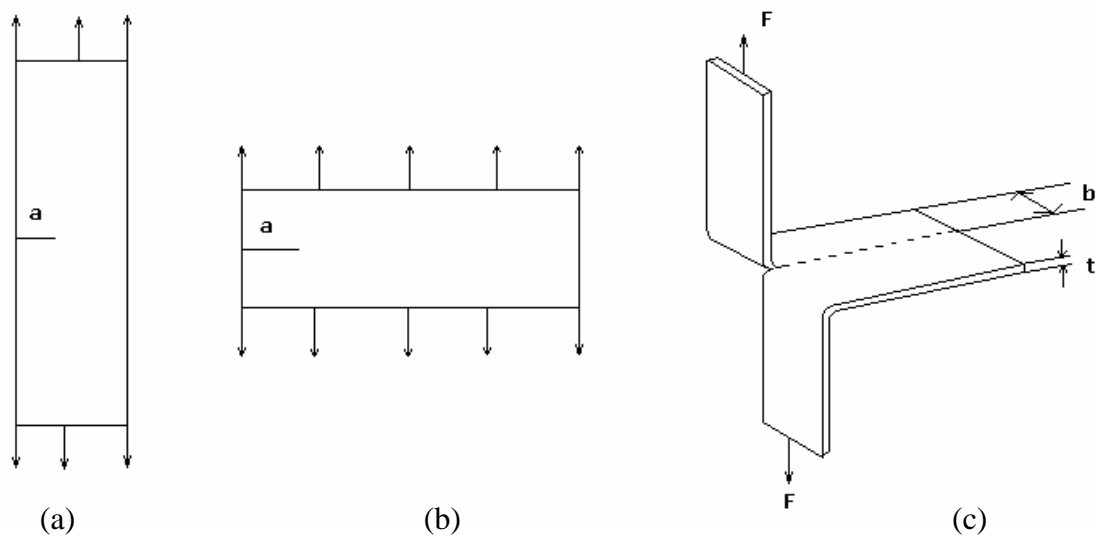


Figure 1.3.1. Géométries des éprouvettes pré-fissurées les plus utilisées : (a) éprouvette SENT, (b) éprouvette de cisaillement pur, (c) éprouvette pantalon.

La valeur critique de l'énergie de déchirement est considérée alors comme une propriété intrinsèque du matériau indépendamment de la taille de la fissure et de la géométrie de l'échantillon.

Type d'éprouvettes	Expressions de T	Expressions de T_c
Eprouvette SENT	$T = 2k(\lambda)W_0a$	$T_c = 2k(\lambda_c)W_{0c}a$
Eprouvette de cisaillement pur	$T = W_0h$	$T_c = W_{0c}h$
Eprouvette pantalon	$T = \frac{2F\lambda}{t} - W_0b$	$T_c = \frac{2F_c\lambda_c}{t} - W_{0c}b$

Tableau 1.3.2. Expressions de T pour les différents types d'échantillons pré-fissurés.

Le terme W_0 dans les différentes expressions du tableau 1.3.2 représente la densité d'énergie de déformation calculée loin de la fissure et k un facteur de proportionnalité qui dépend de l'élongation.

L'approche de propagation des fissures a été ensuite étendue aux cas des chargements dynamiques par Thomas (1958) qui a trouvé que le maximum d'énergie de déchirement atteint au cours d'un cycle de fatigue régit la vitesse de propagation des fissures. Pour les chargements cycliques le processus de croissance d'un défaut peut être observé pour des valeurs de T très inférieures à T_c , tandis que pour des chargements monotones la propagation a lieu que lorsque le paramètre T est supérieur à la valeur critique T_c . Cette propagation se fait néanmoins de manière stable; c'est le phénomène de fissuration par fatigue.

La figure 1.3.2 montre l'évolution de la vitesse de propagation des fissures en fonction de l'énergie de déchirement T pour deux élastomères non chargés de type NR et SBR sous une sollicitation cyclique de traction uniaxiale à rapport de charge nul. Sur ce graphique, Lake et Lindley (1965) ont mis en évidence quatre zones distinctes :

- $T < T_0$: pas de propagation hormis par attaque chimique (ozone) :

$$\frac{da}{dN} = r \tag{1.3.1}$$

- $T_0 < T < T_1$: la vitesse est directement proportionnelle à T , soit :

$$\frac{da}{dN} = A(T - T_0) + r \tag{1.3.2}$$

- $T_1 < T < T_c$: la vitesse varie suivant une loi puissance, donnée par :

$$\frac{da}{dN} = B(T)^c \quad (1.3.3)$$

- $T > T_c$: la rupture a lieu au premier cycle à cause d'une propagation instable.

Les paramètres A et B ainsi que l'exposant C dépendent de la nature du matériau. Ainsi, la prévision de la propagation de la fissure, exprimée en fonction de T , est indépendante de la forme et des dimensions d'éprouvettes. La relation entre le taux de croissance de la fissure et l'énergie de déchirement T est alors une propriété intrinsèque de l'élastomère.

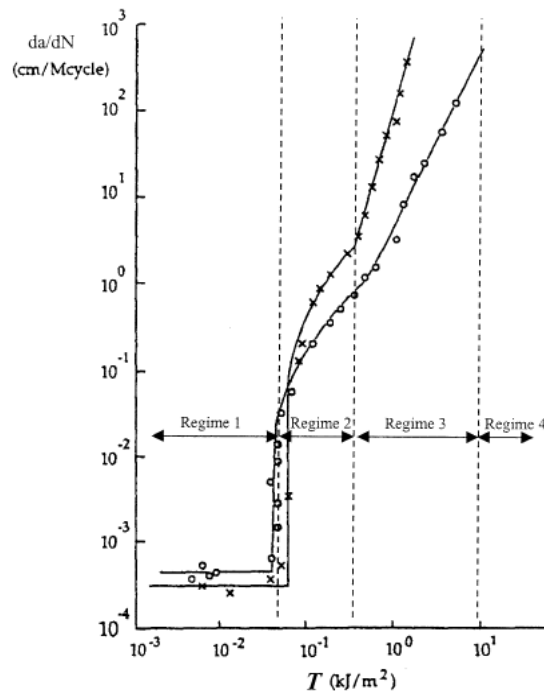


Figure 1.3.2. Régimes de propagation des fissures en fatigue pour des élastomères de type NR et SBR avec un minimum de charge nul (Lake et Lindley, 1965).

En effet, à partir des relations empiriques vues précédemment, la durée de vie en fatigue N_f peut être estimée par simple intégration de celle-ci. Par exemple, si on connaît au préalable la taille a_0 de la fissure et en se situant dans la zone 3 (figure 1.3.2), le nombre de cycles nécessaire pour faire progresser ce défaut jusqu'à une taille critique a_f peut se calculer de la manière suivante :

$$N_f = \int_{a_0}^{a_f} \frac{da}{B(2kW_0a)^F} = \frac{1}{F-1} \frac{1}{B(2kW_0)^F} \left[\frac{1}{a_0^{F-1}} - \frac{1}{a_f^{F-1}} \right] \quad (1.3.4)$$

Pour un échantillon ne contenant pas de fissure artificielle, l'amorçage se produit à partir d'un défaut intrinsèque. Celui-ci étant petit devant la longueur finale de la fissure, la relation (1.3.4) se simplifie de la façon suivante :

$$N_f = \int_{a_0}^{a_f} \frac{da}{B(2kW_0a)^F} = \frac{1}{F-1} \frac{1}{B(2kW_0)^F} \frac{1}{a_0^{F-1}} \quad (1.3.5)$$

Si la longueur initiale des défauts dans les élastomères est considérée comme une propriété intrinsèque du matériau, l'équation (1.3.5) peut être réécrite sous la forme :

$$N_f = DW_0^{-F} \quad (1.3.6)$$

où $D = \frac{1}{(F-1)} \frac{1}{B(2k)^F} \frac{1}{a_0^{F-1}}$ une constante du matériau à déterminer.

3.2.2. Critère en déformation principale maximale

La déformation principale maximale est parmi les critères qui paraissent physiquement pertinent puisque les fissures s'initient essentiellement sur un plan perpendiculaire à la déformation maximale. Les premières études sur la durée de vie en fatigue des polymères ont mis en évidence un critère empirique basé sur la description du nombre de cycles jusqu'à la rupture en fonction de l'amplitude de la déformation et de la déformation minimum.

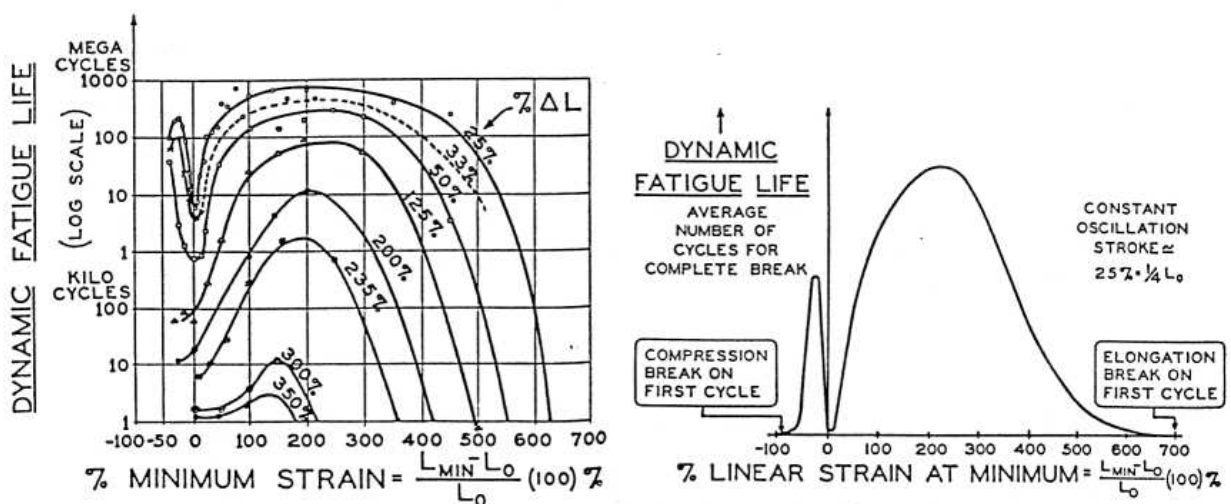


Figure 1.3.3. Effet du minimum et de l'amplitude de la déformation sur la durée de vie en fatigue d'un NR (Cadwell et al., 1940).

Cadwell et al. (1940) et Fielding (1943) ont souligné que la durée de vie en fatigue d'un caoutchouc naturel, sous des essais de traction et de cisaillement, pourrait être améliorée en augmentant la déformation minimale (figure 1.3.3). La durée de vie en fatigue sous des essais de traction simple et equibiaxiale a été étudiée, plus récemment, par Roberts et Benzies (1977) et Roach (1982). Il a été observé que la durée de vie en fatigue est plus longue pour les essais de traction uniaxiale que pour les essais equibiaxiale. Ro (1989) a analysé les données de ces dernières études et a conclu que la déformation n'est pas un paramètre optimal pour l'unification des essais de traction simple et equibiaxiale.

3.2.3. Critère en contrainte principale maximale

Lu (1991) fut le premier à utiliser un critère en contrainte pour prédire la durée de vie d'initiation des élastomères cristallisables. Bien que le chargement uniaxial qu'il a appliqué à des éprouvettes Diabolos soit symétrique, Lu (1991) a exploité uniquement la contrainte maximale de Cauchy.

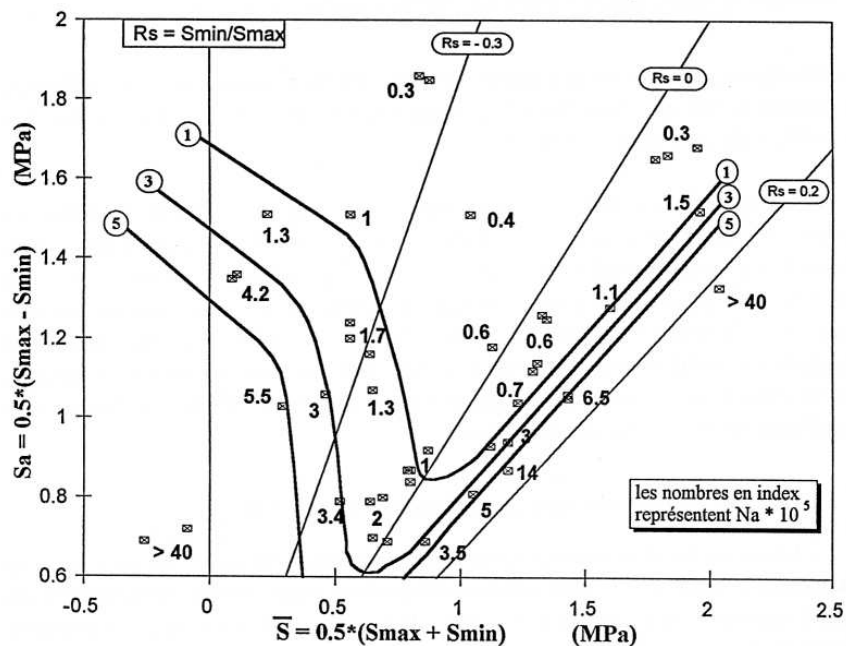


Figure 1.3.4. Diagramme de Haigh obtenu pour un NR (André et al., 1999) - S_a est l'amplitude de Cauchy, S_m sa moyenne.

La durée de vie en fatigue des élastomères était liée à la contrainte principale maximale de Cauchy dans une multitude de travaux ayant pour but l'amélioration de la méthode initiée par Lu (1991) (Bathias et al., 1998; André et al., 1999; Abraham et al., 2005; Saintier et al., 2006). L'utilisation de ce critère permet entre autre de prédire l'orientation des fissures. André et al. (1999) ont montré que les fissures sont perpendiculaires à la direction de la contrainte principale maximale. Celle-ci a été adoptée par ces auteurs dans le but d'étudier l'amélioration de la durée de vie du NR due à la cristallisation sous contrainte. André et al. (1999) ont également montré à travers le diagramme de Haigh (figure 1.3.4) que lorsque la contrainte minimale est strictement positive la durée de vie en fatigue augmente. La contrainte principale de Cauchy a aussi été proposée comme critère pour décrire l'endommagement par fatigue multiaxiale.

3.2.4. Critères énergétiques

3.2.4.1. Densité d'énergie de déformation

La manière la plus simple de prendre en compte à la fois la déformation et la contrainte est l'utilisation de la densité d'énergie de déformation comme variable d'endommagement par fatigue. La densité d'énergie de déformation comme variable d'endommagement est surtout appliquée aux matériaux caoutchoutiques du fait de l'existence de formulation analytique direct liant le comportement du matériau à l'énergie de déformation. Le développement de l'approche de nucléation dans le calcul de la durée de vie des polymères a été motivé par le succès de la mécanique de la rupture dans les années 1960. En particulier, la densité d'énergie de déformation a commencé à être utilisée comme paramètre pour prédire la nucléation des fissures de fatigue. Toutefois, il a été démontré par Roberts et Benzies (1977) et Roach (1982) que la densité d'énergie de déformation ne pouvait unifier les courbes de Wöhler en traction uniaxiale et equibiaxiale. En outre, cette quantité scalaire ne pouvait pas fournir une prédiction de l'orientation des fissures nucléées. En contradiction avec ces dernières observations, Ro (1989) et Abraham et al. (2005) ont observé que la densité d'énergie de déformation est un meilleur indicateur que la contrainte.

3.2.4.2. Densité d'énergie de fissuration

Mars (2001; 2005) a considéré dans des travaux récents que la propagation des défauts intrinsèques contenus dans le matériau est l'origine microscopique des fissures détectées à l'échelle macroscopique et proposent une grandeur de la mécanique des milieux continus qui tient compte de cette propagation. En supposant que seule une certaine partie de la densité d'énergie de déformation W est disponible pour la propagation d'une fissure, Mars (2001; 2005) a introduit la densité d'énergie de fissuration W_c en tant que critère pour la prévision à la fois de la nucléation et de l'orientation des fissures. Dans l'hypothèse des petites déformations, Mars (2001; 2005) a développé cette quantité par l'introduction de l'incrément de l'énergie disponible pour être libéré sur un plan matériel donné de vecteur normal \mathbf{r} . Cette quantité est définie comme le produit scalaire du vecteur de traction Cauchy $\mathbf{T}\mathbf{r}$ (\mathbf{T} étant le tenseur des contraintes de Cauchy) avec l'incrément de déformation $d\boldsymbol{\varepsilon}$ dans la direction \mathbf{r} . L'incrément de la densité d'énergie de fissuration est donnée par (Mars, 2001; 2005) :

$$dW_c = (\mathbf{T}\mathbf{r})(d\boldsymbol{\varepsilon}) = \mathbf{r}\mathbf{T}d\boldsymbol{\varepsilon} \quad (1.3.7)$$

Le plan critique (figure 1.3.5) représenté par sa normale \mathbf{r} , maximisant la densité d'énergie de fissuration en un point donné, est le plan dans le quel l'initiation de la fissure est la plus probable sous un chargement donné. Mars (2001; 2005) a étendu l'expression précédente dans le cadre de la déformation finie mais la formulation proposée est discutable du fait que la définition du vecteur normal n'a pas été totalement élucidée (Zine, 2006).

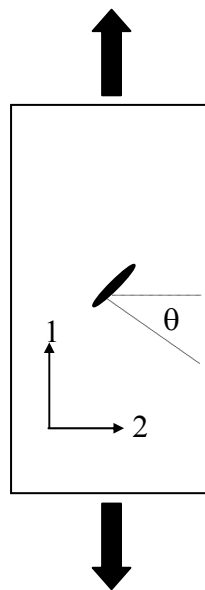


Figure 1.3.5. Définitions de θ pour l'orientation du plan de fissuration.

Ces dernières années, plusieurs travaux ont utilisé ce facteur prédictif (Kim et al., 2005; Martinovs et al., 2006; Zine et al., 2006). La démarche concernant le calcul de la densité d'énergie de fissuration W_c consiste d'abord à rechercher pour chaque incrément de déformation dW_{ci} le plan matériel d'initiation \mathbf{r} qui maximise l'énergie. Une sommation de dW_{ci} sur l'ensemble des incréments jusqu'au chargement maximal atteint au cours d'un cycle de fatigue est ensuite effectué. En grandes déformations, on réécrit la relation (1.3.7) en termes de tenseurs des contraintes et des déformations exprimés dans la configuration non déformée. En effet, l'expression de l'énergie de fissuration est définie par la relation suivante (Zine et al., 2006) :

$$dW_c = \mathbf{T}d\boldsymbol{\varepsilon} = \mathbf{T}\mathbf{D}dt \quad (1.3.8)$$

où $\mathbf{T} = \mathbf{r}^T \boldsymbol{\sigma}$ et $\mathbf{D} = \mathbf{D}\mathbf{r}$, \mathbf{D} étant le tenseur du taux de déformation.

Or, on sait également que :

$$\mathbf{T} = \frac{\rho}{\rho_0} \mathbf{F}\mathbf{S}\mathbf{F}^T \quad (1.3.9)$$

où ρ/ρ_0 représente le rapport des masses volumiques respectivement dans la configuration déformée et initiale.

De plus :

$$\mathbf{D}dt = (\mathbf{F}^T)^{-1} d\mathbf{E}\mathbf{F}^{-1} \quad (1.3.10)$$

La relation (1.3.8) devient alors :

$$dW_c = (\mathbf{r}^T \boldsymbol{\sigma})(\mathbf{D}\mathbf{r}dt) = \mathbf{r}^T \boldsymbol{\sigma}\mathbf{D}\mathbf{r}dt = \mathbf{r}^T \left(\frac{\rho}{\rho_0} \mathbf{F}\mathbf{S}\mathbf{F}^T \right) \left((\mathbf{F}^T)^{-1} d\mathbf{E}\mathbf{F}^{-1} \right) \mathbf{r} = \frac{\rho}{\rho_0} \mathbf{r}^T \mathbf{F}\mathbf{S}d\mathbf{E}\mathbf{F}^{-1} \mathbf{r} \quad (1.3.11)$$

D'autre part, on écrit la loi de transformation de l'élément de surface non déformée dS_0 de normale unitaire \mathbf{R} à celui de la configuration actuelle ds de normale unitaire \mathbf{r} :

$$\mathbf{r}ds = \frac{\rho}{\rho_0} \mathbf{F}^{-T} \mathbf{R}dS_0 \quad (1.3.12)$$

Soit donc :

$$\|\mathbf{r}ds\| = ds = \left\| \frac{\rho}{\rho_0} \mathbf{F}^{-T} \mathbf{R}dS_0 \right\| = \frac{\rho}{\rho_0} \|\mathbf{F}^{-T} \mathbf{R}\| dS_0 \quad (1.3.13)$$

Les relations (1.3.12) et (1.3.13) permettent d'écrire :

$$\mathbf{r} = \frac{\mathbf{F}^{-T} \mathbf{R}}{\|\mathbf{F}^{-T} \mathbf{R}\|} \quad (1.3.14)$$

Cette équation représente le transport du vecteur normal \mathbf{r} de l'état déformé à l'état initial. Signalons à ce niveau que cette relation est une correction apportée à celle établie par Mars (2001; 2005) dans laquelle la transformation de l'élément de surface dS_0 n'est pas prise en compte (Zine et al., 2006).

On donne l'expression du vecteur normal transposé \mathbf{r}^T :

$$\mathbf{r}^T = \frac{(\mathbf{F}^{-T}\mathbf{R})^T}{\|\mathbf{F}^{-T}\mathbf{R}\|} = \frac{\mathbf{R}^T(\mathbf{F}^{-T})^T}{\|\mathbf{F}^{-T}\mathbf{R}\|} = \frac{\mathbf{R}^T\mathbf{F}^{-1}}{\|\mathbf{F}^{-T}\mathbf{R}\|} \quad (1.3.15)$$

Soit :

$$dW_c = \frac{\rho}{\rho_0} \frac{\mathbf{R}^T\mathbf{F}^{-1}}{\|\mathbf{F}^{-T}\mathbf{R}\|} \mathbf{F} \mathbf{S} d\mathbf{E} \mathbf{F}^{-1} \frac{\mathbf{F}^{-T}\mathbf{R}}{\|\mathbf{F}^{-T}\mathbf{R}\|} = \frac{\rho}{\rho_0} \frac{1}{\|\mathbf{F}^{-T}\mathbf{R}\|} \mathbf{R}^T \mathbf{S} d\mathbf{E} (\mathbf{F}^T \mathbf{F})^{-1} \mathbf{R} \quad (1.3.16)$$

D'un autre coté, on a :

$$\|\mathbf{F}^{-T}\mathbf{R}\|^2 = (\mathbf{F}^{-T}\mathbf{R})^T (\mathbf{F}^{-T}\mathbf{R}) = (\mathbf{R}^T (\mathbf{F}^{-T})^T) (\mathbf{F}^{-T}\mathbf{R}) = \mathbf{R}^T \mathbf{F}^{-1} \mathbf{F}^{-T} \mathbf{R} = \mathbf{R}^T \mathbf{C}^{-1} \mathbf{R} \quad (1.3.17)$$

Finalement l'expression de dW_c , en grandes déformations et dans la configuration matérielle (non déformée), est obtenue à partir des relations (1.3.15) et (1.3.16).

$$dW_c = \frac{\rho}{\rho_0} \frac{1}{\mathbf{R}^T \mathbf{C}^{-1} \mathbf{R}} \mathbf{R}^T \mathbf{S} d\mathbf{E} (\mathbf{F}^T \mathbf{F})^{-1} \mathbf{R} = \frac{\rho}{\rho_0} \frac{\mathbf{R}^T \mathbf{S} d\mathbf{E} \mathbf{C}^{-1} \mathbf{R}}{\mathbf{R}^T \mathbf{C}^{-1} \mathbf{R}} \quad (1.3.18)$$

3.2.4.3. Tenseur de contrainte d'Eshelby

C'est dans le cadre de la théorie développée par Eshelby (1951), où la théorie de la mécanique configurationnelle a été introduite, que le concept du tenseur moment-énergie et des forces configurationnelles en mécanique des milieux continus ont été développés. En particulier, l'intégrale J (Rice, 1968), souvent utilisé comme un paramètre en mécanique de la rupture non linéaire, dérive de ce concept. Cette théorie a ensuite été étendue à la déformation finie par Chadwick (1975). Maugin (1995) a relevé que la mécanique configurationnelle est une extension de la mécanique des milieux continus et l'a nommé la mécanique « eshelbienne ». La plupart des études se sont concentré sur l'application de la mécanique configurationnelle à la mécanique de la rupture. Peu d'études se sont intéressées aux propriétés du tenseur des contraintes configurationnelles. Motivé par des mécanismes microscopiques induits par la fatigue, Verron et Andriyana (2007) ont proposé un indicateur pour la nucléation des fissures par fatigue dans le caoutchouc en utilisant le cadre de la mécanique configurationnelle.

Comme pour la densité d'énergie de fissuration la propagation des défauts intrinsèques contenus dans le matériau est l'origine microscopique des fissures détectées à l'échelle macroscopique. Pour évaluer la force \mathfrak{F} appliquée sur un défaut D présent dans une structure parfaitement élastique, celui-ci est déplacé virtuellement dans la configuration déformée (figures 1.3.6a et 1.3.6b). Par conséquent, le vecteur surface \mathbf{S} qui entoure ce défaut subit un déplacement uniforme infinitésimal $\partial\mathbf{U} = \{\partial U_k, k = 1..3\}$. Cela se traduit par une variation de l'énergie interne ∂E_1 et une variation du travail des forces extérieures ∂E_2 :

$$\begin{aligned}\partial E_1 &= -\partial\mathbf{U} \iint_S w d\mathbf{S} \\ \partial E_2 &= -\iint_S \partial\mathbf{u} \mathbf{r} d\mathbf{S} = -\iint_S \partial\mathbf{u} \mathbf{T} d\mathbf{S}\end{aligned}\tag{1.3.19}$$

où $\mathbf{r} = \mathbf{T}\mathbf{N}$, $\partial u_i = -u_{i,k} \partial U_k$ et \mathbf{N} est la normale sortante à la surface \mathbf{S} .

L'écriture du bilan énergétique, à l'intérieur de la surface considérée, conduit à l'expression de la variation de l'énergie potentielle induit par le déplacement $\partial\mathbf{U}$:

$$\partial E = \partial E_1 + \partial E_2 = -\partial\mathbf{U} \iint_S (\mathcal{W}\mathbf{I} - \nabla\mathbf{u}\mathbf{T}) \mathbf{N} d\mathbf{S}\tag{1.3.20}$$

On peut écrire l'énergie potentielle en fonction de la force configurationnelle \mathfrak{F} , $\partial E = -\mathfrak{F}\partial\mathbf{U}$, ce qui permet de définir au point M la force configurationnelle en fonction du tenseur d'Eshelby \mathbf{b} :

$$\partial E = \iint_S \mathbf{b} \mathbf{N} d\mathbf{S}\tag{1.3.21}$$

A partir des deux dernières équations on peut déduire la formulation en petites déformations du tenseur du second ordre \mathbf{b} :

$$\mathbf{b} = \mathcal{W}\mathbf{I} - \nabla\mathbf{u}\mathbf{T}\tag{1.3.22}$$

La formulation en grandes déformations du tenseur d'Eshelby a été proposée par Chadwick (1975) :

$$\mathbf{b} = \mathcal{W}\mathbf{I} - \mathbf{F}^T \mathbf{P} = \mathcal{W}\mathbf{I} - \mathbf{C}\mathbf{S}\tag{1.3.23}$$

où \mathbf{C} est le tenseur de Cauchy-Green droit, \mathbf{P} et \mathbf{S} sont respectivement le premier et le second tenseur des contraintes de Piola-Kirchhoff.

La signification physique de \mathbf{b} dans un milieu élastique linéaire a été proposée par Kienzler et Herrmann (1997) qui ont montré qu'en un point M, la composante b_{ij} correspond à la variation de l'énergie potentielle due à la translation unitaire dans la direction de x_j d'une surface unitaire de normal x_i . La variation de la densité d'énergie potentielle en M due à la

translation unitaire dans la direction de θ d'une surface unitaire de normale \mathbf{N} (figure 1.3.6c) est représenté par le scalaire $\theta \mathbf{b} \mathbf{N}$.

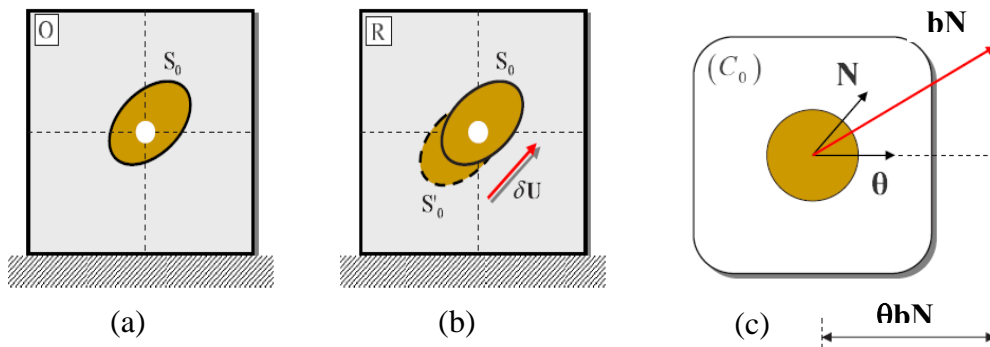


Figure 1.3.6. Corps matériel dans la configuration non déformée : (a) système de référence, (b) déplacement virtuel du défaut, (c) variation de l'énergie due à une translation matérielle unitaire dans la direction θ d'une surface unitaire de normale \mathbf{N} (Verron et Andriyana, 2007).

Sur la base des relations énoncées auparavant, Verron et Andriyana (2007) ont proposé un nouveau critère de nucléation de fissures permettant de prédire aussi la direction de propagation d'un défaut intrinsèque. En écrivant que le matériau tend toujours à réduire son énergie potentielle sous un chargement extérieur, le critère proposé est :

$$\text{Critère} = \left| \min \left[(b_i)_{i=1,2,3}, 0 \right] \right| \quad (1.3.24)$$

En effet, si Critère $\neq 0$ le plan de propagation de ce défaut est perpendiculaire au vecteur associé à la plus petite valeur propre du tenseur \mathbf{b} . Par contre, si les trois valeurs propres sont positives, i.e. Critère = 0, alors aucune énergie n'est restituée pour la croissance du défaut.

3.3. Lois de cumul de dommage

La prédiction de la durée de vie en fatigue peut être donc abordée en utilisant une quantité mécanique (comme celles décrites ci-dessus). Ce type d'approche est efficace surtout lorsqu'on se concentre sur la durée de vie en fatigue des élastomères sous des conditions de chargement à amplitudes constantes. Sinon, ce type d'approche nécessite d'être complétée par une loi de cumul de dommage, afin de prendre en compte les effets de chargement à amplitudes variables par exemple.

Dans ce cas, les lois sont généralement basées sur les résultats expérimentaux obtenus pour des cas de chargement et de matériaux spécifiques. Parce que simple, puisqu'il s'agit d'une loi linéaire, la règle de Miner (1945) est largement utilisée. La loi d'endommagement linéaire prédit la rupture lorsque la somme du nombre de cycles appliqués N_i divisé par le nombre de cycles à rupture N_{fi} pour chaque cycle est égale à 1 :

$$\sum \frac{N_i}{N_{fi}} = \frac{N_1}{N_{f1}} + \frac{N_2}{N_{f2}} + \dots = 1. \quad (1.3.25)$$

Cette règle implique, dans le cas de chargement à amplitudes variables, que l'ordre dans lequel les chargements sont appliqués n'a pas d'importance. Klenke et Beste (1987) ont été les premiers à appliquer la loi de Miner pour prédire la durée de vie par fatigue des caoutchoucs. Sun et al. (2000) ont trouvé que la loi de Miner n'était pas applicable sous des chargements à plusieurs niveaux d'amplitudes. Plus récemment, Harbour et al. (2007) ont étudié l'effet des conditions de chargements multiaxiaux à amplitudes variables sur la durée de vie en fatigue de caoutchoucs, en utilisant la règle de Miner, pour deux types de matériaux (NR et SBR). Ils ont constaté que la loi de Miner prédit assez bien la durée de vie en fatigue du NR sous des chargements à niveau variable. Au contraire, il n'a pas été en mesure de prédire la durée de vie en fatigue du SBR dans les mêmes conditions de chargements.

Une autre voie consiste à calculer le cumul de l'endommagement cycle par cycle en utilisant le concept de la mécanique d'endommagement continue associé à un paramètre prédictif de la fatigue. À l'origine, la théorie de l'endommagement continu a été développée par Rabotnov (1969) et Kachanov (1986) pour expliquer le processus de détérioration continue du matériau soumis à un essai de fluage. Le succès de cette modélisation de l'endommagement par fluage a incité son extension à l'endommagement par fatigue. Chaboche (1974) fut le premier à utiliser la mécanique de l'endommagement continu pour prédire la durée de vie par fatigue. Plus tard, plusieurs contributions ont été proposées par Lemaitre et Chaboche (1978; 1994) afin d'améliorer leurs modèles. L'initiation et la propagation des microfissures se produisent à travers une évolution continue de l'endommagement. L'hypothèse principale est que, en raison de ces microfissures, la section nette contribuant aux transferts de charge dans un échantillon ou dans une structure diminue avec l'endommagement.

L'initiation, la croissance et la coalescence des microdéfauts conduisent à la dégradation des propriétés des matériaux. L'introduction d'une variable interne dans le modèle de comportement, définissant l'état de dommage au niveau local et son évolution, permet de décrire le processus de dégradation des propriétés des matériaux. Le tenseur des contraintes

effectives $\tilde{\mathbf{T}}$ est lié au tenseur de contrainte de Cauchy \mathbf{T} en utilisant le concept de la contrainte effective introduite par Lemaitre et Chaboche (1994) :

$$\mathbf{T} = (1 - D)\tilde{\mathbf{T}} \quad (1.3.26)$$

où D est un scalaire définissant l'endommagement isotrope. La variable d'endommagement D est nulle à l'état initial (matériau vierge) et égale à 1 lors de la rupture (ou quand une fissure macroscopique est initiée).

La théorie de la mécanique de l'endommagement continu a été récemment appliquée sur un caoutchouc de type NR par Wang et al. (2002), et constitue la seule étude publiée à ce jour. Utilisant le cadre de la mécanique de l'endommagement continu, et une expression de l'énergie de déformation du premier ordre proposée par Ogden (1972), les auteurs aboutissent à une expression analytique de la durée de vie. Le développement mathématique du modèle et la vérification expérimentale ont été réalisés en traction uniaxiale uniquement.

Chapitre 2. Modélisation du comportement en grandes déformations des polymères

1. Introduction

En raison de l'intérêt croissant porté aux polymères dans de nombreux domaines industriels, il est indispensable pour l'ingénieur en conception mécanique de disposer d'outils prédictifs permettant de décrire les réponses mécaniques des composants sous des conditions de chargement représentatives de celles rencontrées en service. La construction de tels outils passe nécessairement par l'élaboration de lois de comportement suffisamment robustes pour prendre en compte la complexité due au comportement fortement non linéaire. Celui-ci dépend de facteurs externes (tels que la triaxialité, la vitesse de déformation et la température) et de facteurs internes liés aux paramètres structuraux (tels que le degré de cristallinité, la masse molaire et les enchevêtrements entre chaînes). La modélisation du comportement mécanique des polymères s'appuie sur deux grandes approches :

- Les approches phénoménologiques couramment mises en œuvre qui s'appuient sur une solide base thermodynamique (second principe) mais dont les paramètres, en général, n'ont pas ou peu de signification physique pertinente.
- Les approches dites « physiques » qui intègrent dans leurs modèles des paramètres représentatifs de toute ou partie de la microstructure, mais qui peuvent s'avérer complexes à mettre en œuvre et qui, souvent, ne décrivent que partiellement le comportement.

Dans ce chapitre, on s'intéresse au comportement mécanique du polyéthylène (PE) en grandes déformations. Du point de vue expérimental, plusieurs taux de cristallinité sont examinés, ce qui permet d'obtenir un spectre large de réponses mécaniques, allant du comportement caoutchoutique (faible cristallinité) au comportement viscoplastique (forte cristallinité). La réponse mécanique des matériaux PE en grandes déformations est examinée sous des conditions de vitesse de déformation vraie constante. Une approche hyperélastique-

Chapitre 2. Modélisation du comportement en grandes déformations des polymères

viscoplastique à base physique est adoptée pour développer un modèle permettant de décrire le comportement mécanique des matériaux PE en grandes déformations. Le polymère semi-cristallin étant traité comme un milieu hétérogène, le modèle est basé sur une représentation à deux phases de la microstructure. Dans une seconde partie de ce chapitre, une modification du modèle précédent est proposée afin de modéliser le comportement mécanique, hyperélastique-viscoélastique-viscoplastique, d'un PE haute densité, obtenu à partir de tubes utilisés pour le transport de fluides, sous des essais en charge-décharge. Pour analyser la réponse mécanique non linéaire et dépendante du temps, des essais mécaniques ont été réalisés à température ambiante dans des conditions de vitesse de déformation vraie constante et de relaxation. Dans ce modèle, on garde le même schéma rhéologique utilisé précédemment en considérant le polymère semi-cristallin comme un composite à deux phases. Les mécanismes inélastiques associent deux éléments en parallèle : une résistance du réseau visco-hyperélastique agissant en parallèle avec une résistance intermoléculaire viscoélastique-viscoplastique, dont les phases amorphe et cristalline sont explicitement prises en considération.

2. Effet du taux de cristallinité sur le comportement mécanique du PE en grandes déformations

L'objectif de cette partie est de construire un modèle prédictif permettant de décrire le comportement mécanique en grandes déformations du PE. L'élaboration du modèle se fait sur la base de l'approche développée par Ahzi et al. (2003) dans laquelle nous introduisons une modification permettant de rendre compte d'un certain nombre d'observations expérimentales. A cet effet, des essais sur des PE à différents taux de cristallinité permettent d'affiner l'identification des paramètres du modèle liée à chacune des phases en présence (amorphe et cristalline). Des analyses de morphologie de la phase cristalline ont également été menées afin d'interpréter les mécanismes de déformations. Des essais mécaniques de traction uniaxiale à différentes vitesses de déformation permettent pour une partie d'identifier les paramètres du modèle, et pour l'autre partie de s'assurer du caractère prédictif de celui-ci et donc de sa robustesse.

Chapitre 2. Modélisation du comportement en grandes déformations des polymères

Nous présenterons donc dans un premier temps les matériaux étudiés ainsi que les essais permettant leur caractérisation physico-chimique. Dans un deuxième temps, nous traiterons des essais mécaniques réalisés puis du modèle proposé.

2.1. Structure et propriétés physiques du PE

Une particularité des composés macromoléculaires est de cristalliser sous forme de chaînes repliées. Le comportement mécanique des polymères semi-cristallins dépend étroitement de la structure moléculaire et de la morphologie cristalline. Ainsi, la contrainte au seuil d'écoulement augmente avec la cristallinité et l'épaisseur des cristaux. Dans l'objectif d'étudier systématiquement l'influence de la structure cristalline sur les propriétés physiques, le PE constitue un matériau modèle de par la simplicité de sa maille cristalline et sa structure conformationnelle, et par la grande diversité d'architectures moléculaires que lui confèrent les différents procédés de polymérisations, c'est-à-dire la voie radicalaire donnant des chaînes ramifiées à branches longues, la voie catalytique à l'origine des chaînes linéaires et la copolymérisation.

Le PE est un polymère qui cristallise facilement en raison de la grande souplesse et de la régularité de sa chaîne macromoléculaire qui ne présente aucune restriction de tacticité. La forme cristalline la plus stable du PE est orthorhombique (Peacock, 2001). Le PE est classé en différentes catégories suivant la densité et le type de branchements. Leurs propriétés mécaniques sont très sensibles aux taux et types de branchements mais aussi à la structure cristalline (principalement l'épaisseur des lamelles cristallines) et du poids moléculaire comme tout polymère. Les modes de synthèse sont à l'origine des différences d'architecture moléculaires, à savoir que les branches latérales ont tendances à gêner la cristallisation (encombrement stérique).

2.1.1. Présentation des matériaux

Les matériaux PE étudiés dans ce travail se compose d'un copolymère Ziegler-Natta éthylène-hexène haute densité (HD) fourni par Total, d'un copolymère d'éthylène-octène linéaire basse densité (LL) et d'un copolymère d'éthylène-octène de très faible densité (UL) fourni par DOW Chemicals, tous deux issus de la catalyse métallocène.

Chapitre 2. Modélisation du comportement en grandes déformations des polymères

Le HD est constitué de macromolécules non ou peu branchées. Généralement, ils sont constitués d'homopolymères contenant un seul branchement court CH₂ pour 1000 atomes de carbone de la chaîne principale. Ces matériaux présentent donc un haut degré de cristallinité (car proportions de branches latérales très faibles). Le HD de cette étude est obtenu par catalyse Ziegler-Natta. Ce procédé est basé sur l'utilisation de catalyseurs et nécessite des pressions faibles, typiquement inférieur à 50 bars. Il permet d'obtenir des chaînes macromoléculaires linéaires donc plus facilement cristallisables. La polymérisation catalysée selon le procédé Ziegler-Natta (utilisation d'un complexe organo-métallique), permet un meilleur contrôle de la longueur des chaînes, des ramifications et un travail dans des conditions de température et de pression plus faibles.

Le LL est issu de copolymères de l'éthylène et de α -oléfines. La présence du comonomère α -oléfine conduit à des chaînes linéaires à branchements courts. La teneur en comonomères permet d'obtenir une large gamme de masse volumique, entre 10 et 50 pour 1000 atomes de carbones de la chaîne principale. Le LL a été obtenu par catalyse métallocène. La catalyse à site unique, principe de la technologie, permet d'obtenir des polymères aux performances supérieures. Comme pour les catalyseurs multi-réactifs Ziegler-Natta, la technologie métallocène est basée sur des métaux de transition, mais offre des polymères aux structures moléculaires plus homogènes, et par conséquent plus « programmables », pour des applications spécifiques.

Le UL est un PE comportant une très grande concentration de comonomères, supérieur à 50 pour 1000 atomes de carbone de la chaîne principale. Cette teneur élevée gêne fortement la cristallisation et conduit à un matériau essentiellement non cristallin. Le UL utilisé dans cette étude a été obtenu par catalyse métallocène.

Matériaux	M_n (kDa)	M_w (kDa)	ξ (mole%) [†]	ρ (g/cm ³)
UL	75	150	12 (60)	0,870
LL	50	104	5,0 (25)	0,902
HD	14	174	0,1 (0,5)	0,959

Tableau 2.2.1. Caractérisation moléculaire et densité des matériaux PE.

[†] hexène pour HD; octène pour LL et UL. Entre parenthèse est donné la concentration de comonomères pour 1000 atomes.

Chapitre 2. Modélisation du comportement en grandes déformations des polymères

Du fait de leur grande diversité de structure cristalline et taux de cristallinité, le PE présente une large gamme de propriétés. Les caractéristiques moléculaires et physiques des trois matériaux fournies par les fabricants sont reportées dans le tableau 2.2.1. Les principales caractéristiques du matériau sont la masse moléculaire moyenne en nombre M_n , la masse moléculaire moyenne en poids M_w (déterminée par la méthode de chromatographie d'exclusion stérique), le pourcentage de co-monomère en poids ξ qui est le principal facteur contrôlant la cristallinité et, à travers la densité du matériau ρ . La synthèse des polymères aboutit le plus souvent à une distribution de chaînes de longueurs différentes, on ne peut parler de masse molaire mais de masses molaires moyennes s'exprimant en $\text{g}\cdot\text{mol}^{-1}$ ou en kilodalton (kDa) (unité de masse des atomes, le dalton Da défini comme égale à $1/12^{\text{e}}$ de la masse d'un atome de carbone 12). La masse molaire en nombre M_n est calculée en utilisant l'équation suivante :

$$M_n = \frac{\sum_i N_i M_i}{\sum_i N_i} \quad (2.2.1)$$

où i est le degré de polymérisation, M_i est la masse molaire et N_i est le nombre de chaînes de masse molaire M_i .

La masse molaire en poids M_w est déterminée par l'équation suivante :

$$M_w = \frac{\sum_i m_i M_i}{\sum_i m_i} = \frac{\sum_i N_i M_i^2}{\sum_i N_i M_i} \quad (2.2.2)$$

où m_i est la masse d'une chaîne de degré de polymérisation i .

Pour la caractérisation et l'étude mécanique, les granulés de polymères ont été moulés par compression moulage à 180°C pendant 10 min pour obtenir des plaques de 0,5 et 1 mm d'épaisseur.

2.1.2. Analyse thermique

2.1.2.1. Analyse par calorimétrie différentielle à balayage

La calorimétrie différentielle à balayage ou DSC (pour Differential Scanning Calorimetry) est une méthode permettant de déterminer les caractéristiques thermiques des matériaux. La mesure fournie est le flux thermique nécessaire pour que la température de l'échantillon augmente ou diminue à une vitesse choisie. Ce flux thermique est directement proportionnel à

Chapitre 2. Modélisation du comportement en grandes déformations des polymères

la capacité calorifique du matériau à une température donnée. Des transformations thermodynamiques de premier ordre comme la fusion vont se traduire par un pic, dont la surface est proportionnelle à l'enthalpie de transformation.



Figure 2.2.1. Appareil Q100 de TA-Instruments pour les essais de DSC.

Les essais de DSC ont été effectués sur un appareil Q100 de TA-Instruments fonctionnant sous flux d'azote gazeux (figure 2.2.1). L'échelle de température et du flux de chaleur ont été calibrés à l'aide des échantillons d'indium et de zinc de haute pureté. Des échantillons d'environ 8 mg insérés dans les moules en aluminium ont été soumis à des cycles de chauffage et de refroidissement entre -50°C et 180°C à une vitesse de balayage de $10^{\circ}\text{C}/\text{min}$, en maintenant les échantillons pendant 3 min à chaque limite de température. Le premier balayage en température est nécessaire afin d'effacer l'histoire thermomécanique subie par le matériau. Le second balayage en température est effectué pour réaliser des analyses complémentaires. Toutes les mesures DSC ont été effectuées au moins trois fois afin de vérifier la reproductibilité, en utilisant un nouvel échantillon pour chaque balayage.

La figure 2.2.2 présente les thermogrammes au chauffage des trois types de PE. Le tableau 2.2.2 donne la température de fusion T_f mesurée à l'extremum de la fusion endotherme ainsi que les taux de cristallinité obtenus. Les valeurs trouvées pour le HD sont typiques d'un PE hautement cristallin. En ce qui concerne les matériaux UL et LL, la fusion endotherme très étalée est révélatrice d'une très grande distribution de taille des cristaux, associée à une répartition non uniforme des comonomères dans les chaînes. En général, la distribution des comonomères et des masses molaires dans les copolymères issus de la technologie métallocène est plus étroite que celle des copolymères obtenus par catalyse Ziegler-Natta.

Chapitre 2. Modélisation du comportement en grandes déformations des polymères

Toutefois, une large distribution dans la répartition des comonomères est observée pour les copolymères métallocènes à teneurs élevées en comonomères (Soares et al., 1997), ce qui est le cas des UL et LL de cette étude. Dans le copolymère UL, l'étendue de l'endotherme de fusion bien en dessous de la température ambiante traduit le fait que des chaînes riches en comonomères cristallisent au refroidissement sous cette température ambiante, mais peuvent aussi cristalliser par vieillissement/recuit lors d'un long maintien à température ambiante. Les thermogrammes de cristallisation/fusion sont donc étudiés après avoir effacé l'histoire thermomécanique du matériau par une première fusion.

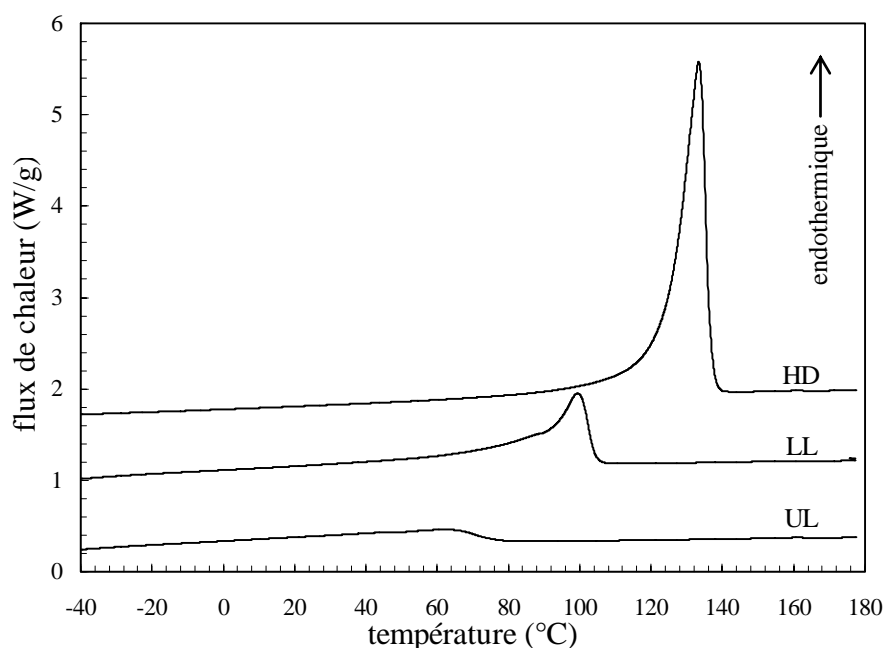


Figure 2.2.2. Résultats DSC pour les trois matériaux PE.

Matériaux	T_f (°C)	$\Delta H_f^{0corr.}$ (J/g)	χ_{cw} (%)	χ_{cv} (%)
UL	$60,9 \pm 0,1$	$\sim 290,3$	$17,4 \pm 0,3$	$15,1 \pm 0,2$
LL	$99,8 \pm 0,5$	$\sim 299,3$	$33,3 \pm 0,8$	$30,0 \pm 0,7$
HD	$133,5 \pm 0,2$	$\sim 296,5$	$75,5 \pm 0,8$	$72,4 \pm 0,8$

Tableau 2.2.2. Caractéristiques thermiques des matériaux PE.

La fraction en poids de la phase cristalline χ_{cw} est calculée, à partir de l'enthalpie de fusion ΔH_f déterminée par DSC, en utilisant la relation :

$$\chi_{cw} = \frac{\Delta H_f}{\Delta H_f^0} \quad (2.2.3)$$

Chapitre 2. Modélisation du comportement en grandes déformations des polymères

où ΔH_f^0 est l'enthalpie de fusion du cristal parfait du PE. Cette valeur est prise égale à 290 J/g (Wunderlich, 1980).

Parce que le comportement mécanique a été étudié à température ambiante (environ 20°C), il est nécessaire de calculer χ_{cv} à cette température. Comme on peut le voir sur la figure 2.2.2, l'utilisation de toute surface sous la courbe de fusion sur-évaluera largement ΔH_f pour le matériau UL. Cette dernière valeur a donc été déterminée par l'intégration de l'endotherme de fusion du UL entre 20°C et 80°C (figure 2.2.2). En outre, compte tenu de la dépendance vis-à-vis de la température de l'enthalpie de fusion ΔH_f^0 et la différence assez grande de T_f entre les trois matériaux, l'effet sur ΔH_f^0 avec la baisse de la température de fusion a été pris en compte (Wunderlich, 1980). Les données sur la fraction en poids de la cristallinité à la température ambiante sont reportées dans le tableau 2.2.2 en tenant compte de la correction sur l'enthalpie de fusion ($\Delta H_f^{0corr.}$). Sont également indiqués dans le tableau 2.2.2 les fractions en volume de cristal χ_{cv} , données indispensables pour la modélisation du comportement mécanique. Le calcul est effectué en utilisant la relation suivante :

$$\chi_{cv} = \frac{\rho_c}{\rho} \chi_{cv} \quad (2.2.4)$$

où ρ est la densité moyenne du matériau et $\rho_c = 1 \text{ g/cm}^3$ celle de la phase cristalline.

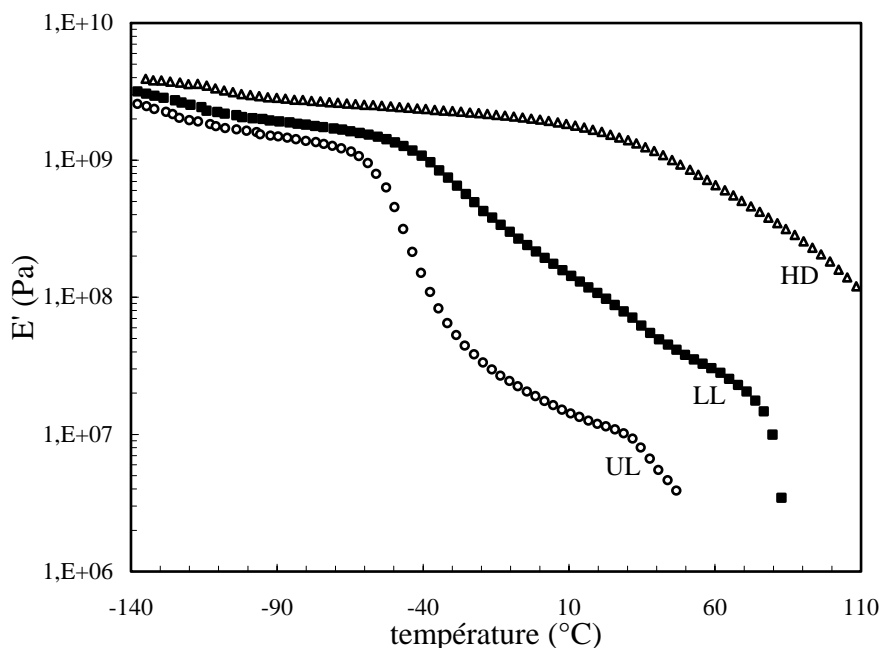
2.1.2.2. Analyse thermomécanique dynamique

L'analyse thermomécanique dynamique ou DMTA (pour Dynamic Mechanical Thermo-Analysis) d'un matériau polymère a pour but l'étude de sa réponse à une sollicitation mécanique dynamique de forme sinusoïdale en fonction du temps et de la température. Les variations du module de Young complexe et du facteur d'amortissement permettent de déterminer les différentes transitions que subit un polymère en fonction de la température comme par exemple la transition vitreuse. Ces essais ont été réalisés sur un appareil RSA3 (TA Instruments, Wilmington DE, USA) en mode de traction. Les éprouvettes d'essais sont de forme parallélépipédique de 10 mm de longueur, 4 mm de large et 0,5 mm d'épaisseur. Les mesures ont été effectuées à une fréquence de 1 Hz, dans une gamme de température s'étendant de -140 à +120°C, avec une amplitude de déformation dynamique de 0,1 %, la

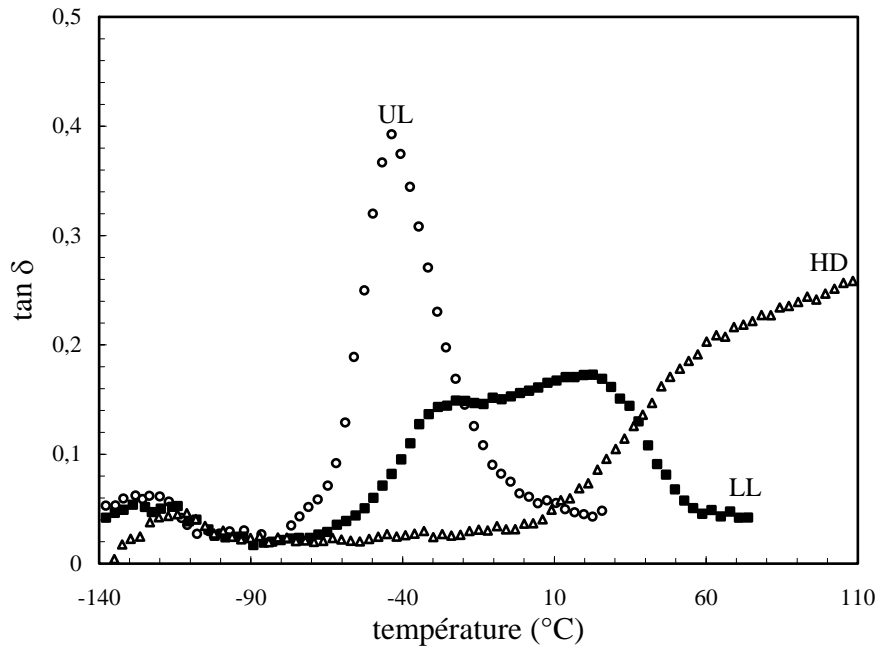
Chapitre 2. Modélisation du comportement en grandes déformations des polymères

contrainte statique étant de 10% plus élevée que l'amplitude de la contrainte dynamique afin d'éviter tout problème de flambage.

Les évolutions du module de conservation E' et du facteur de perte $\tan \delta$ en fonction de la température sont reportées sur la figure 2.2.3 pour les trois matériaux PE. Les trois relaxations typiques de matériaux à base de PE peuvent être observées à travers les pics enregistrés sur l'évolution du facteur de perte. La relaxation γ qui apparaît clairement dans la gamme de température (-140°C/-110°C) des courbes de $\tan \delta(T)$ est globalement similaire pour les trois matériaux PE, indépendamment de leur indice de cristallinité. Cela est conforme à aux mouvements locaux de la chaîne, tant dans le cristal et que dans les régions amorphes (Hoffman et al., 1966). La très faible baisse de la raideur dans les courbes de $E'(T)$ confirme que la relaxation γ n'est pas un processus de collaboration pour les systèmes actuels. En ce qui concerne la relaxation β dans la gamme de température (-60°C/-40°C), la baisse marquée de $E'(T)$ révèle clairement un processus de coopération qui peut être attribué à la relaxation principale dans la phase amorphe (Hoffman et al., 1966). Ce résultat est en accord avec ceux de Bensason et al. (1996) sur le comportement en relaxation de métallocènes copolymères de faible densité. On note également la dépendance de l'amplitude de la relaxation β vis-à-vis du taux de cristallinité : élevée dans le cas du UL, plus faible pour le LL et presque imperceptible pour le HD. Une explication possible pour le HD est la prédominance de la phase cristalline qui masque les capacités d'amortissement de la phase amorphe en raison de sa faible capacité de transfert des contraintes dans la matrice.



(a)



(b)

Figure 2.2.3. DMTA du matériau PE : (a) module de conservation E' , (b) facteur de perte $\tan \delta$ en fonction de la température.

La relaxation α attribuée à l'activation des mouvements moléculaires dans le cristal apparaît dans une large gamme de températures au-delà de 20°C. Si la cristallinité est un paramètre influençant l'amplitude de la relaxation α , le principal facteur de sa dépendance à la température est l'épaisseur du cristal (Popli et al., 1984). Il est important de faire remarquer que le copolymère UL n'affiche aucun signe visible d'amortissement dans cette gamme de températures. Une explication analogue à celle concernant la relaxation β du copolymère HD peut être proposée : la phase cristalline dispersée n'est pas en mesure d'exprimer ses capacités d'amortissement dû au transfert des contraintes déficientes de la matrice caoutchoutique dans lequel il est intégré.

2.1.3. Caractérisation microstructurale

2.1.3.1. Analyse par diffusion des rayons X aux petits angles

Le principe de l'analyse par diffusion des rayons X aux petits angles (SAXS) est de mesurer et analyser les modulations de l'intensité diffusée par un faisceau de rayons X traversant l'échantillon et à des angles extrêmement proches du faisceau direct. De façon générale toute

Chapitre 2. Modélisation du comportement en grandes déformations des polymères

interface ou structuration suffisamment répétée ou contrastée, mettant en jeu des domaines dans l'échantillon qui n'ont pas la même densité électronique, conduira à l'apparition d'un signal de diffusion aux petits angles. Le signal X petits angles peut provenir de plusieurs sources notamment des défauts d'un cristal si ceux-ci sont suffisamment nombreux.

Les essais SAXS ont été réalisées sur la ligne de lumière BM02 de l'Installation Européenne de Rayonnement Synchrotron à Grenoble à une distance de 127 cm de l'éprouvette à une longueur d'onde $\lambda = 1.54 \text{ \AA}$. Les profils d'intensité $I(q)$ par rapport au vecteur de diffusion q ont été calculés par l'intégration azimutale du modèle 2D en utilisant le logiciel FIT2D. La longue période $L_p = L_c + L_a$ a été calculée grâce à la relation de Bragg :

$$\begin{aligned} n\lambda &= 2L_p \sin \theta \\ q &= \frac{4\pi}{\lambda} \sin \theta \end{aligned} \quad (2.2.5)$$

où L_c est l'épaisseur moyenne des lamelles de cristal, L_a est l'épaisseur moyenne des couches amorphes, 2θ est l'angle de diffraction et n est l'ordre de diffraction.

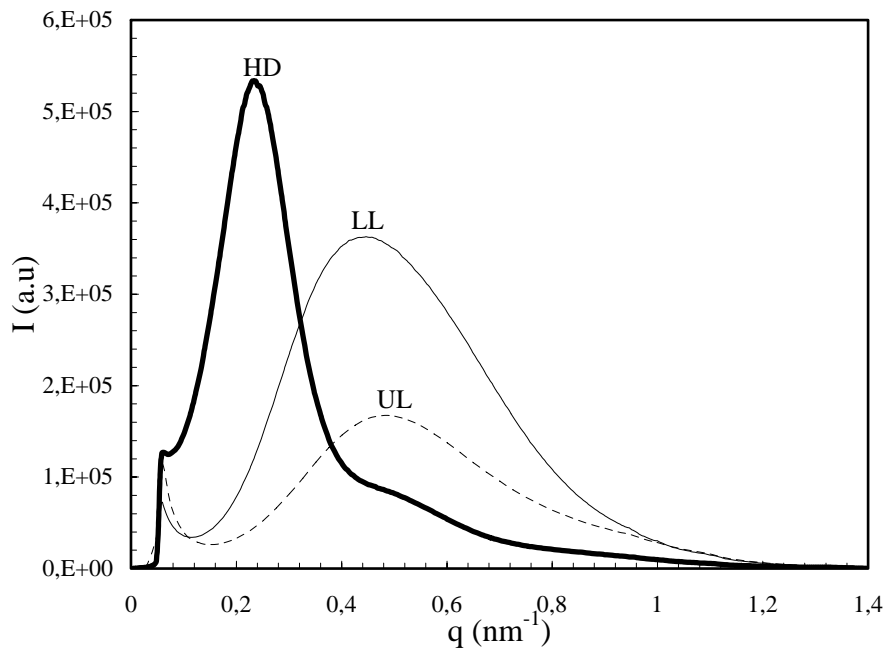


Figure 2.2.4. Profils SAXS d'intensité $I(q)$ des matériaux PE.

Les profils d'intensité $I(q)$ tracés dans la figure 2.2.4 pour les trois copolymères présentent un pic de corrélation relatif à un empilement périodique de cristallites. En outre, contrairement aux copolymères LL et UL, le copolymère HD révèle une harmonique indicative d'un empilement très régulier de cristaux lamellaires avec $L_p = 26.5 \text{ nm}$. La

Chapitre 2. Modélisation du comportement en grandes déformations des polymères

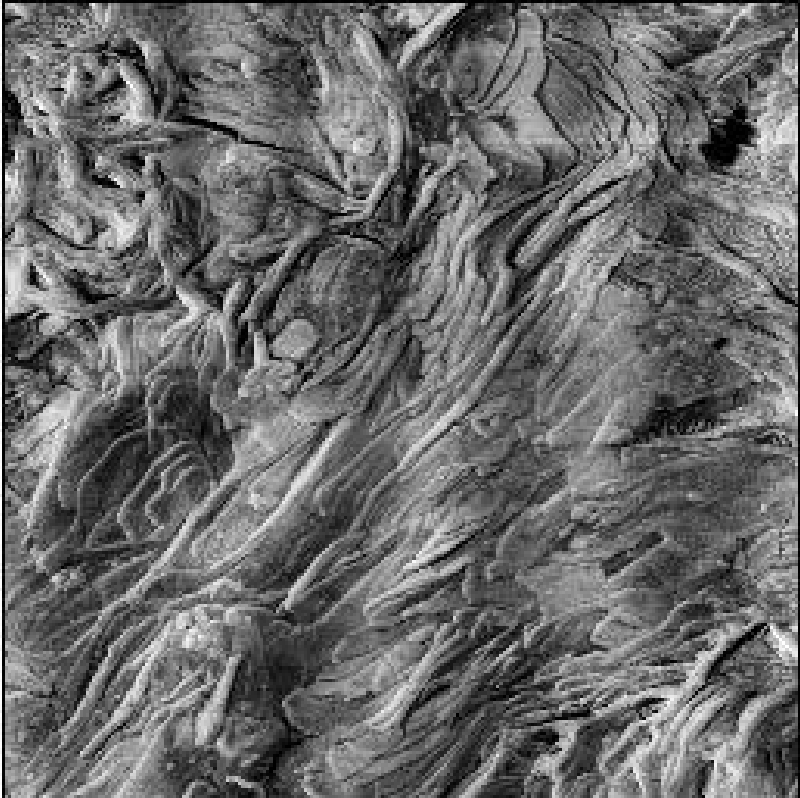
largeur du pic de corrélation des copolymères LL et UL est un indicateur d'une distribution très large du L_p en raison d'une large distribution d'épaisseur des couches amorphes et des lamelles cristallines, ce qui est en accord avec le comportement à la fusion. La similitude des pics entre le UL et le LL indique des valeurs de L_p très proches, égales à 13 nm et 14 nm, respectivement. Cela ne signifie pas que les deux copolymères ont la même épaisseur de cristal, cela signifie juste que $L_p = L_c + L_a$ est à peu près le même avec des valeurs différentes pour l'épaisseur de la couche amorphe L_a et l'épaisseur du cristal L_c . En outre, la forte différence d'intensité entre les deux copolymères semble compatible avec leur indice de cristallinité respectif.

2.1.3.2. Analyse par microscopie à force atomique

La microscopie à force atomique ou AFM (pour Atomic Force Microscopy) fait partie de la famille des microscopies à champ proche (ou microscopies à sonde locale). Le principe de l'AFM est de balayer la surface d'un échantillon à l'aide d'un levier muni d'une pointe pour en avoir une image en trois dimensions avec une résolution spatiale allant de quelques dizaines de microns au dixième de nanomètre.

La caractérisation par AFM a été réalisée à température ambiante. La profondeur de pénétration de l'extrémité de la sonde par rapport à la taille des couches cristallines et amorphes a été calibrée afin d'optimiser le contraste entre les phases ; des détails sur le matériel utilisé est donné par Ferreiro et Coulon (2004). Les échantillons ont été préparés en assurant un refroidissement lent à partir de l'état fondu et en gardant la surface libre afin de générer une cristallisation naturelle.

Des exemples des images AFM des trois copolymères sont rapportés dans la figure 2.2.5. Les données AFM montrent des caractéristiques pertinentes de la morphologie des deux phases dans les trois matériaux PE. Les morphologies du cristal sont différentes dans les trois matériaux. Une distribution isotrope des lamelles cristallines peut être clairement vue dans le HD et le LL. Ces lamelles sont encore plus longues et plus épaisses dans le HD. La morphologie n'est pas aussi bien définie dans le UL qui présente de fines cristallites qui s'apparente à des micelles frangées, comme l'a d'ailleurs déjà suggéré Bensason et al. (1996) pour les copolymères de très faible densité.



0 (a) 5 μm



0 (b) 5 μm

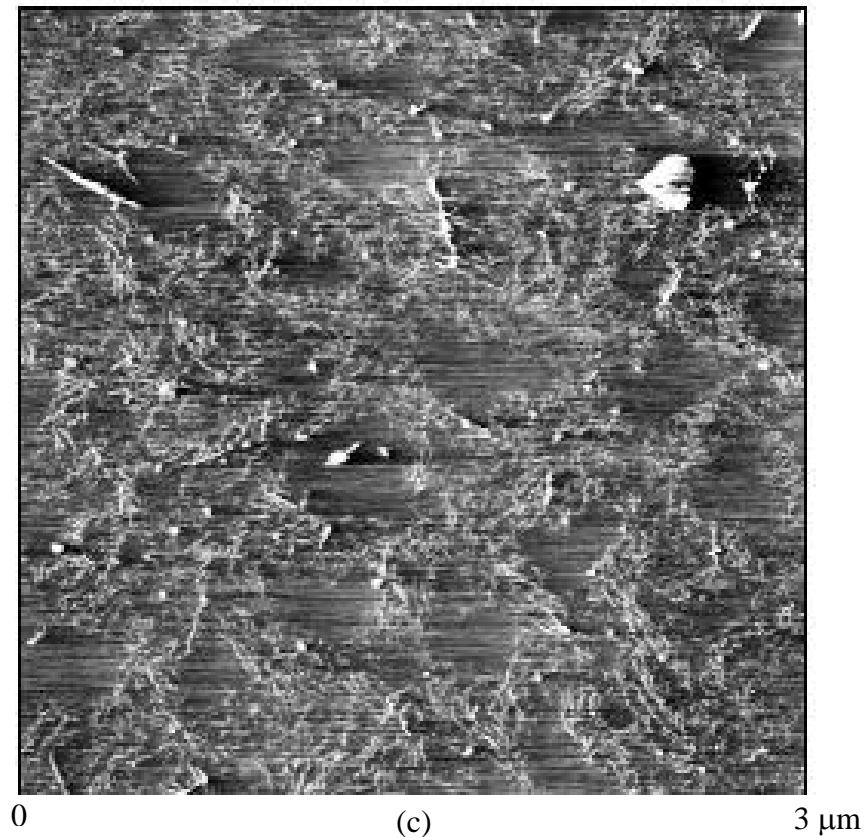


Figure 2.2.5. Images AFM des matériaux PE : (a) HD, (b) LL, (c) UL.

2.2. Réponse contrainte - déformation du PE

Les essais mécaniques que nous avons réalisés sur les trois matériaux PE ont été conduits en traction uniaxiale à vitesse de déformation vraie constante et à température ambiante. Les déformations maximales subies par les échantillons peuvent atteindre 1,8 en déformation logarithmique. Cinq vitesses de déformation, couvrant deux décades, ont été appliquées.

2.2.1. Description des essais expérimentaux

Les échantillons de traction ont été découpés dans des plaques de PE de 1 mm d'épaisseur (figure 2.2.6). Une courbure de rayon 120 mm est imposée dans la partie centrale de l'échantillon afin de localiser la déformation dans la section tout en conservant une triaxialité des contraintes de l'ordre de 0,33.

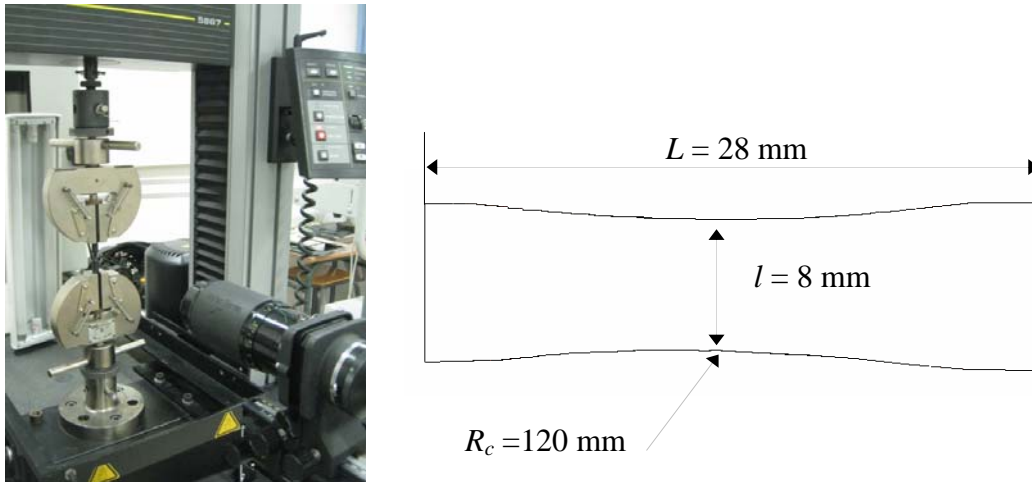


Figure 2.2.6. Système de mesure de la déformation et caractéristiques géométriques des éprouvettes.

Ce choix de géométrie est rendu nécessaire par le système de pilotage en vitesse de déformation vraie constante, basé sur le suivi de la zone active de l'éprouvette, là où se passe l'instabilité plastique. Ce système de mesure de déformation sans contact (figure 2.2.6) a été développé par Appollor (G'Sell et al., 2002). Un tel système de pilotage permet de maintenir une vitesse de déformation vraie constante même au delà de la striction qui apparaît très rapidement pour ce type de matériau. Les essais mécaniques ont été réalisés à température ambiante à l'aide d'une machine d'essai universelle Instron-5800 connectée au système vidéo. La force appliquée a été mesurée à l'aide d'une cellule de charge standard, puis convertis en contrainte axiale vraie (Cauchy) en utilisant la section réelle transversale de l'échantillon extraite des mesures vidéo, en faisant une hypothèse d'isotropie transverse.

2.2.2. Résultats expérimentaux

2.2.2.1. Effet du taux de cristallinité

La figure 2.2.7 montre, pour les trois matériaux, l'évolution de la contrainte axiale de Cauchy en fonction de la déformation longitudinale logarithmique pour une vitesse de déformation vraie de $0,001 \text{ s}^{-1}$. On peut constater que la réponse contrainte-déformation est fortement non linéaire quelque soit le matériau. Une forte dépendance du comportement vis-à-vis de la fraction volumique de cristal est également mise en évidence. La figure montre aussi que la rigidité initiale et la limite d'élasticité augmentent avec le taux de cristallinité. L'écoulement

Chapitre 2. Modélisation du comportement en grandes déformations des polymères

viscoplastique est également influencé par ce paramètre. La figure montre clairement que le matériau UL présente, en phase de chargement, une réponse analogue à celle observée sur les caoutchoucs à savoir une rigidité et des niveaux de contraintes faibles pour des niveaux de déformation importants, suivi d'un durcissement important aux grandes déformations. Les deux autres matériaux présentent une limite d'élasticité plus évidente à détecter, plus particulièrement dans le cas du matériau HD. Pour ce dernier, qui possède le taux de cristallinité le plus élevé, le comportement mécanique est plutôt de type viscoplastique, caractéristique des polymères thermoplastiques à l'état vitreux. Le HD présente une rigidité initiale conséquente comparativement aux deux autres matériaux, suivie d'un coude assez marqué pour atteindre la limite élastique. La contrainte d'écoulement est ensuite relativement constante, le comportement présentant un léger adoucissement. Une phase de durcissement progressif est ensuite enregistrée suivi d'un durcissement important pour les très grandes déformations correspondant à l'alignement des chaînes dans la direction du chargement. Le matériau LL présente quant à lui une réponse mécanique intermédiaire entre le comportement d'un thermoplastique à l'état vitreux et celui plus typique d'un élastomère. Pour ce dernier, la limite élastique est plus difficilement détectable car le comportement est non linéaire quasiment dès le début du chargement. Cependant, le durcissement observé en grandes déformations présente les mêmes niveaux de contraintes que pour le HD.

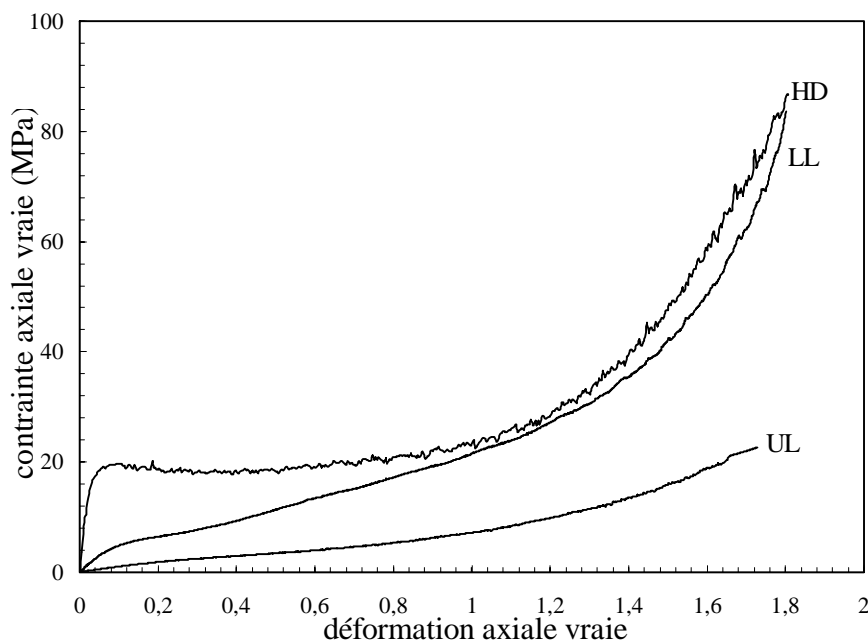
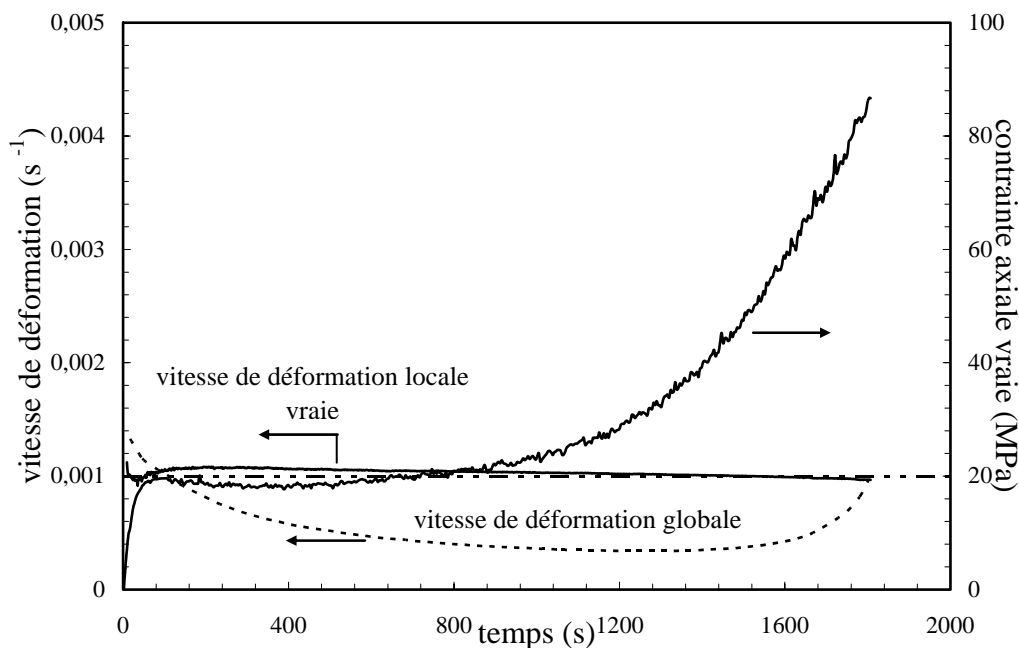


Figure 2.2.7. Réponse contrainte-déformation des matériaux PE à une vitesse de déformation vraie de $0,001 \text{ s}^{-1}$.

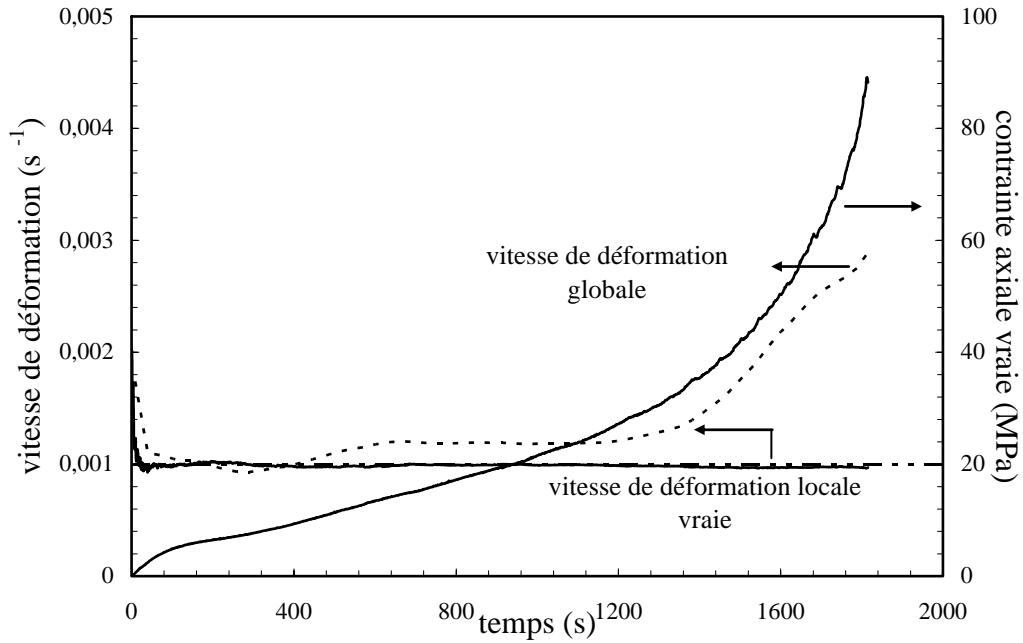
Chapitre 2. Modélisation du comportement en grandes déformations des polymères

Ainsi la diminution du taux de cristallinité conduit essentiellement à la transition du comportement caractéristique d'un thermoplastique à l'état vitreux au comportement caractéristique d'un thermoplastique à l'état caoutchoutique, ce qui est en accord avec les températures de transition vitreuse mesurée. Il en résulte une diminution de la rigidité initiale, un caractère non linéaire plus affirmé dès le début du chargement et une diminution de la limite d'élasticité. Le durcissement est également affecté, bien que celui observé pour le LL reste proche de la réponse du HD. Ce résultat ne peut être attribué au protocole expérimental puisqu'on s'est assuré de sa reproductibilité sur plusieurs essais.

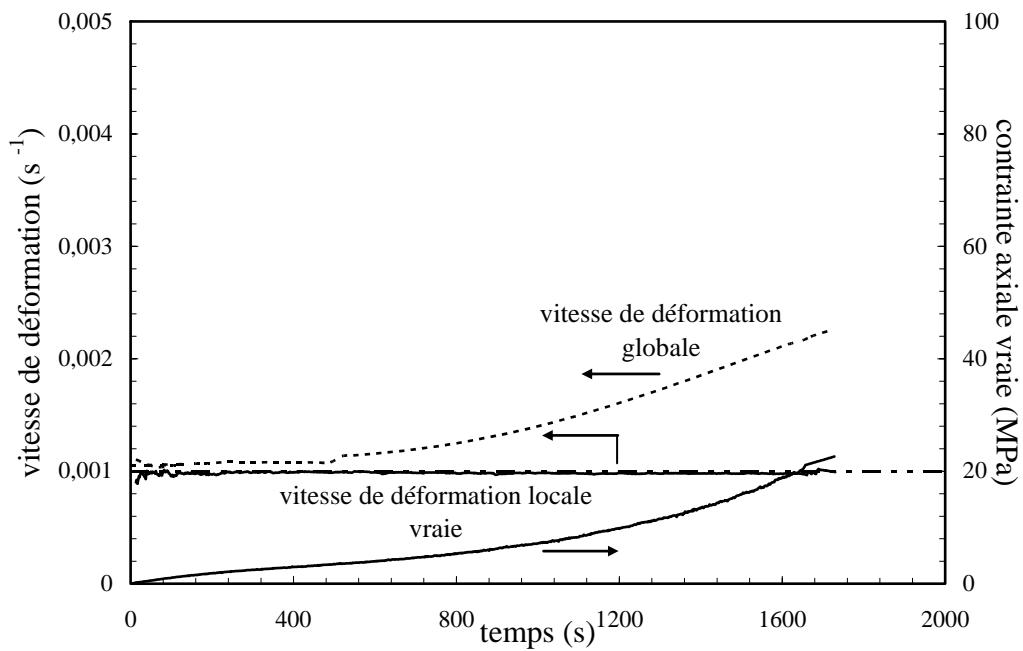
La figure 2.2.8 présente la variation avec le temps de la vitesse de déformation vraie locale et de la vitesse de déformation globale (calculée à partir de la vitesse de traverse de la machine divisée par la longueur de référence de l'échantillon). Les mesures ont été effectuées sous une vitesse de déformation locale vraie égale à $0,001 \text{ s}^{-1}$. La réponse correspondant à la contrainte en fonction du temps est également présentée dans cette figure. Dans le cas du matériau HD, il apparaît que le système de pilotage doit diminuer considérablement la vitesse de traverse de la machine d'essai afin de maintenir une vitesse de déformation vraie constante dans la striction, apparaissant à la limite d'élasticité de la courbe contrainte-temps. Une augmentation de la vitesse de la traverse de la machine est enfin observée pour des niveaux de déformations plus importants. Les perturbations en dents de scie observées dans les courbes de comportement peuvent être attribuées à l'ajustement instantané de la vitesse de déformation constante au cours de la forte striction.



(a)



(b)



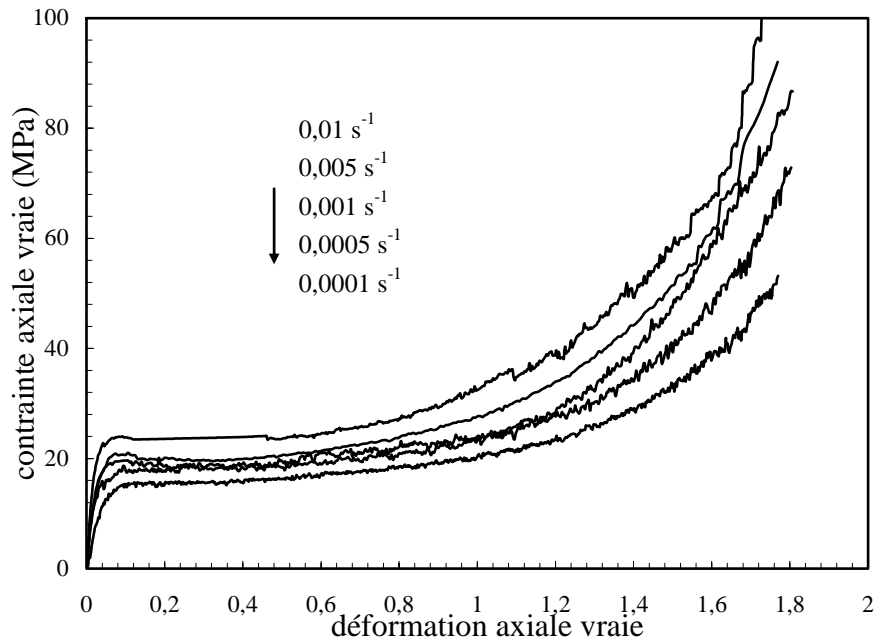
(c)

Figure 2.2.8. Vitesse de déformation locale vraie et vitesse de déformation globale en fonction du temps pour les trois matériaux PE : (a) HD, (b) LL, (c) UL.

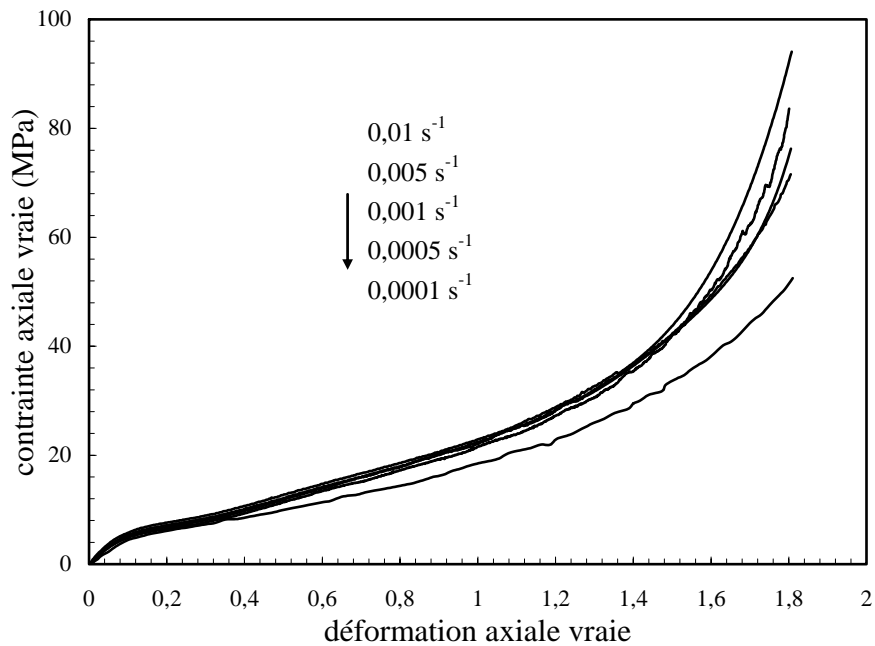
Pour les deux autres matériaux PE la régulation est activée seulement à la fin du processus de déformation. Ces observations renforcent nos remarques antérieures sur le type de comportement obtenu (thermoplastique/élastomère) en fonction de la teneur en cristal.

2.2.2.2. Effet de la vitesse de déformation

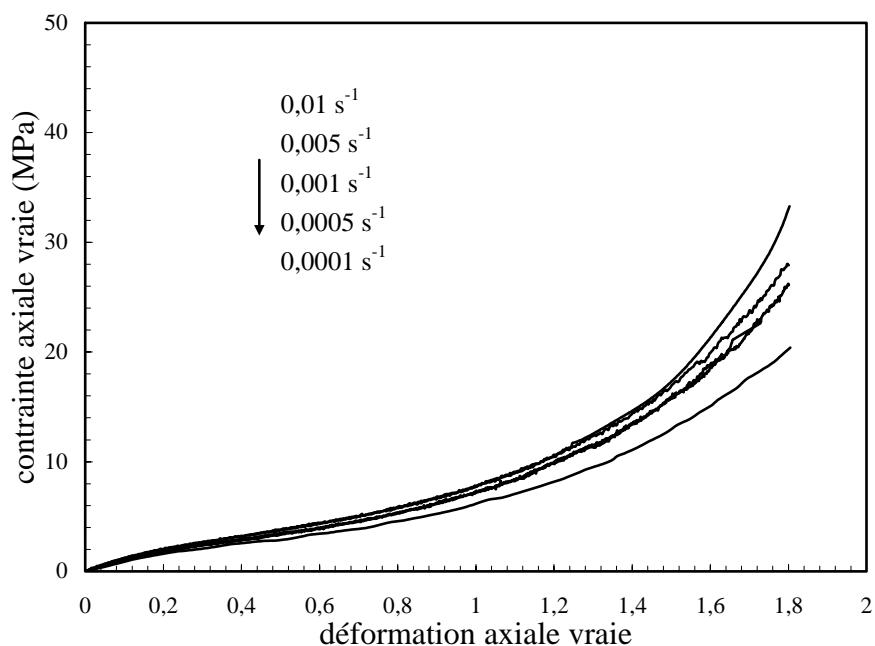
L'influence de la vitesse de déformation a également été examinée. Les évolutions obtenues en termes de contraintes en fonction des déformations sont présentées à la figure 2.2.9, pour différentes vitesses de déformation vraie.



(a)



(b)



(c)

Figure 2.2.9. Effet de la vitesse de déformation sur la réponse en contrainte-déformation des trois matériaux PE : (a) HD, (b) LL, (c) UL.

Pour le HD, les résultats mettent en évidence une forte dépendance du comportement vis-à-vis de ce paramètre. Ainsi, le module d'élasticité et la limite élastique sont affectés par la vitesse de déformation, bien que le module présente une sensibilité moindre. L'écoulement plastique, incluant plateau et durcissement, est également affecté par la vitesse de déformation. La dépendance du comportement en contrainte-déformation des matériaux LL et UL est plus mitigée. Il faut appliquer un saut de deux décades à la vitesse de déformation pour observer un effet marqué sur les réponses mécaniques. Ce constat est révélateur du comportement typique observé dans les élastomères.

2.3. Modélisation du comportement mécanique du PE

Notre objectif est maintenant d'obtenir un modèle de comportement en mesure de reproduire la réponse hyperélastique-viscoplastique des trois matériaux PE.

2.3.1. Présentation du modèle hyperélastique - viscoplastique

Pour modéliser le comportement en grandes déformations des trois matériaux PE, nous nous sommes basés sur l'approche développée récemment par Boyce et al. (2000) et Ahzi et al. (2003). La représentation rhéologique du modèle mécanique est donnée à la figure 2.2.10.

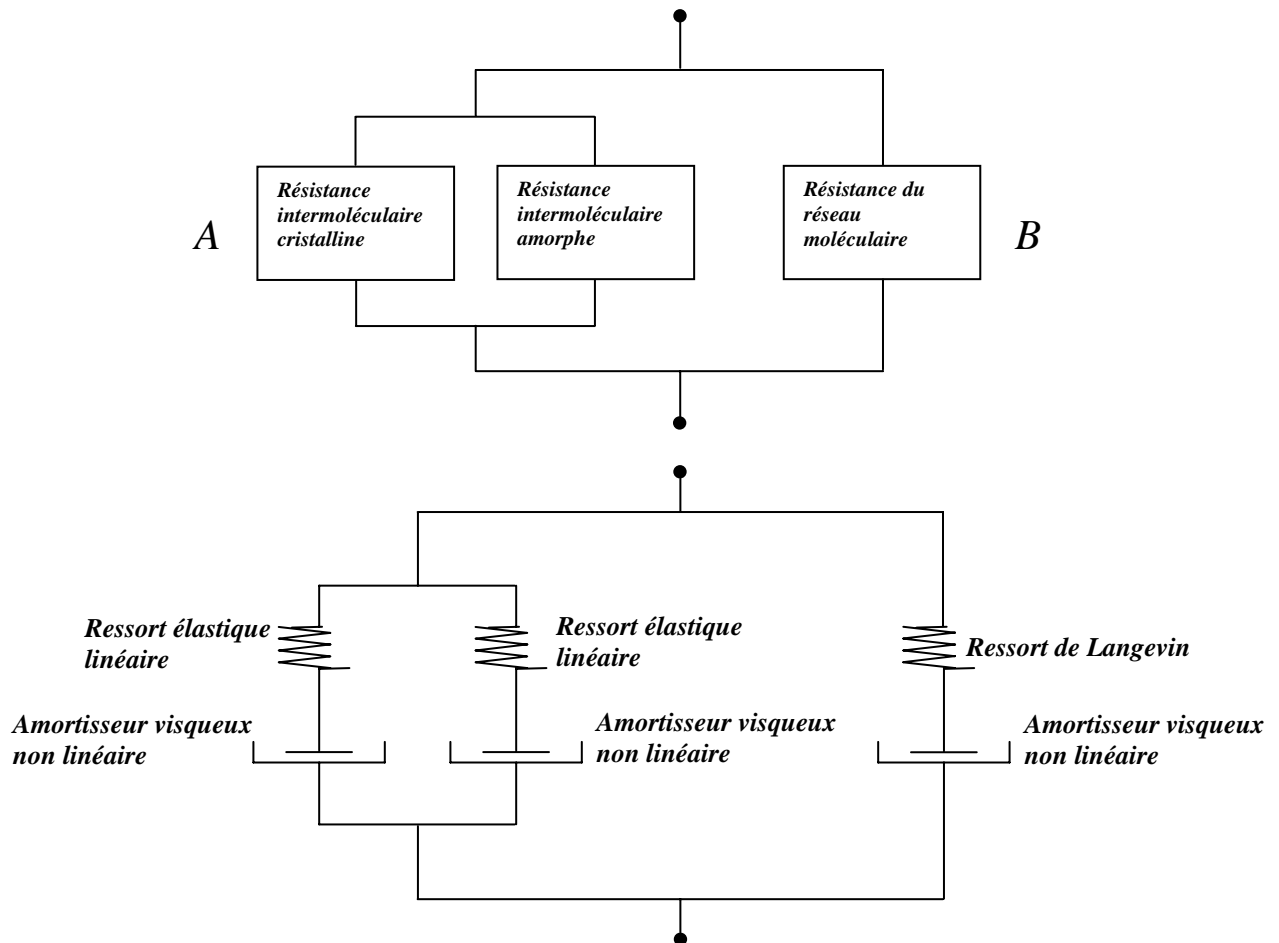


Figure 2.2.10. Représentation rhéologique du modèle.

Le cadre thermodynamique du modèle est formalisé en annexe A. Nous supposons que la résistance à la déformation dans le polymère semi-cristallin est la somme d'une résistance, notée A , due aux interactions intermoléculaires (constituée d'un ressort élastique en série avec un amortisseur visqueux) et d'une résistance, notée B , due à l'alignement du réseau macromoléculaire (constituée d'un ressort de Langevin en série avec un amortisseur visqueux). En outre, en raison de la présence de phases amorphe et cristalline dans le polymère semi-cristallin, deux mécanismes de déformation différents sont censés co-exister. Le couplage mécanique entre les deux modes de déformation dans la résistance

Chapitre 2. Modélisation du comportement en grandes déformations des polymères

intermoléculaire est réalisé à partir d'un formalisme composite, explicitant de fait l'influence du taux de cristallinité.

Puisque nous avons un système en parallèle, le gradient de déformation (voire la description cinématique en transformations finies donnée au chapitre 1) de chaque branche, \mathbf{F}_A et \mathbf{F}_B est égal au gradient de déformation totale \mathbf{F} :

$$\mathbf{F} = \mathbf{F}_A = \mathbf{F}_B \quad (2.2.6)$$

La contrainte totale de Cauchy \mathbf{T} dans le polymère semi-cristallin est la somme des contraintes de Cauchy de la résistance intermoléculaire \mathbf{T}_A et la résistance du réseau \mathbf{T}_B :

$$\mathbf{T} = \mathbf{T}_A + \mathbf{T}_B \quad (2.2.7)$$

2.3.1.1. Résistance A : interaction intermoléculaire

La résistance A est constituée par un ressort élastique en série avec un amortisseur visqueux. La réponse élastique initiale est représentée par un ressort, tandis que le comportement viscoplastique est conféré par l'élément visqueux. Comme le montre la représentation rhéologique de la figure 2.2.10, la résistance intermoléculaire est composée d'une résistance de la phase amorphe agissant en parallèle avec une résistance de la phase cristalline. En effet, et c'est une hypothèse, nous supposons que lors de l'écoulement plastique dans les polymères semi-cristallins, les deux phases agissent en parallèle dans la résistance intermoléculaire, ce qui est plausible pour des taux de cristallinité suffisamment élevés. Toutefois, comme indiqué par l'équation (2.2.14), nous avons choisi de pondérer le couplage parallèle entre les deux phases par l'introduction d'un paramètre heuristique β . Cette correction est nécessaire notamment pour décrire l'augmentation non linéaire de la rigidité élastique avec l'augmentation de la teneur en cristal, observée expérimentalement.

Sous cette hypothèse, le gradient de déformation pour la branche intermoléculaire est le même pour les deux phases :

$$\mathbf{F}_A^a = \mathbf{F}_A^c = \mathbf{F}_A \quad (2.2.8)$$

où \mathbf{F}_A^a et \mathbf{F}_A^c sont respectivement les gradients de déformation amorphe et cristallin. Les exposants c et a désignent respectivement les phases cristalline et amorphe.

Les gradients de déformation, \mathbf{F}_A^a et \mathbf{F}_A^c , peuvent être décomposés de manière multiplicative en parties élastique et viscoplastique conformément à l'approche de Lee (1969) :

Chapitre 2. Modélisation du comportement en grandes déformations des polymères

$$\mathbf{F}_A^i = \mathbf{F}_A^{e-i} \mathbf{F}_A^{p-i} \quad (2.2.9)$$

où l'exposant i désigne la phase considérée (cristalline c ou amorphe a). Les exposants e et p désignent respectivement les parties élastique et viscoplastique.

Utilisant la décomposition polaire, les parties élastique \mathbf{F}_A^{e-i} et viscoplastique \mathbf{F}_A^{p-i} peuvent être exprimées comme le produit d'une elongation et d'une rotation (dépendant de l'ordre appliqué) :

$$\begin{aligned} \mathbf{F}_A^{e-i} &= \mathbf{R}_A^{e-i} \mathbf{U}_A^{e-i} = \mathbf{V}_A^{e-i} \mathbf{R}_A^{e-i} \\ \mathbf{F}_A^{p-i} &= \mathbf{R}_A^{p-i} \mathbf{U}_A^{p-i} = \mathbf{V}_A^{p-i} \mathbf{R}_A^{p-i} \end{aligned} \quad (2.2.10)$$

La partie viscoplastique \mathbf{L}_A^{p-i} du gradient de vitesse peut être décomposée en une partie symétrique et une partie antisymétrique :

$$\mathbf{L}_A^{p-i} = \mathbf{F}_A^{e-i} \dot{\mathbf{F}}_A^{p-i} \mathbf{F}_A^{p-i-1} \mathbf{F}_A^{e-i-1} = \mathbf{D}_A^{p-i} + \mathbf{W}_A^{p-i} \quad (2.2.11)$$

où \mathbf{D}_A^{p-i} et \mathbf{W}_A^{p-i} représentent, respectivement, le taux de déformation viscoplastique et le spin viscoplastique.

L'écoulement viscoplastique est supposé d'une part incompressible et d'autre part irrotationnel ce qui se traduit par :

$$\begin{aligned} \det \mathbf{F}_A^{p-i} &= 1 \\ \mathbf{W}_A^{p-i} &= \mathbf{0} \end{aligned} \quad (2.2.12)$$

La partie viscoplastique $\dot{\mathbf{F}}_A^{p-i}$ du gradient de déformation est alors obtenue à partir de l'équation 2.2.11 en intégrant l'équation suivante :

$$\dot{\mathbf{F}}_A^{p-i} = \mathbf{F}_A^{e-i-1} \mathbf{D}_A^{p-i} \mathbf{F}_A^{e-i} \mathbf{F}_A^{p-i} = \mathbf{F}_A^{e-i-1} \mathbf{D}_A^{p-i} \mathbf{F}_A^i \quad (2.2.13)$$

Une fois la quantité $\dot{\mathbf{F}}_A^{p-i}$ obtenue, la partie élastique \mathbf{F}_A^{e-i} du gradient de déformation est alors calculée en utilisant la relation (2.2.9).

Le polymère semi-cristallin est considéré comme un mélange entre phases cristalline et amorphe. La contrainte de Cauchy \mathbf{T}_A de la partie intermoléculaire est déterminée selon une loi de mélange modifiée, écrite sous la forme générale suivante :

$$\mathbf{T}_A = (\chi_{cv})^\beta \mathbf{T}_A^c + (1 - \chi_{cv})^\beta \mathbf{T}_A^a \quad (2.2.14)$$

où χ_{cv} est la fraction volumique de la phase cristalline et β est un paramètre introduit pour prendre en compte les interactions mécaniques inter-phases généralement induites dans des milieux composites. Lorsque $\beta = 1$, on retrouve la loi des mélanges classiques. Les termes \mathbf{T}_A^c et \mathbf{T}_A^a sont, respectivement, les contraintes de Cauchy des parties cristalline et amorphe.

Chapitre 2. Modélisation du comportement en grandes déformations des polymères

Elles s'expriment en fonction du gradient de déformation élastique correspondant aux ressorts linéaires, sous la forme suivante (Anand, 1979) :

$$\mathbf{T}_A^i = \frac{1}{J_A^i} \mathbf{C}_A^{e-i} \ln(\mathbf{V}_A^{e-i}) \quad (2.2.15)$$

où $J_A^i = \det \mathbf{F}_A^{e-i}$ est le Jacobien de la partie élastique du gradient (correspondant à la variation de volume élastique), $\ln(\mathbf{V}_A^{e-i})$ est la déformation de Hencky et \mathbf{C}_A^{e-i} est le tenseur de rigidité élastique de quatrième ordre des phases. Les phases cristalline et amorphe étant supposées isotropes, les composantes du tenseur de rigidité élastique \mathbf{C}_A^{e-i} sont alors simplement données par la formulation standard suivante :

$$\left(\mathbf{C}_A^{e-i} \right)_{ijkl} = \frac{E^i}{2(1+\nu^i)} \left[\left(\delta_{ik} \delta_{jl} + \delta_{il} \delta_{jk} \right) + \frac{2\nu^i}{1-2\nu^i} \delta_{ij} \delta_{kl} \right] \quad (2.2.16)$$

où E^i et ν^i sont, respectivement, le module de Young et le coefficient de Poisson. Le terme δ représente le symbole de Kronecker, c'est-à-dire les composantes du tenseur identité.

Le tenseur du taux de déformation viscoplastique \mathbf{D}_A^{p-i} de chaque phase est décrit par la règle d'écoulement suivante :

$$\mathbf{D}_A^{p-i} = \dot{\gamma}_A^{p-i} \mathbf{N}_A \quad (2.2.17)$$

où \mathbf{N}_A représente la normale à la surface d'écoulement exprimée par :

$$\mathbf{N}_A = \frac{\mathbf{T}'_A{}^{-i}}{\sqrt{2\tau_A^i}} \quad (2.2.18)$$

où $\mathbf{T}'_A{}^{-i}$ et τ_A^i représentent, respectivement, la partie déviatorique du tenseur des contraintes de Cauchy \mathbf{T}_A^i et la contrainte équivalente au sens de von Mises de \mathbf{T}_A^i :

$$\begin{aligned} \mathbf{T}'_A{}^{-i} &= \mathbf{T}_A^i - \frac{1}{3} \text{trace}(\mathbf{T}_A^i) \mathbf{I} \\ \tau_A^i &= \left(\frac{1}{2} \mathbf{T}'_A{}^{-i} \cdot \mathbf{T}'_A{}^{-i} \right)^{1/2} \end{aligned} \quad (2.2.19)$$

La quantité $\dot{\gamma}_A^{p-i}$ représente la vitesse de déformation viscoplastique cumulée de cisaillement qui suit l'expression de type Arrhenius proposée par Argon (1973) et modifiée plus récemment par Boyce et al. (2000) :

$$\dot{\gamma}_A^{p-i} = \dot{\gamma}_{0,A}^i \exp \left[-\frac{\Delta G_A^i}{k\theta} \left(1 - \frac{\tau_A^i}{s^i} \right) \right] \quad (2.2.20)$$

Chapitre 2. Modélisation du comportement en grandes déformations des polymères

où k est la constante de Boltzmann, θ est la température absolue, $\gamma_{0,A}^i$ est le facteur pré-exponentiel, ΔG_A^i est l'énergie d'activation représentant la barrière d'énergie pour les processus de déformation plastique, requise pour initier l'écoulement plastique dans la phase i et s^i est la résistance au cisaillement athermique de la phase i qui s'exprime en fonction de la vitesse de déformation viscoplastique sous la forme suivante :

$$\dot{s}^i = h^i \dot{\gamma}_A^{p-i} \quad (2.2.21)$$

où le module d'écrouissage h^i est donnée, pour chaque phase, par la loi de puissance suivante (Ahzi et al., 2003) :

$$h^i = \frac{s_y^i}{n^i} \left(\frac{\kappa s_y^i}{s^i} \right)^{n^i} \quad (2.2.22)$$

où s_y^i est la résistance initiale au cisaillement et n^i est le coefficient d'écrouissage. Le terme κ apparaissant dans l'équation (2.2.22) est un facteur d'échelle introduit ici pour tenir compte de l'effet de la morphologie des cristallites (dépendant du volume de cristal) sur l'étirement plastique des phases amorphe et cristalline.

2.3.1.2. Résistance B : alignement des chaînes moléculaires

La résistance B est constituée par un ressort non linéaire en série avec un amortisseur visqueux. Le ressort non linéaire correspond à la résistance entropique à l'alignement du réseau moléculaire (Arruda et Boyce, 1993) tandis que l'élément visqueux reproduit le processus de relaxation moléculaire causé par la reptation des chaînes (Bergstrom et Boyce, 1998; Boyce et al., 2000). Bien que se soient des polymères semi-cristallins dont il s'agit, nous supposons que leur durcissement est dominé par l'orientation moléculaire des chaînes plutôt que par l'évolution de la texture cristallographique induite par l'étirement.

Depuis la première contribution de Lee (1969) portant sur l'élasto-plasticité en grandes déformations, la théorie impliquant viscoélasticité en grandes déformations basée sur la décomposition multiplicative du gradient de déformation est maintenant bien établie (Sidoroff, 1974; Lubliner, 1985; Bergstrom et Boyce, 1998, 2000, Reese et Govindjee, 1998). On utilise, comme dans l'équation (2.2.9), la décomposition du gradient de déformation \mathbf{F}_B proposée par Lee (1969) en introduisant une partie orientation du réseau, notée N , et une partie écoulement, notée f :

$$\mathbf{F}_B = \mathbf{F}_B^N \mathbf{F}_B^f \quad (2.2.23)$$

Chapitre 2. Modélisation du comportement en grandes déformations des polymères

En reprenant la décomposition polaire classique telle que déjà introduite dans l'équation (2.2.10), nous pouvons exprimer ces deux quantités sous la forme suivante :

$$\begin{aligned}\mathbf{F}_B^N &= \mathbf{R}_B^N \mathbf{U}_B^N = \mathbf{V}_B^N \mathbf{R}_B^N \\ \mathbf{F}_B^f &= \mathbf{R}_B^f \mathbf{U}_B^f = \mathbf{V}_B^f \mathbf{R}_B^f\end{aligned}\quad (2.2.24)$$

La partie écoulement \mathbf{L}_B^f du gradient de vitesse peut de nouveau s'écrire comme suit :

$$\mathbf{L}_B^f = \mathbf{F}_B^N \dot{\mathbf{F}}_B^f \mathbf{F}_B^{f-1} \mathbf{F}_B^{N-1} = \mathbf{D}_B^f + \mathbf{W}_B^f \quad (2.2.25)$$

où \mathbf{D}_B^f et \mathbf{W}_B^f représentent, respectivement, le taux de déformation viscoplastique et le spin viscoplastique.

Comme précédemment développé pour la partie intermoléculaire, nous supposons que l'écoulement est incompressible et irrotationnel, c'est-à-dire :

$$\begin{aligned}\det \mathbf{F}_B^f &= 1 \\ \mathbf{W}_B^f &= \mathbf{0}\end{aligned}\quad (2.2.26)$$

La composante \mathbf{F}_B^f du gradient de déformation est alors obtenu à partir de l'équation (2.2.25) et est exprimé sous la forme différentielle suivante :

$$\dot{\mathbf{F}}_B^f = \mathbf{F}_B^{N-1} \mathbf{D}_B^f \mathbf{F}_B^N \mathbf{F}_B^f = \mathbf{F}_B^{N-1} \mathbf{D}_B^f \mathbf{F}_B \quad (2.2.27)$$

Une fois la composante \mathbf{F}_B^f du gradient de déformation déterminée, la composante orientation du réseau \mathbf{F}_B^N est alors calculée à partir de la relation (2.2.23).

Pour décrire le comportement en contrainte-déformation du réseau, on utilise le modèle à huit chaînes, développé dans le cadre de l'élasticité des élastomères par Arruda et Boyce (1993).

La contrainte de Cauchy s'exprime dans ce cas sous la forme suivante :

$$\mathbf{T}_B = \frac{1}{J_B} \frac{n_c k \theta}{3} \frac{\sqrt{N}}{\bar{\lambda}_B^N} \mathcal{L}^{-1} \left(\frac{\bar{\lambda}_B^N}{\sqrt{N}} \right) \left[\bar{\mathbf{B}}^e - (\bar{\lambda}_B^N)^2 \mathbf{I} \right] \quad (2.2.28)$$

où $J_B = \det \mathbf{F}_B^N$ est la variation de volume (Jacobien) du réseau, n_c la densité moyenne des chaînes, k est la constante de Boltzmann, θ est la température absolue, N est le nombre d'unités moléculaires rigides entre enchevêtrements (\sqrt{N} correspondant à la limite d'extensibilité des chaînes) et \mathbf{I} est la matrice identité. Le produit $n_c k \theta$ définit le module de durcissement initial C_r qui correspond à la pente de la réponse en contrainte-déformation au début du durcissement. Le terme \mathcal{L}^{-1} est la fonction inverse de Langevin donnée par :

$$\mathcal{L}(x) = \coth(x) - \frac{1}{x} \quad (2.2.29)$$

Chapitre 2. Modélisation du comportement en grandes déformations des polymères

Pour la calculer, on utilise généralement une approximation de Padé (Cohen, 1991) :

$$\mathcal{L}^{-1}(x) = x \frac{3-x^2}{1-x^2} \quad (2.2.30)$$

Le terme $\bar{\lambda}_B^N$ dans l'équation (2.2.28) représente l'étirement moyen des chaînes du réseau et s'exprime de la façon suivante :

$$\bar{\lambda}_B^N = \left[\frac{1}{3} \text{trace}(\bar{\mathbf{B}}^N) \right]^{1/2} \quad (2.2.31)$$

où $\bar{\mathbf{B}}^N$ est le tenseur élastique isochore de Cauchy-Green gauche :

$$\bar{\mathbf{B}}^N = (J_B)^{-2/3} \mathbf{F}_B^N (\mathbf{F}_B^N)^T \quad (2.2.32)$$

Comme précédemment, on écrit le taux de déformation \mathbf{D}_B^f sous la forme d'une loi d'écoulement dont l'expression est :

$$\mathbf{D}_B^f = \dot{\gamma}_B^f \frac{\mathbf{T}'_B}{\sqrt{2\tau_B}} \quad (2.2.33)$$

\mathbf{T}'_B est la partie déviatorique du tenseur des contraintes de Cauchy \mathbf{T}_B et τ_B est la contrainte équivalente de \mathbf{T}_B calculée, comme déjà précisé pour la résistance A , en utilisant le critère de von Mises. Ces deux termes sont donnés par :

$$\begin{aligned} \mathbf{T}'_B &= \mathbf{T}_B - \frac{1}{3} \text{trace}(\mathbf{T}_B) \mathbf{I} \\ \tau_B &= \left(\frac{1}{2} \mathbf{T}'_B \cdot \mathbf{T}'_B \right)^{1/2} \end{aligned} \quad (2.2.34)$$

On pourra noter que \mathbf{T}'_B est déviatorique, puisque $\mathbf{T}_B = \mathbf{T}'_B$. Le terme $\dot{\gamma}_B^f$ représente la vitesse de déformation de l'écoulement exprimée génériquement selon Bergstrom et Boyce (1998) sous la forme suivante :

$$\dot{\gamma}_B^f = C \left(\frac{1}{\lambda_B^f - 1} \right) \tau_B \quad (2.2.35)$$

où λ_B^f représente l'étirement moyen des chaînes du réseau et est donné par

$$\lambda_B^f = \left[\frac{1}{3} \text{trace}(\mathbf{F}_B^f (\mathbf{F}_B^f)^T) \right]^{1/2} \quad (2.2.36)$$

Notez que l'on doit affecter une valeur initiale légèrement supérieur à l'unité (valeur théorique de départ pour le matériau non déformé) pour assurer la stabilité de l'algorithme numérique en raison de la singularité dans l'équation (2.2.35). Le terme C est un paramètre

Chapitre 2. Modélisation du comportement en grandes déformations des polymères

matériau définissant la dépendance de la relaxation à la température (Boyce et al., 2000) exprimée sous la forme d'une loi d'Arrhenius :

$$C = D \exp\left(-\frac{Q}{R\theta}\right) \quad (2.2.37)$$

Dans lequel D et Q sont deux paramètres de relaxation moléculaire (Q ayant la dimension d'une énergie d'activation) et R est la constante universelle des gaz parfaits.

2.3.2. Procédure d'identification des paramètres

Etant donné la multiplicité des paramètres matériaux induits par le modèle, il est nécessaire de développer une méthode d'identification suffisamment robuste. L'objectif poursuivi est d'extraire, en utilisant les données issues d'essais de traction sur les matériaux considérés réalisés sous différentes vitesses de déformation, les réponses mécaniques respectives des phases amorphe et cristalline.

2.3.2.1. Paramètres élastiques

Les propriétés élastiques de la phase cristalline des matériaux PE utilisées dans cette étude sont ceux proposés par Choy et Leung (1985). La rigidité élastique de la phase amorphe est obtenue en utilisant la relation couramment utilisée liant le module de cisaillement G_N^0 et la masse molaire entre enchevêtrements M_e en dessus de la température de transition vitreuse :

$$G_N^0 = \frac{\rho_a R\theta}{M_e} \quad (2.2.38)$$

où ρ_a est la densité de la partie amorphe. M_e est choisi égale à 1,4 kg/mol et ρ_a égale à 855 kg/m³ (Bédoui et al., 2006). En raison de son état caoutchouteux, une valeur de 0,499 a été attribuée au coefficient de Poisson de la partie amorphe ν^a . Le module élastique global des matériaux PE, obtenus à partir de la pente initiale des courbes contrainte-déformation, est tracé en fonction de la fraction volumique de la phase cristalline dans la figure 2.2.11. Sont données également dans cette figure des données expérimentales extraites de la littérature (Bédoui et al., 2006) traitant de la rigidité élastique de matériaux PE de la société Solvay. Le coefficient d'interaction β , introduit ici pour prendre en compte les interactions inter-phases, est identifié par méthode inverse. Le meilleur lissage avec le modèle donne une valeur de 3,8

Chapitre 2. Modélisation du comportement en grandes déformations des polymères

pour β . Notons que l'absence de ce paramètre conduit à une évolution linéaire du module d'élasticité par rapport au taux de cristallinité. Les modules des phases amorphe et cristalline, E^a et E^c , sont respectivement égales à 4,5 et 4500 MPa.

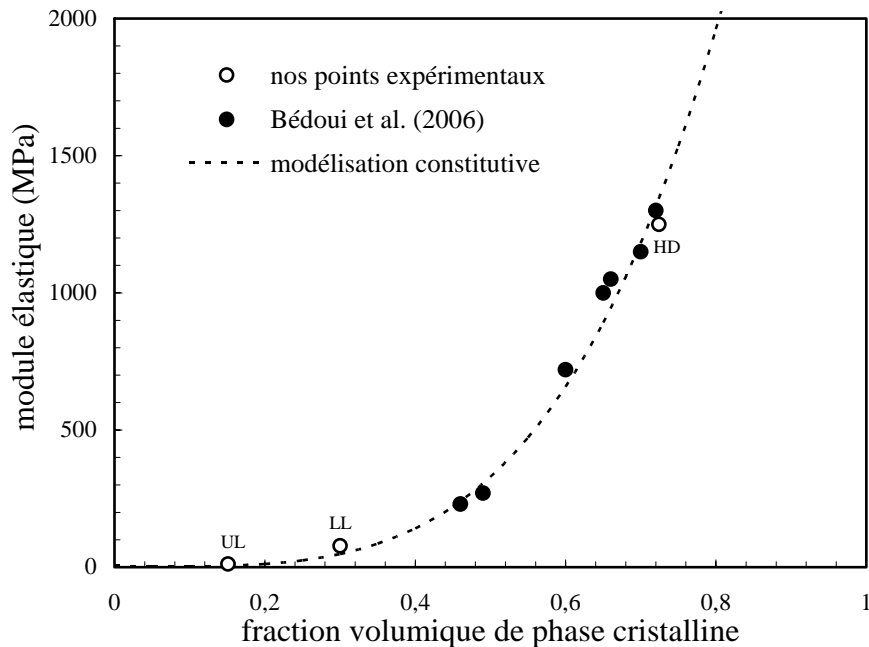


Figure 2.2.11. Module d'élasticité en fonction de la fraction volumique de la phase cristalline.

2.3.2.2. Paramètres plastiques

L'identification des résistances intermoléculaire et d'alignement du réseau macromoléculaire est réalisée séparément. Pour la partie intermoléculaire, le schéma d'identification des paramètres a été réalisée en deux étapes : (i) nous commençons par déterminer les constantes macroscopiques pour les trois matériaux PE puis (ii) en analysant les résultats de l'identification en termes de fraction volumique de phase cristalline, on déduit les propriétés des deux phases constitutives.

Les paramètres « macroscopiques » de la limite d'écoulement, c'est-à-dire ceux impliqués dans la relation d'Arrhenius, ont été identifiés en utilisant les limites élastiques expérimentales. La figure 2.2.12 présente la contrainte de cisaillement en fonction de la vitesse de déformation normalisée pour les trois matériaux PE. Pour le LL et le UL, la limite d'écoulement a été déterminée à partir du point de déviation de la réponse linéaire initiale. Pour le HD, elle a été identifiée dans la région de l'état d'équilibre juste après le genou. Pour déterminer les propriétés globales de la limite d'écoulement, l'équation (2.2.20) a été

Chapitre 2. Modélisation du comportement en grandes déformations des polymères

reformulée, au voisinage de la région du début de l'écoulement plastique, de la manière suivante :

$$\tau_{y,A} = \frac{s_y k \theta}{\Delta G_A} \ln \left(\frac{\dot{\gamma}_A^p}{\dot{\gamma}_{0,A}} \right) + s_y \quad (2.2.39)$$

où $\dot{\gamma}_A^p$ et $\tau_{y,A}$ sont donnés respectivement par $\sqrt{3}\dot{\varepsilon}$ et $\sigma_y/\sqrt{3}$, $\dot{\varepsilon}$ étant la vitesse de déformation appliquée et σ_y la limite d'écoulement mesurée expérimentalement. En fixant le coefficient pré-exponentiel global $\dot{\gamma}_{0,A}$ à une valeur prescrite, les valeurs macroscopiques de l'énergie d'activation ΔG_A et de la résistance initiale au cisaillement s_y ont été déterminées simultanément par une méthode de régression linéaire à partir des données expérimentales. Le tableau 2.2.3 donne les valeurs obtenues. Comme le montre la figure 2.2.13, la résistance initiale au cisaillement s_y évolue linéairement avec la fraction volumique de la phase cristalline. Cette évolution peut être décrite par la relation linéaire suivante :

$$s_y = 5\chi_{cv} + 0,055 \quad (2.2.40)$$

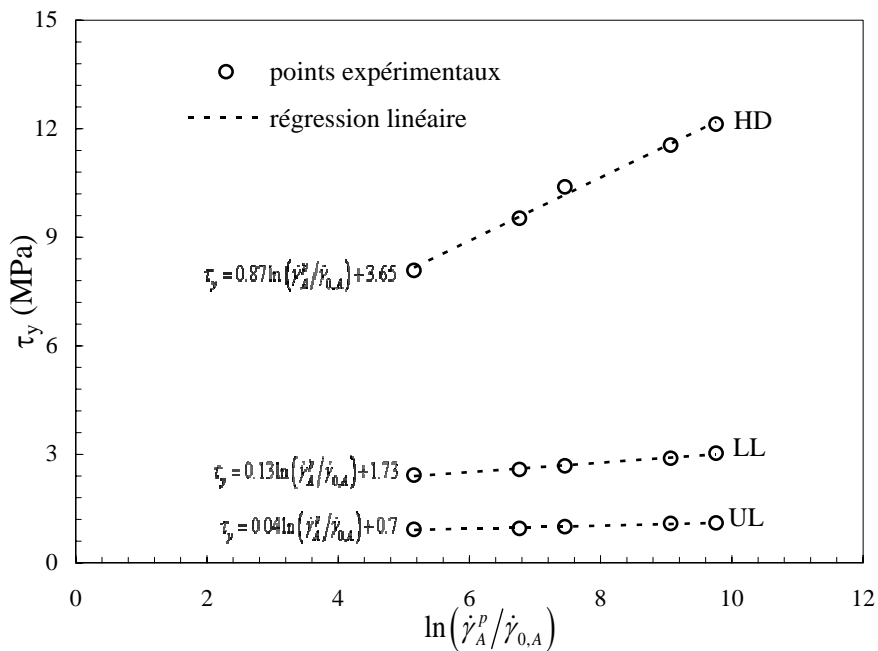


Figure 2.2.12. Limite d'élasticité en fonction de la vitesse de déformation.

L'énergie d'activation, également représentée sur la figure 2.2.13, peut être décrite par la relation non linéaire suivante :

$$\Delta G_A = 4 \times 10^{-21} + 7 \times 10^{-20} \exp(-2,31\chi_{cv}) \quad (2.2.41)$$

Chapitre 2. Modélisation du comportement en grandes déformations des polymères

Il convient de noter qu'une évolution non linéaire pour ΔG_A a été préférée à une évolution linéaire afin d'interdire une valeur négative pour $\chi_{cv} = 1$, une valeur aberrante pour l'énergie d'activation de la phase cristalline.

Le durcissement global du coefficient n a été identifié en utilisant les équations (2.2.20) à (2.2.22) reformulées de la façon suivante :

$$\ln(\tau_A) = \frac{1}{n} \ln(\gamma_A^p) + \ln \left(\left(\frac{k\theta}{\Delta G} \ln \left(\frac{\dot{\gamma}_A^p}{\dot{\gamma}_{0,A}} \right) + 1 \right) s_y \right) \quad (2.2.42)$$

Le terme n est calculé, pour chaque matériau PE, à partir de la pente de la courbe $\ln(\tau_A)$ - $\ln(\gamma_A^p)$. La figure 2.2.14 montre le résultat en fonction de la fraction volumique de la phase cristalline. Il est décrit par :

$$n = 1,4 \exp(4,93 \chi_{cv}) \quad (2.2.43)$$

	k ($m^2 kgs^{-2} K^{-1}$)	θ ($^{\circ}K$)	$\dot{\epsilon}$ (s^{-1})	σ_y (MPa)	$\dot{\gamma}_A^p / \dot{\gamma}_{0,A}$	$\sigma_y / \sqrt{3}$ (MPa)	$\dot{\gamma}_{0,A}$ (s^{-1})	s_y (MPa)	ΔG_A (J)
HD	$1,38 \times 10^{-23}$	293	0,01	21	9,76	12,12	10^{-6}	3,64	$1,68 \times 10^{-20}$
			0,005	20	9,066	11,55			
			0,001	18	7,46	10,39			
			0,0005	16,5	6,77	9,53			
			0,0001	14	5,16	8,08			
LD	$1,38 \times 10^{-23}$	293	0,01	5,25	9,76	3,03	10^{-6}	1,72	$4,11 \times 10^{-20}$
			0,005	5	9,06	2,89			
			0,001	4,64	7,46	2,68			
			0,0005	4,47	6,76	2,58			
			0,0001	4,2	5,15	2,42			
UL	$1,38 \times 10^{-23}$	293	0,01	1,91	9,76	1,10	10^{-6}	0,69	$5,27 \times 10^{-20}$
			0,005	1,88	9,07	1,09			
			0,001	1,73	7,46	0,99			
			0,0005	1,65	6,77	0,95			
			0,0001	1,6	5,15	0,92			

Tableau 2.2.3. Propriétés mécaniques à l'écoulement plastique du PE.

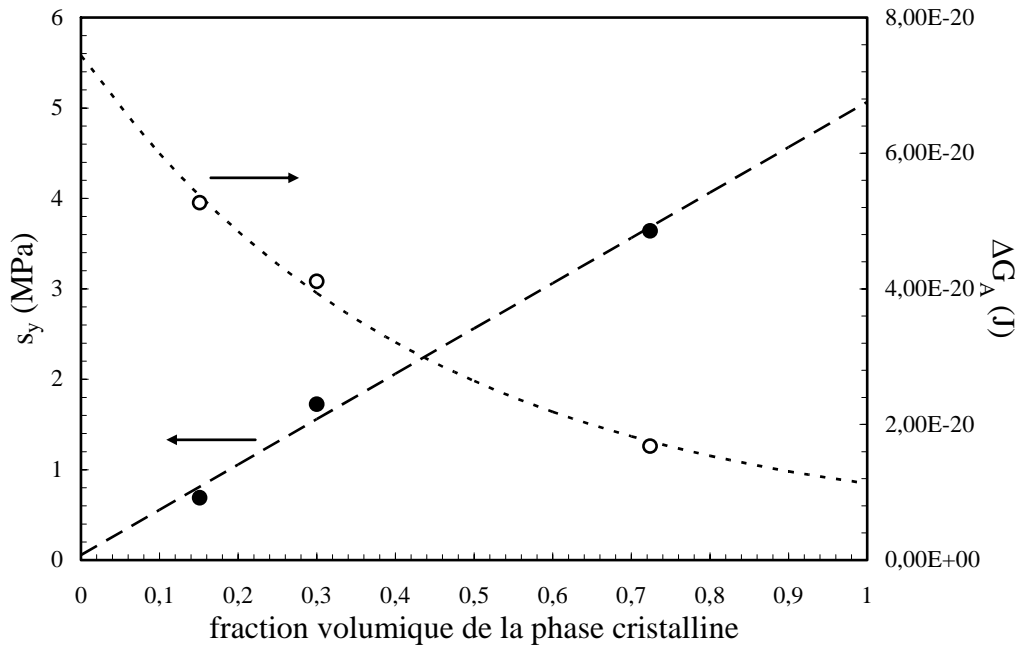


Figure 2.2.13. Résistance au cisaillement initiale et l'énergie d'activation en fonction de la fraction volumique de la phase cristalline.

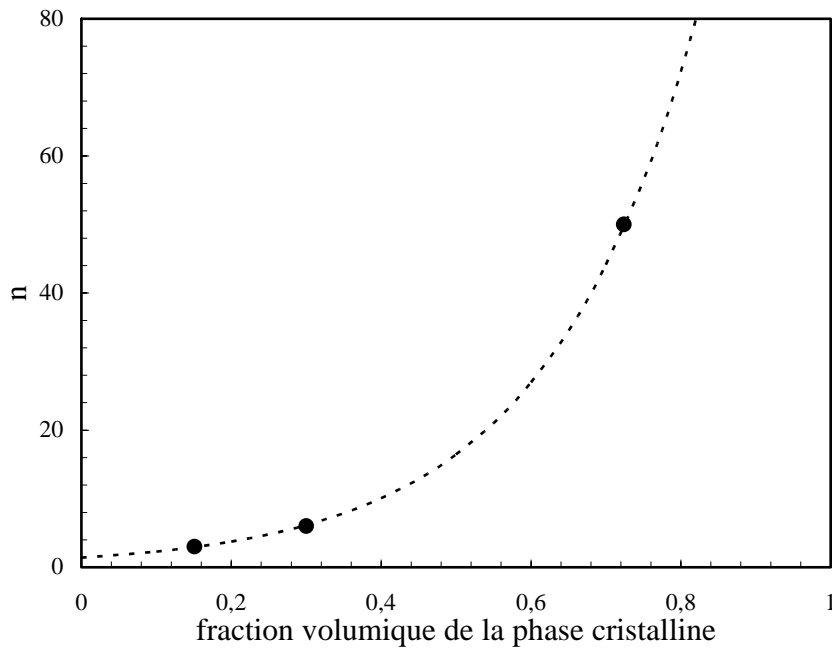


Figure 2.2.14. Coefficient de durcissement en fonction de la fraction volumique de la phase cristalline.

Un organigramme détaillant la procédure d'identification des paramètres matériaux est présenté à la figure 2.2.15.

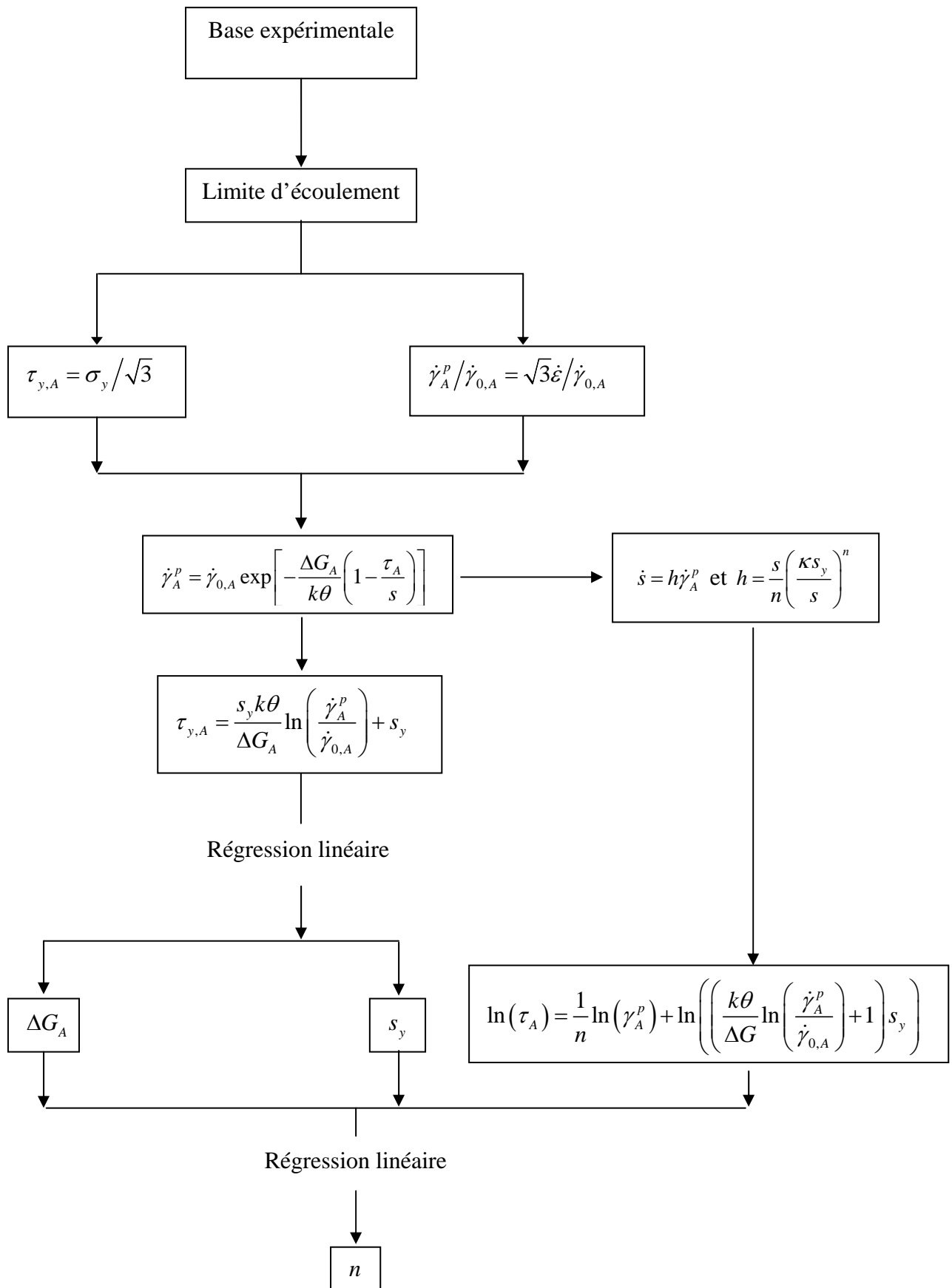


Figure 2.2.15. Procédure de détermination des paramètres de la partie intermoléculaire.

Chapitre 2. Modélisation du comportement en grandes déformations des polymères

Gardant à l'esprit que, dans ce travail, les matériaux PE sont considérés comme des composites à deux phases, les propriétés de chaque constituant peuvent être isolées. Comme nous le ferions dans le cadre d'une approche micromécanique, nous postulons que les propriétés des phases cristalline et amorphe sont les mêmes et ce, quelles que soient les fractions volumiques en présence. En utilisant les équations (2.2.40), (2.2.41) et (2.2.43), il est possible d'extraire les valeurs de s_y , ΔG_A et n pour les phases amorphe et cristalline en prenant respectivement $\chi_{cv} = 0$ et $\chi_{cv} = 1$. Afin de simplifier la procédure d'identification, il convient de préciser que le facteur pré-exponentiel est supposé le même pour les phases amorphe et cristalline : $\dot{\gamma}_{0,A}^a = \dot{\gamma}_{0,A}^c = \dot{\gamma}_{0,A}$. Pour la résistance intermoléculaire, les valeurs des paramètres issues de l'identification sont résumées dans le tableau 2.2.4 pour chaque phase en présence. Une nette différence entre les valeurs des paramètres intermoléculaires des phases cristalline et amorphe est mise en évidence. Même si la signification physique des valeurs obtenues pourrait être remise en question, puisque il n'y a pas eu une détermination directe des paramètres matériaux des différentes phases à partir d'essais bien spécifiques, l'ajustement des paramètres tel qu'il est fait ici assure une certaine cohérence des valeurs trouvées.

Module élastique de la phase amorphe	E^a	4,5 (MPa)
Module élastique de la phase cristalline	E^c	4500 (MPa)
Coefficient d'interaction	β	3,8
Taux de cisaillement de référence	$\dot{\gamma}_{0,A}^a = \dot{\gamma}_{0,A}^c$	10^{-6} (s^{-1})
Energie d'activation de la phase amorphe	ΔG_A^a	$7,4 \times 10^{-20}$ (J)
Energie d'activation de la phase cristalline	ΔG_A^c	$1,1 \times 10^{-20}$ (J)
Résistance initiale au cisaillement de la phase amorphe	s_y^a	0,055 (MPa)
Résistance initiale au cisaillement de la phase cristalline	s_y^c	5 (MPa)
Coefficient de durcissement de la phase amorphe	n^a	1,4
Coefficient de durcissement de la phase cristalline	n^c	193
Coefficient d'interaction	κ_1	94,3
Coefficient d'interaction	κ_2	-12,3

Tableau 2.2.4. Paramètres de la résistance intermoléculaire du PE.

Chapitre 2. Modélisation du comportement en grandes déformations des polymères

Pour compléter l'identification de la partie intermoléculaire, nous supposons que le terme κ , introduit dans l'équation (2.2.22) pour prendre en compte la modification de morphologie avec la fraction volumique de la phase cristalline, évolue de la manière suivante :

$$\kappa = \kappa_1 \chi_{cv} + \kappa_2 \quad (2.2.44)$$

où κ_1 et κ_2 sont des constantes matériaux dont les valeurs sont également données dans le tableau 2.2.4.

La procédure d'identification des paramètres se termine par la partie réseau. Pour déterminer le module de durcissement initial C_r et la limite d'extensibilité des chaînes \sqrt{N} , nous utilisons la partie de la courbe contrainte-déformation correspondant à la phase de durcissement. Ces paramètres sont identifiés sur la réponse à la vitesse de déformation de $0,001 \text{ s}^{-1}$. Les paramètres de relaxation moléculaire D et Q sont ensuite déterminés sur toutes les courbes simultanément. Les valeurs des paramètres du réseau que nous avons obtenues sont résumées dans le tableau 2.2.5.

		HD	LL	UL
Module caoutchoutique	$C_r = n_c k \theta$	0,45 (MPa)	0,45 (MPa)	0,18 (MPa)
Densité d'enchevêtrement	N	26	26	160
Paramètres de relaxation moléculaire	D	$7,8 \times 10^{28} (\text{MPa}^{-1} \cdot \text{s}^{-1})$	$7,8 \times 10^{28} (\text{MPa}^{-1} \cdot \text{s}^{-1})$	$7,8 \times 10^{28} (\text{MPa}^{-1} \cdot \text{s}^{-1})$
	Q/R	$24,5 \times 10^3 (\text{K})$	$24,5 \times 10^3 (\text{K})$	$24,5 \times 10^3 (\text{K})$

Tableau 2.2.5. Paramètres de la résistance du réseau du PE.

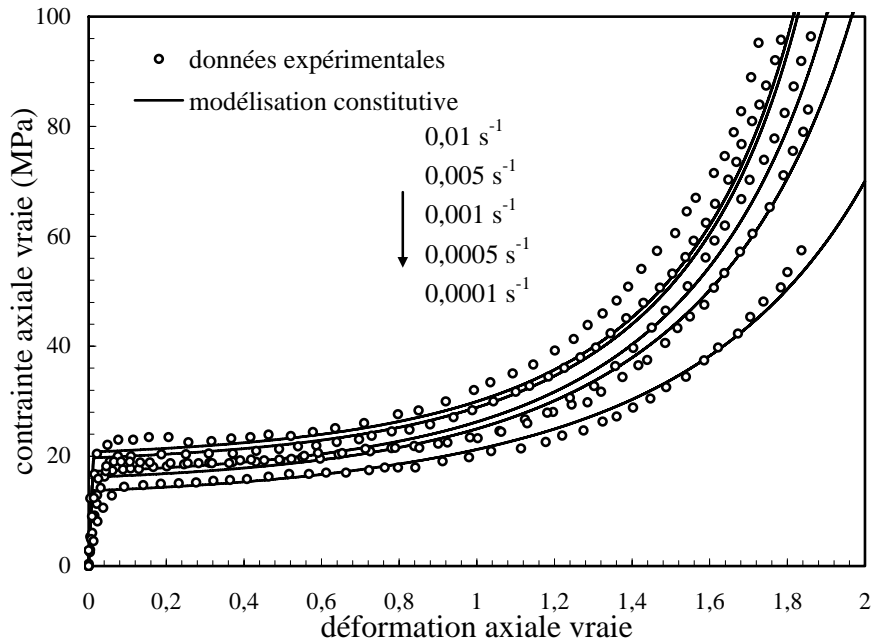
Une fois la procédure d'identification achevée, nous comparons les résultats expérimentaux obtenus aux prédictions du modèle en terme d'évolution contrainte-déformation.

2.3.3. Confrontation du modèle hyperélastique - viscoplastique aux résultats expérimentaux

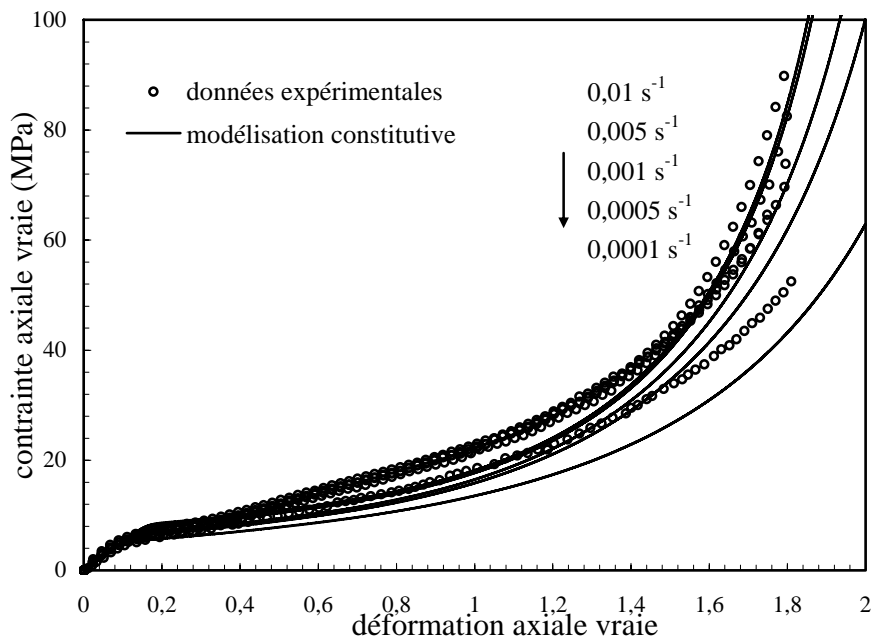
La figure 2.2.16 montre la comparaison du modèle hyperélastique-viscoplastique à nos données expérimentales. On peut observer que le modèle est en général en bon accord avec les mesures expérimentales sur la gamme de taux de cristallinité et de vitesses de déformation étudiée. Néanmoins, on peut souligner que la simulation pour le matériau LL présente une

Chapitre 2. Modélisation du comportement en grandes déformations des polymères

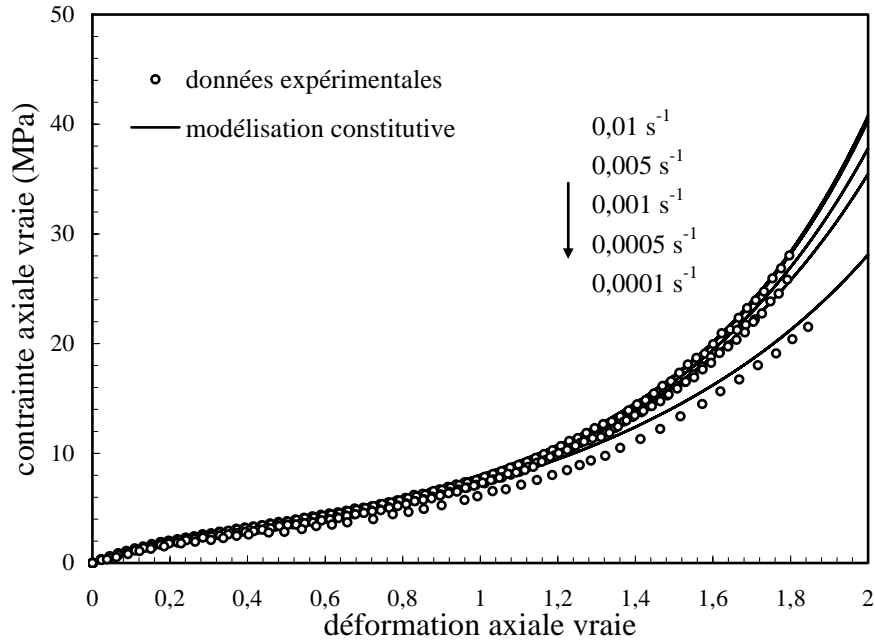
forme, avant le durcissement de la contrainte, différente de celle obtenue expérimentalement : convexe dans le cas du modèle et plutôt linéaire pour la courbe expérimentale. Cela peut être dû à une évolution de la microstructure différente dans le cas du LL que dans les autres PE. En outre, les interactions entre les phases cristalline et amorphe ne sont peut-être pas bien prises en compte dans le modèle.



(a)



(b)



(c)

Figure 2.2.16. Comparaison de la réponse contrainte-déformation entre les prédictions du modèle et les données expérimentales des matériaux PE : (a) HD, (b) LL, (c) UL.

Il est également important de faire remarquer que dans le cas du HD et du LL, et pour les vitesses les plus importantes, le modèle sous-estime l'effet vitesse. Une procédure d'identification intégrant une gamme de vitesses plus importantes mais également l'effet de la température permettrait probablement d'optimiser la valeur des paramètres matériaux. Mais il est également important de souligner qu'en utilisant les mêmes paramètres matériaux pour la résistance intermoléculaire de chacun des phases, le passage d'un comportement de type thermoplastique à celui d'un élastomère, lorsque la fraction volumique de la phase cristalline diminue, est parfaitement reproduit par le modèle hyperélastique-viscoplastique.

Les essais charge-décharge sont en général discriminatoires et permettent de tester la robustesse de la modélisation choisie. Les prédictions obtenues avec le modèle précédemment développé, sont comparées à des données expérimentales issues d'essais mécaniques au cours desquels des trajets de chargement-déchargement ont été réalisés. Pendant les essais, les échantillons de PE ont été étirés jusqu'à une déformation vraie de 1,6 à une vitesse de déformation de $0,001 \text{ s}^{-1}$ et déchargés jusqu'à contrainte nulle à la même vitesse de déformation. La figure 2.2.17 montre un effet important de la fraction volumique de la phase cristalline sur la réponse expérimentale en déchargement. Dans le cas du matériau HD, la courbe de décharge est parfaitement linéaire. En revanche, les deux autres matériaux

Chapitre 2. Modélisation du comportement en grandes déformations des polymères

présentent un comportement fortement non linéaire en décharge, cette non linéarité s'accroissant lorsque le taux de cristallinité diminue. De plus, plus ce dernier diminue, plus la déformation rémanente à contrainte nulle est faible. Des déformations rémanentes de 1,54, 1,33 et 0,87 sont ainsi, respectivement, mesurées pour le HD, le LL et le UL.

La figure 2.2.17 montre une bonne concordance entre les données expérimentales du HD et notre modèle. Pour les deux autres matériaux, bien que le modèle prédise une diminution de la déformation résiduelle avec la diminution du taux de cristallinité, il n'est pas en capacité de reproduire la forte non linéarité observée en décharge. En effet, le modèle prédit une décharge quasi-linéaire quel que soit le matériau étudié. Pour améliorer la robustesse du modèle et en particulier renforcer ses capacités à prédire la non linéarité du déchargement, nous allons apporter des modifications qui devraient nous permettre d'atteindre cet objectif.

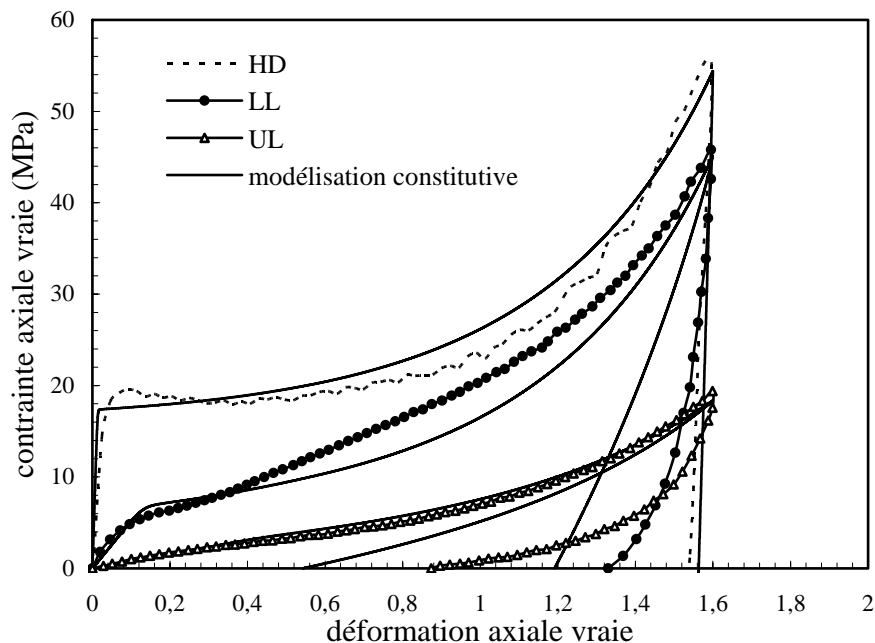


Figure 2.2.17. Comparaison entre le comportement simulé et les données expérimentales des trois matériaux PE pour un chemin de chargement en charge-décharge effectué à une vitesse de déformation égale à $0,001 \text{ s}^{-1}$.

2.3.4. Amélioration des capacités du modèle hyperélastique - viscoplastique

Bien que le modèle de comportement décrive correctement des données expérimentales en chargement monotone pour des très grandes déformations, il n'est pas en capacité de reproduire le comportement cyclique en phase de déchargement. Il ne permet donc pas de

Chapitre 2. Modélisation du comportement en grandes déformations des polymères

prendre en compte de manière suffisamment fine les mécanismes dissipatifs mis en évidence expérimentalement par l'hystérèse pour les matériaux à plus faible cristallinité. Cela peut s'expliquer par la microstructure intrinsèque et son évolution en cours de la déformation. La cristallinité élevée du matériau HD rend la raideur de la phase cristalline prépondérante dans la réponse macroscopique globale, sans doute par effet de percolation qui fournit un effet de matrice rigide. Cela est vrai aussi bien pour la morphologie sphérolitique initiale avant déformation que pour la morphologie fibrillaire en grandes déformations. Cela conduit à la réponse parfaitement linéaire observée pendant le déchargement du HD. Aux faibles fractions volumiques de la phase cristalline, c'est le comportement de la phase amorphe, caoutchoutique, qui prédomine. Par conséquent, la déformation, y compris pour la phase de durcissement aux grandes déformations, est dominée par l'orientation moléculaire de la phase amorphe, et son recouvrement élevé pendant le déchargement est lié à la contrainte de retour entropique.

Dans la représentation mathématique du modèle de comportement, la contrainte du réseau rend compte de l'effet du durcissement induit par l'orientation dans le sens du chargement. En rappelant que le paramètre D caractérise les phénomènes de relaxation moléculaire, il nous a semblé pertinent d'apporter une modification sur ce paramètre afin d'enrichir la capacité du modèle. Nous supposons que ce paramètre au moment du chargement est différent de celui au moment du déchargement. Cette modification s'appuie sur la constatation expérimentale relative à la raideur initiale en décharge qui est plus élevée que celle prédite par le modèle. Les autres paramètres du modèle restent inchangés. L'évolution du terme D est régie par l'équation phénoménologique suivante :

$$D = \begin{cases} D_0 & \text{chargement} \\ \varphi D_0 & \text{déchargement} \end{cases} \quad (2.2.45)$$

Le terme φ est un paramètre qui peut être lié à l'évolution de la microstructure et son impact sur la viscosité. Après identification sur la courbe de déchargement, la forme optimale pour le paramètre φ est donnée par :

$$\varphi = 3743 \exp(-11,2 \chi_{cv}) \quad (2.2.46)$$

La comparaison entre les prédictions du modèle et les observations expérimentales, présentée dans la figure 2.2.18, confirme que la modification apportée permet d'obtenir un accord satisfaisant, quelque soit la fraction volumique considérée. En particulier, cette modification confère au modèle un pouvoir prédictif très satisfaisant, aussi bien d'un point de vue qualitatif que quantitatif, de la phase de déchargement. En effet, pendant la décharge, la raideur initiale,

Chapitre 2. Modélisation du comportement en grandes déformations des polymères

la non linéarité de la décharge et les déformations rémanentes observées expérimentalement sont bien décrites par le modèle proposé.

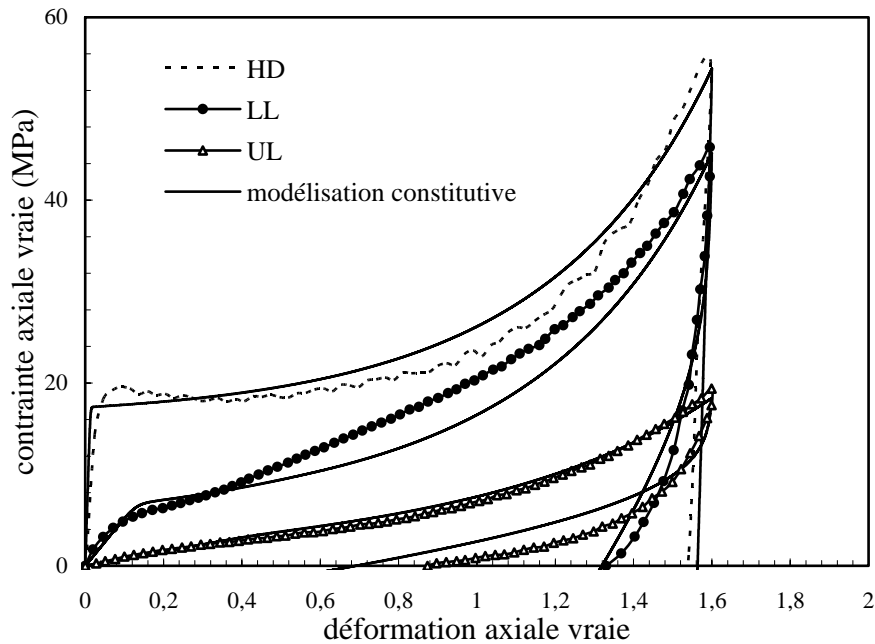


Figure 2.2.18. Résultats de la simulation du modèle amélioré comparés aux données expérimentales.

2.4. Remarques et conclusions partielles

Dans cette partie, les effets du taux de cristallinité sur le comportement mécanique du PE ont été étudiés d'un point de vue expérimental et ont permis de proposer un modèle mécanique enrichi. La structure et les propriétés physiques des matériaux PE étudiés, ont été analysées en utilisant des moyens expérimentaux en adéquation avec les propriétés recherchées à savoir la DSC, la DMTA, la diffraction des rayons X et l'AFM. Des essais mécaniques de traction monotone et de charge-décharge ont permis de mettre en évidence le caractère non linéaire du comportement, les effets de la vitesse de déformation mais également du taux de cristallinité. Le caractère composite des matériaux étudiés et la variation de la fraction volumique de la phase cristalline confèrent aux matériaux étudiés un comportement quasi-caoutchoutique pour les faibles fractions alors que pour les fractions plus élevées, le comportement est analogue à ceux observées pour les thermoplastiques.

Nous avons mis en œuvre, en transformations finies, une version modifiée du modèle à base physique proposé par Ahzi et al. (2003). La nature composite du PE permet de baser le modèle sur une hypothèse d'un découplage en parallèle, d'une partie réseau et d'une partie

Chapitre 2. Modélisation du comportement en grandes déformations des polymères

intermoléculaire. Bien que le nombre de paramètres dans le modèle soit important, leur identification a été réalisée en utilisant un schéma relativement robuste permettant d'isoler les propriétés de chaque phase. Les simulations effectuées et la confrontation aux résultats expérimentaux en chargement monotone semblent plutôt satisfaisante, eu égard à la complexité des mécanismes de déformations, aux difficultés inhérentes au traitement des grandes déformations et à l'amplitude des vitesses de déformations étudiées. Enfin, une modification supplémentaire que nous avons apportée permet d'enrichir le caractère prédictif du modèle sur des trajets de charge-décharge.

Toutefois, si le modèle est capable de prédire le comportement charge-décharge en grandes déformations, il n'est pas apte à reproduire le comportement cyclique dans des déformations plus modérées car la composante viscoélastique est absente de la formulation du modèle présentée dans cette partie du chapitre. Nous proposons dans le prochain chapitre de traiter cette question sur le HD.

3. Vers une prédiction du comportement cyclique des polymères thermoplastiques

Le principal objectif de cette partie est de développer un modèle mathématique ayant la capacité de prédire le comportement cyclique en grandes déformations des thermoplastiques. Dans la partie précédente, nous avons développé un modèle hyperélastique-viscoplastique, basé sur l'approche d'Ahzi et al. (2003), pour représenter le comportement en grandes déformations du PE. Nous avons montré que le modèle est capable de reproduire les résultats expérimentaux obtenus en charge-décharge et ce, pour un large spectre de cristallinité. Cependant, la non prise en compte dans la formulation du modèle d'une composante viscoélastique rend le modèle incapable de reproduire des trajets de chargement en charge-décharge dans des gammes de déformation petites voire modérées.

Nous nous proposons d'enrichir à nouveau le modèle hyperélastique-viscoplastique présenté dans la partie précédente afin d'améliorer les prédictions, non seulement en grandes déformations mais également en petites déformations. Pour ce faire, nous intégrerons directement les effets de la viscosité dans la composante élastique du modèle initial afin de la rendre viscoélastique.

La description des mécanismes de déformation comporte deux éléments en parallèle : une résistance du réseau visco-hyperélastique agissant en parallèle avec une résistance intermoléculaires viscoélastique-viscoplastique où rhéologies des phases amorphe et cristalline sont supposées agir en parallèle. Les courbes de contrainte-déformation prédites par le nouveau modèle sont comparées à une série de données expérimentales réalisées sur un HD.

3.1. Formulation du modèle

L'étude expérimentale de la partie précédente a révélé que le PE manifeste des réponses viscoélastiques et viscoplastiques, leurs contributions relatives dépendant à la fois de la déformation et de la vitesse de déformation. Dans ce qui suit, un modèle de comportement est présenté afin de prendre en compte les déformations viscoélastiques et viscoplastiques. Le modèle est essentiellement basé sur le formalisme de Boyce et al. (2000) et Ahzi et al. (2003)

Chapitre 2. Modélisation du comportement en grandes déformations des polymères

pour décrire le processus de déformation. Le modèle est représenté schématiquement à la figure 2.3.1. Le schéma identique à celui de la figure 2.2.10, à la seule chose près que nous proposons de modifier la résistance intermoléculaire pour incorporer directement les effets de viscosité non linéaire sur la partie élastique.

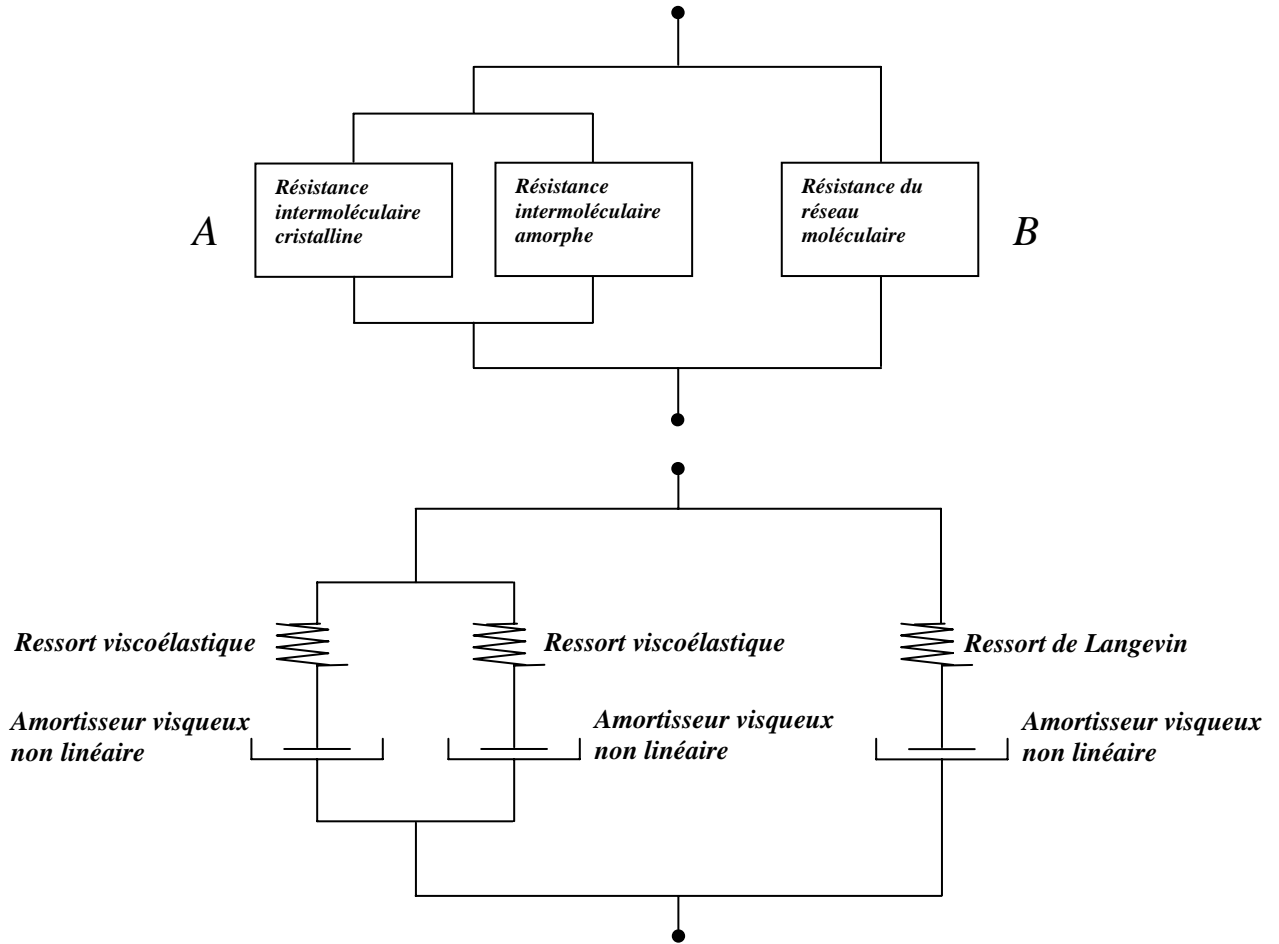


Figure 2.3.1. Représentation rhéologique du modèle.

Comme la résistance intermoléculaire est en parallèle avec la résistance du réseau, le gradient de déformation de chaque branche, \mathbf{F}_A et \mathbf{F}_B , est égal au gradient de déformation totale \mathbf{F} . En outre, la contrainte totale de Cauchy \mathbf{T} dans le polymère est donnée par la somme tensorielle de la contrainte de Cauchy de la résistance intermoléculaire \mathbf{T}_A et la résistance du réseau \mathbf{T}_B .

3.1.1. Résistance B

Dans le modèle proposé la définition du durcissement entropique reste inchangée par rapport à celle donnée dans la partie précédente (paragraphe 2.3.1.2). La résistance B est constituée

Chapitre 2. Modélisation du comportement en grandes déformations des polymères

par un ressort non linéaire en série avec un amortisseur non linéaire. Le ressort non linéaire correspond à la résistance entropique due à l'alignement du réseau moléculaire (Arruda et Boyce, 1993) tandis que l'amortisseur non linéaire reproduit le processus de relaxation moléculaire induit par la reptation des chaînes (Bergstrom et Boyce, 1998).

3.1.2. Résistance A

La résistance A est constituée par un ressort élastique en série avec un amortisseur visqueux. La réponse élastique initiale suivie par la transition non linéaire correspondant à la phase viscoélastique est représentée par le ressort, tandis que le comportement inélastique est donné par l'élément visqueux. Nous rappelons que, comme la figure 2.3.1 le montre, la résistance intermoléculaire est composée d'une résistance de la phase amorphe agissant en parallèle avec une résistance de la phase cristalline. C'est la raison pour laquelle le gradient de déformation intermoléculaire est le même pour les deux phases (équation (2.2.8)). La contrainte totale de Cauchy \mathbf{T}_A de la partie intermoléculaire est donnée à partir de la loi de mélange (2.2.14) avec $\beta = 1$. Les résistances intermoléculaires cristalline et amorphe sont modélisées en utilisant la théorie de la viscoplasticité basée sur la « sur-contrainte » (ou « viscoplastic based on overstress » VBO en anglais) présentée récemment par Colak et al. (2005) pour représenter le comportement en petites déformations des polymères. Dans le modèle VBO, les vitesses de déformation élastique et inélastique sont non nulles à tous les stades du chargement puisque le modèle ne présente aucune surface de charge. La théorie introduit deux variables tensorielles, la contrainte d'équilibre et la contrainte cinématique, et deux variables scalaires (Colak et al., 2005).

Les contraintes de Cauchy \mathbf{T}_A^i de chaque phase de la résistance A sont liées au gradient de déformation élastique par la loi régissant le comportement d'un ressort élastique linéaire (Anand, 1979) :

$$\mathbf{T}_A^i = \frac{1}{J_A^i} \mathbf{C}_A^{e-i} \ln(\mathbf{V}_A^{e-i}) \quad (2.3.1)$$

où \mathbf{C}_A^{e-i} est le tenseur de rigidité élastique de quatrième ordre des phases cristallines et amorphes données par la formulation suivante :

$$\left(\mathbf{C}_A^{e-i} \right)_{ijkl} = \frac{\varphi_A^i E_A^i}{2(1+\nu_A^i)} \left[\left(\delta_{ik} \delta_{jl} + \delta_{il} \delta_{jk} \right) + \frac{2\nu_A^i}{1-2\nu_A^i} \delta_{ij} \delta_{kl} \right] \quad (2.3.2)$$

Chapitre 2. Modélisation du comportement en grandes déformations des polymères

où φ_A^i est une fonction introduite pour modéliser l'évolution de la rigidité élastique pendant le chargement et le déchargement (Colak, 2005) :

$$\varphi_A^i = 1 - \beta_1^i \left(\frac{\kappa^i}{r^i} \right)^{\alpha_1^i} \quad (2.3.3)$$

La fonction φ_A^i évolue en fonction des contraintes d'équilibre, cinématique et isotrope. Dans le régime élastique $\varphi_A^i = 1$ et il est proche de 0 lorsque l'écoulement inélastique est pleinement établie.

On supposera que le coefficient de Poisson ν_A^i est le même pour les phases cristalline et amorphe. Le module de Young E_A^i quant à lui est exprimé en suivant une simple loi de mélange :

$$E_A^a = \frac{E_A}{(\chi_c (\kappa_{c1} - 1) + 1)} \quad (2.3.4)$$

$$E_A^c = \kappa_{c1} E_A^a$$

où E_A est le module de Young macroscopique du matériau et κ_{c1} est un coefficient de proportionnalité entre les modules élastique des phases cristalline et amorphe.

Dans l'expression (2.3.3), α_1^i et β_1^i sont des paramètres matériaux, r^i est la contrainte isotrope prise comme une constante et κ^i est la valeur équivalente de $\mathbf{G}^i - \mathbf{K}^i$ donnée par :

$$\kappa^i = \left(\frac{1}{2} (\mathbf{G}'^{-i} - \mathbf{K}'^{-i}) \cdot (\mathbf{G}'^{-i} - \mathbf{K}'^{-i}) \right)^{1/2} \quad (2.3.5)$$

où \mathbf{G}^i et \mathbf{K}^i sont, respectivement, les contraintes d'équilibre et cinématique.

Le tenseur du taux de déformation inélastique \mathbf{D}_A^{p-i} de chaque phase est décrit par la règle d'écoulement suivante :

$$\mathbf{D}_A^{p-i} = \dot{\gamma}_A^{p-i} \frac{\mathbf{T}_A'^{-i} - \mathbf{G}'^{-i}}{\sqrt{2} \tau_A^i} \quad (2.3.6)$$

La vitesse de déformation viscoplastique cumulée de cisaillement $\dot{\gamma}_A^{p-i}$ est donnée par (Colak, 2005) :

$$\dot{\gamma}_A^{p-i} = \sqrt{\frac{3}{2}} \left(\sqrt{3} \frac{\tau_A^i}{D^i} \right)^m \quad (2.3.7)$$

où m^i est un paramètre matériau, D^i est la contrainte de trainage prise comme une constante et τ_A^i est la valeur équivalente de $\mathbf{T}_A^i - \mathbf{G}^i$:

Chapitre 2. Modélisation du comportement en grandes déformations des polymères

$$\tau_A^i = \left(\frac{1}{2} (\mathbf{T}'_{A^{-i}} - \mathbf{G}'^{-i}) \cdot (\mathbf{T}'_{A^{-i}} - \mathbf{G}'^{-i}) \right)^{1/2} \quad (2.3.8)$$

L'évolution de la contrainte d'équilibre \mathbf{G}^i de chaque phase est exprimée sous sa forme déviatorique par :

$$\dot{\mathbf{G}}'^{-i} = \Psi^i \frac{\dot{\mathbf{T}}'_{A^{-i}}}{E_A^i} + \Psi^i \left(\sqrt{3} \frac{\tau_A^i}{D^i} \right)^{m^i} \left(\frac{\mathbf{T}'_{A^{-i}} - \mathbf{G}'^{-i}}{\sqrt{3} \tau_A^i} - \frac{\mathbf{G}'^{-i} - \mathbf{K}'^{-i}}{r^i} \right) + \left(1 - \frac{\Psi^i}{E_A^i} \right) \dot{\mathbf{K}}'^{-i} \quad (2.3.9)$$

où Ψ^i représente une fonction de forme pour appréhender la transition de la région élastique linéaire à l'écoulement inélastique :

$$\Psi^i = \Psi_1^i + \left(\frac{c_2^i - \Psi_1^i}{\exp(c_3^i \dot{\gamma}_A^{p-i})} \right) \quad (2.3.10)$$

avec Ψ_1^i une fonction donnée par :

$$\Psi_1^i = c_1^i \left(1 + c_4^i \left(\frac{g^i}{r^i + k^i + c_5^i (\tau_A^i)^2} \right) \right) \quad (2.3.11)$$

où c_1^i , c_2^i , c_3^i , c_4^i et c_5^i sont des paramètres matériaux, g^i et k^i sont les contraintes équivalentes respectivement d'équilibre et cinématique données par :

$$g^i = \left(\frac{1}{2} \mathbf{G}'^{-i} \cdot \mathbf{G}'^{-i} \right)^{1/2} \quad (2.3.12)$$

$$k^i = \left(\frac{1}{2} \mathbf{K}'^{-i} \cdot \mathbf{K}'^{-i} \right)^{1/2}$$

L'évolution de la contrainte cinématique est donnée par la relation suivante :

$$\dot{\mathbf{K}}'^{-i} = \frac{1}{\sqrt{2}} \frac{(\mathbf{T}'_{A^{-i}} \cdot \mathbf{T}'_{A^{-i}})^{1/2}}{\sqrt{3} \tau_A^i + g^i} \bar{E}_t^i \mathbf{D}_A^{p-i} \quad (2.3.13)$$

où \bar{E}_t^i est écrit de la façon suivante :

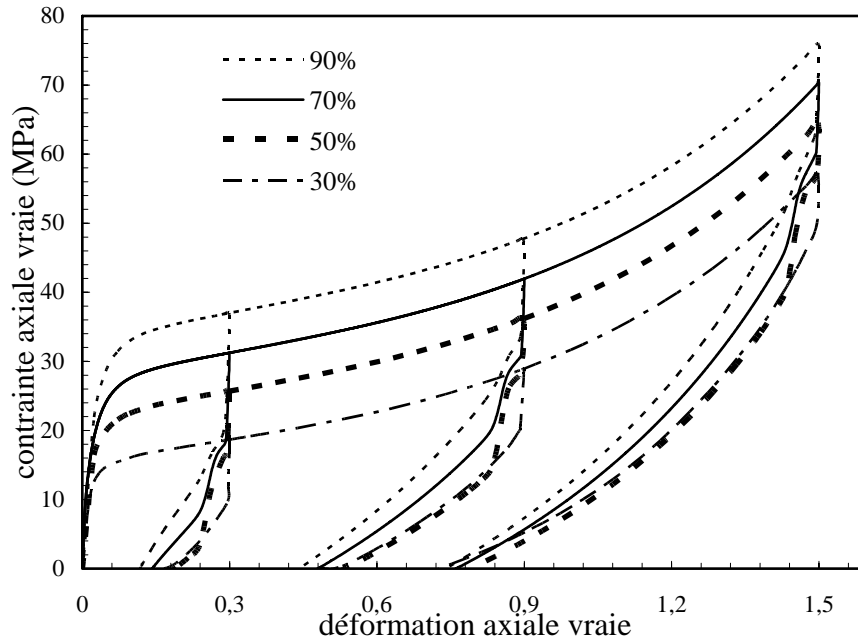
$$\bar{E}_t^i = E_A^i \frac{E_t^i}{E_A^i - E_t^i} \quad (2.3.14)$$

Le terme E_t^i représente le module tangent.

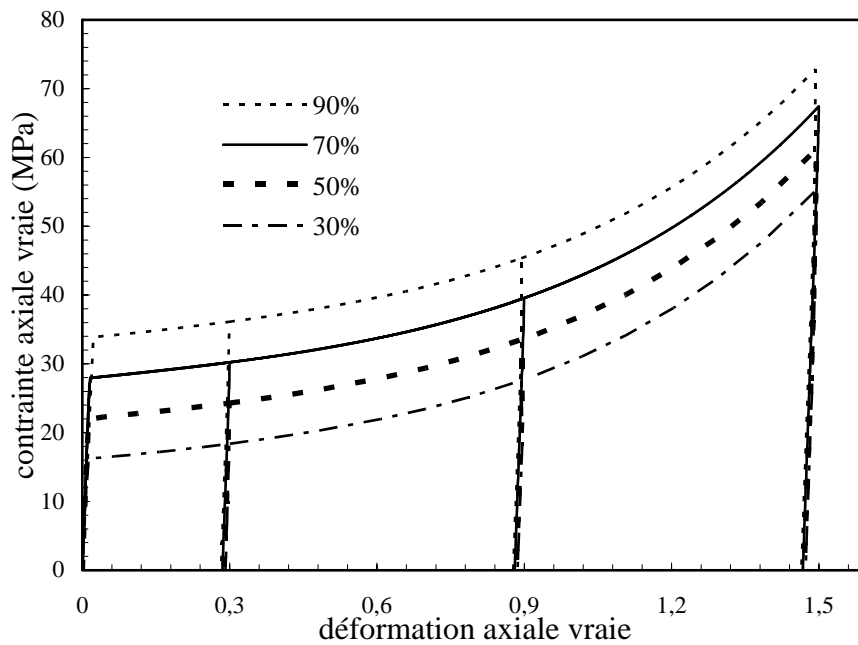
Dans la suite de cette partie, on se propose de comparer le modèle formulé ci-dessus avec le modèle original d'Ahzi et al. (2003) à travers une étude de sensibilité. Les paramètres utilisés pour cette étude numérique seront décrits en détail dans la suite de cette partie.

3.2. Etude de sensibilité

Afin de tester le nouveau modèle, des calculs numériques sous des conditions de charge-décharge ont été réalisés.



(a)



(b)

Figure 2.3.2. Effet du degré de cristallinité sur le comportement en charge-décharge :
(a) modèle proposé, (b) modèle d'Ahzi et al. (2003).

Chapitre 2. Modélisation du comportement en grandes déformations des polymères

Il convient de noter que l'effet de la cristallinité sur la rigidité élastique globale n'est pas pris en compte dans les simulations. Le comportement uniaxial en contrainte-déformation pour le modèle développé est représenté à la figure 2.3.2a pour différents taux de cristallinité. Les résultats de la simulation montrent que l'augmentation du degré de cristallinité conduit à augmenter la limite d'élasticité. Un effet sur le comportement plastique peut être également observé. Le durcissement est pratiquement insensible à une variation du volume de la phase cristalline. De la même manière, sans doute en raison de la relaxation des contraintes aux temps courts, un faible effet sur la tangente initiale au déchargement est remarqué. Toutefois, lorsque la relaxation des contraintes ne prédomine pas, la raideur locale au cours du déchargement évolue, présentant un comportement fortement non linéaire. Dans la figure 2.3.2b, on observe que la cristallinité a des effets similaires dans le cas du modèle d'Ahzi et al. (2003) concernant le comportement au chargement. Cependant, une nette différence est observée sur la réponse en décharge, non linéaire pour le modèle développé et complètement linéaire pour le modèle d'Ahzi et al. (2003). Il convient de souligner que les deux modèles utilisent les mêmes paramètres pour la résistance B .

Dans la suite de cette partie, on se propose à présent de réaliser une comparaison du modèle proposé avec des données expérimentales. On commencera par présenter le matériau de l'étude ainsi que les essais expérimentaux réalisés.

3.3. Description des essais expérimentaux

Des essais mécaniques ont été réalisés pour étudier les principales caractéristiques de la réponse non linéaire d'un HD typique. Nous avons été contraint de changer de HD pour des raisons de disponibilités de matière.

3.3.1. Matériau et géométrie des éprouvettes

Les caractéristiques du matériau étudié dans cette partie sont données dans le tableau 2.3.1.

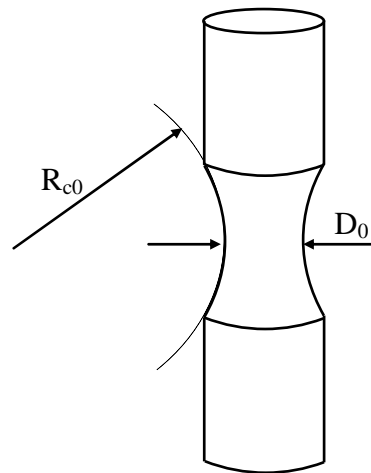
ρ (g/cm ³)	M_w (g/mol)	χ_c (%)	T_m (°C)
0,947	310 000	66	129

Tableau 2.3.1. Propriétés physiques du HD.

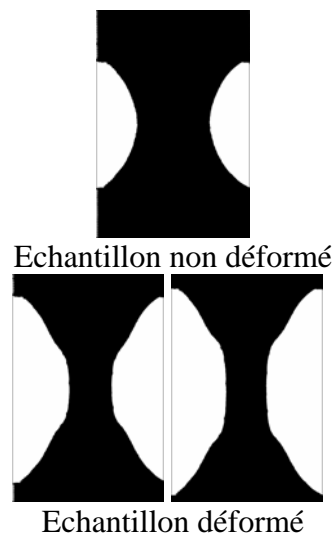
Chapitre 2. Modélisation du comportement en grandes déformations des polymères

Comme pour les PE de la partie précédente, la cristallinité du matériau a été déterminée par DSC. Une fraction volumique de la phase cristalline de 66% a été trouvée.

Des échantillons de traction en forme de sablier ont été usinés à partir d'un tube de diamètre extérieur de 250 mm et d'épaisseur de 18 mm. Les échantillons ont été extraits parallèlement à la direction d'extrusion du tube. Leurs dimensions initiales sont données dans la figure 2.3.3a. Ils ont un diamètre minimum $D_0 = 10$ mm et un rayon de courbure initiale $R_{c0} = 10$ mm. La forme de ces échantillons permet de localiser l'initiation de la striction dans le plan médian de l'échantillon, soit à la plus petite section de l'échantillon.



(a)



(b)

Figure 2.3.3. (a) Représentation schématique de l'échantillon en forme de sablier. (b) Système à pilotage vidéo utilisé pour enregistrer la valeur actuelle de la plus petite section transversale de l'échantillon.

3.3.2. Méthodes expérimentales

Les essais mécaniques ont été effectués sur une machine d'essai électromécanique (Instron modèle 5800). La déformation locale a été mesurée en utilisant le système présenté à la partie précédente et consistant en une caméra CCD reliée à un ordinateur (figure 2.3.3b). La caméra CCD enregistre la valeur actuelle de la plus petite section de l'échantillon où la striction est amorcée. On rappelle que le système a la capacité de maintenir la vitesse de déformation locale vraie constante durant les essais. Il convient de noter que toutes les relations sont développées en supposant l'incompressibilité du matériau, ce qui revient à écrire : $\ln V/V_0 = 0$.

Les essais de traction ont été réalisés à température ambiante et sous différentes vitesses de déformation vraie ($5,10^{-4}$ à 10^{-2} s⁻¹). Les essais incluent des trajets de chargement et de déchargement à différents niveaux de déformation, et de la relaxation. La relaxation constituera un test supplémentaire permettant de donner une indication du comportement visqueux du matériau. Pendant l'essai de relaxation, l'échantillon est d'abord déformé jusqu'à une déformation locale prédéterminée sous une vitesse de déformation vraie constante. La déformation locale est ensuite maintenue constante pendant un certain temps au cours duquel l'évolution de la contrainte est enregistrée.

3.3.3. Résultats expérimentaux

Les résultats des expériences menées sur le HD sont présentés et discutés dans ce paragraphe. La figure 2.3.4 présente la réponse contrainte-déformation du matériau en traction uniaxiale pour différentes vitesses de déformation locale vraie. Le matériau manifeste un comportement fortement non linéaire caractérisé par deux stades bien marqués. Le premier correspond à la réponse viscoélastique homogène, la pente de la courbe diminuant progressivement jusqu'à atteindre pratiquement zéro à la limite d'écoulement. Dans un deuxième temps, les courbes affichent un écrouissage progressif associé à la propagation de la striction initiée dans la plus petite section de l'échantillon. La dépendance du comportement à la vitesse de déformation peut être clairement observée. Jusqu'à 150% de déformation les courbes se chevauchent, puis divergent au-delà de cette limite. Ceci est amplifié lorsque l'on compare les deux grandes vitesses de déformation, en particulier dans la phase de durcissement de la contrainte.

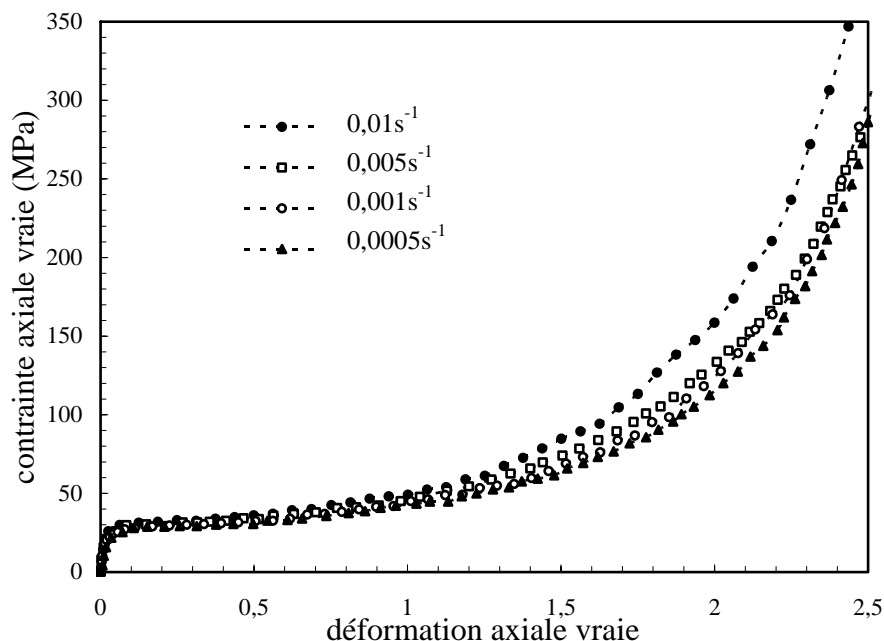


Figure 2.3.4. Courbes contrainte-déformation du HD effectuées à différentes vitesses de déformation varie.

Des échantillons de HD ont été déchargés à différents niveaux de déformation puis rechargés. Un exemple de résultat d'un tel essai est donné à la figure 2.3.5 pour une vitesse de déformation vraie de $0,001 \text{ s}^{-1}$. La réponse au déchargement est d'abord linéaire et devient fortement non linéaire pour tous les niveaux de déformation conduisant à la formation d'une hystérésis lors du déchargement et du rechargement. A une déformation de 2,5 la rigidité semble plus grande que la rigidité initiale. Une diminution considérable de la viscoélasticité avec la déformation plastique est mise en évidence. En effet, il semble que le stade viscoélastique devient moins non linéaire lorsque la précharge est augmentée.

Le module de Young E et le coefficient de Poisson ν ont été déterminés en utilisant la première partie des données contrainte-déformation obtenue en utilisant des éprouvettes plates et la technique par marques développée par G'sell et al. (2002). Les valeurs suivantes ont été trouvées : $E = 1900 \text{ MPa}$ et $\nu = 0,46$. Il convient de noter que cette valeur du module de Young est en accord avec celle déterminée à partir des mesures par suivi du diamètre des échantillons en forme de sablier. Un léger effet de la vitesse de déformation sur cette valeur a été observé. Pendant le déchargement, on peut observer que la rigidité élastique dépend de manière significative du niveau de déformation. Le module de Young a été déterminé en utilisant les courbes de décharge et son évolution est représentée à la figure 2.3.5. La diminution du module de Young est probablement associée à l'endommagement qui a lieu

Chapitre 2. Modélisation du comportement en grandes déformations des polymères

lorsque la déformation augmente. En effet, il peut correspondre à la fragmentation progressive des cristallites et à de la micro-cavitation. Par contre, l'augmentation du module de Young est probablement liée au comportement plastique fortement anisotrope qui se développe au cours du durcissement significatif des contraintes.

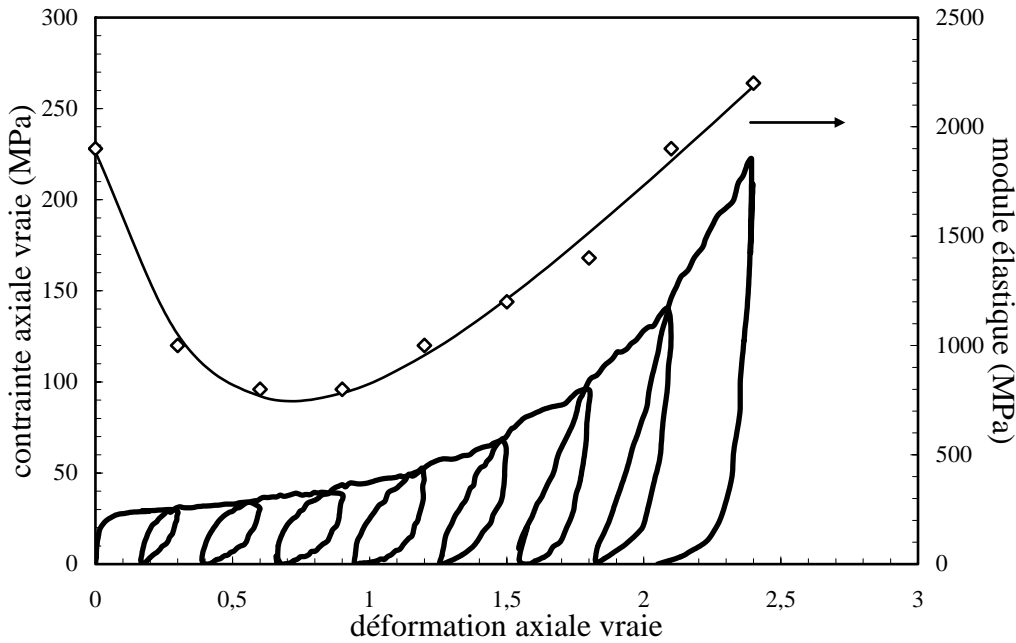


Figure 2.3.5. Courbe contrainte-déformation du HD déchargé puis rechargé à différents niveaux de déformation et variation du module d'élasticité avec la déformation.

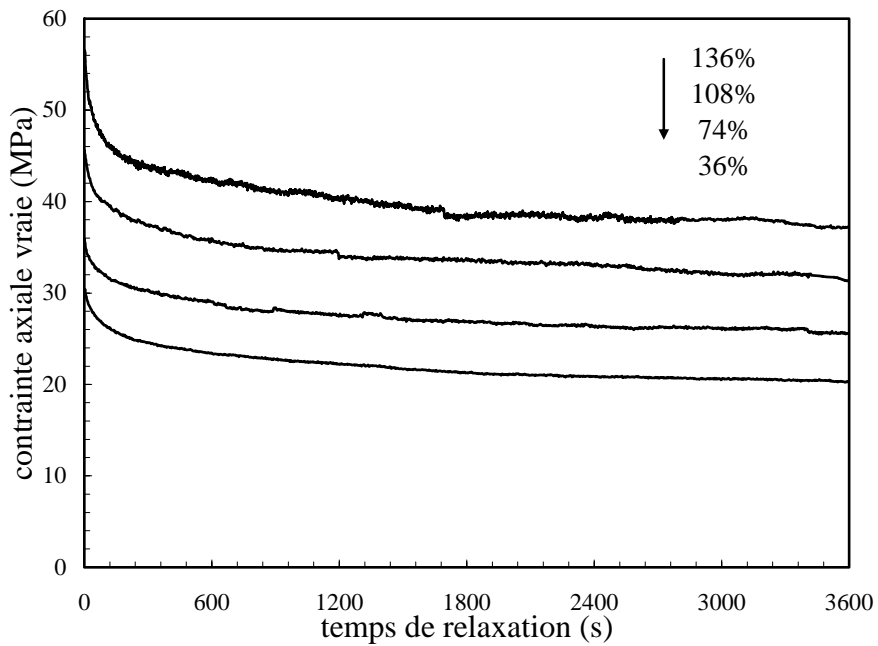


Figure 2.3.6. Résultats expérimentaux des essais de relaxation à différents niveaux de déformation.

Chapitre 2. Modélisation du comportement en grandes déformations des polymères

La figure 2.3.6 présente les données des essais de relaxation, à savoir l'évolution de la contrainte en fonction du temps après avoir atteint différents niveaux de déformation : 36, 74, 108 et 136%. La réponse non linéaire du matériau peut être de nouveau soulignée. La diminution de la contrainte est importante au début du temps de relaxation, mais après une courte période la contrainte atteint une limite asymptotique.

3.3.4. Comparaison du modèle aux données expérimentales

Le modèle initial d'Ahzi et al. (2003) est également utilisé pour démontrer l'amélioration des capacités du nouveau modèle présenté dans cette partie. Le modèle et l'explication détaillée concernant la détermination des paramètres du modèle d'Ahzi et al. (2003) sont donnés en annexe B. Les paramètres impliqués dans ce modèle sont donnés dans le tableau 2.3.2.

Résistance intermoléculaire	Degré de cristallinité	χ_c	0,66
	Module de Young macroscopique	E_A	1900 (MPa)
	Coefficient de proportionnalité	κ_{c1}	5
	Taux de cisaillement de référence	$\dot{\gamma}_{0,A}^a = \dot{\gamma}_{0,A}^c$	10^{-6} (s ⁻¹)
	Energie d'activation	$\Delta G_A^a = \Delta G_A^c$	$2,10^{-20}$ (J)
	Résistance initiale de cisaillement	s_y	6,3 (MPa)
	Coefficient d'écroutissage	n	23,7
	Coefficient de proportionnalité	κ_{c2}	2,9
Résistance du réseau	Module caoutchoutique	$C_r = nk\theta$	0,7 (MPa)
	Densité d'enchevêtrement	N	100
	Paramètres de relaxation moléculaire	D	$7,3 \cdot 10^{28}$ (MPa.s) ⁻¹
		Q/R	$24,5 \cdot 10^3$ (K)

Tableau 2.3.2. Paramètres du modèle d'Ahzi et al. (2003) pour le HD.

Les paramètres du modèle d'Ahzi et al. (2003) et ceux du modèle proposé ont été calibrés sur les courbes contrainte-déformation monotones. Pour les deux modèles, le comportement élastique de la phase cristalline est supposé isotrope et le module d'élasticité du cristal du matériau HD a été déterminé à partir des travaux de Choy et Leung (1985). Le module d'élasticité de la phase amorphe est alors déduit en utilisant le système d'équations (2.3.4). En outre, pour les deux modèles, le module caoutchoutique C_r , la limite d'extensibilité des chaînes \sqrt{N} et les paramètres de relaxation moléculaire D et Q ont été déterminés par

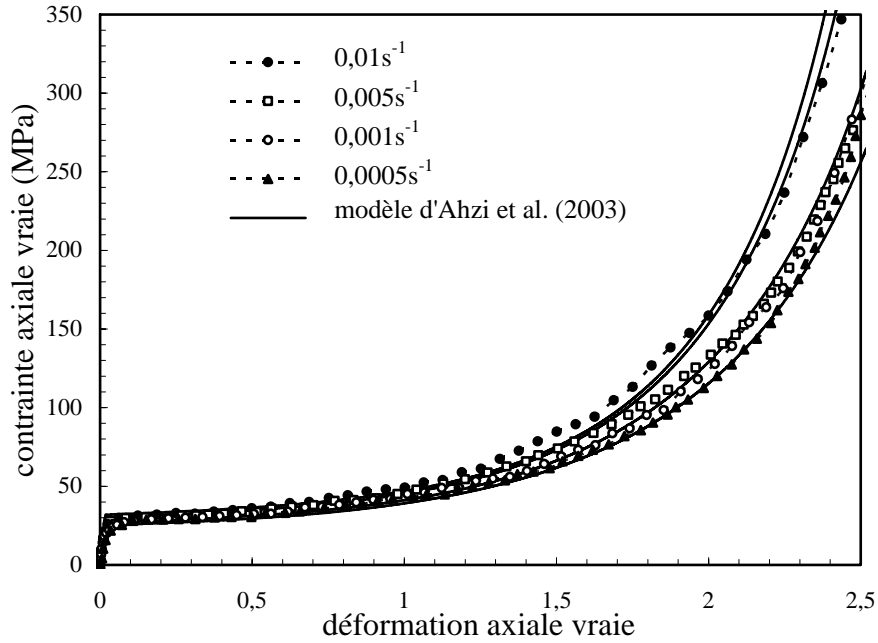
Chapitre 2. Modélisation du comportement en grandes déformations des polymères

ajustement du modèle sur la partie durcissement des courbes contrainte-déformation monotones. Comme la partie intermoléculaire du modèle proposé contient un nombre de paramètres assez important, toute ambiguïté dans le résultat de l'identification doit être évitée.

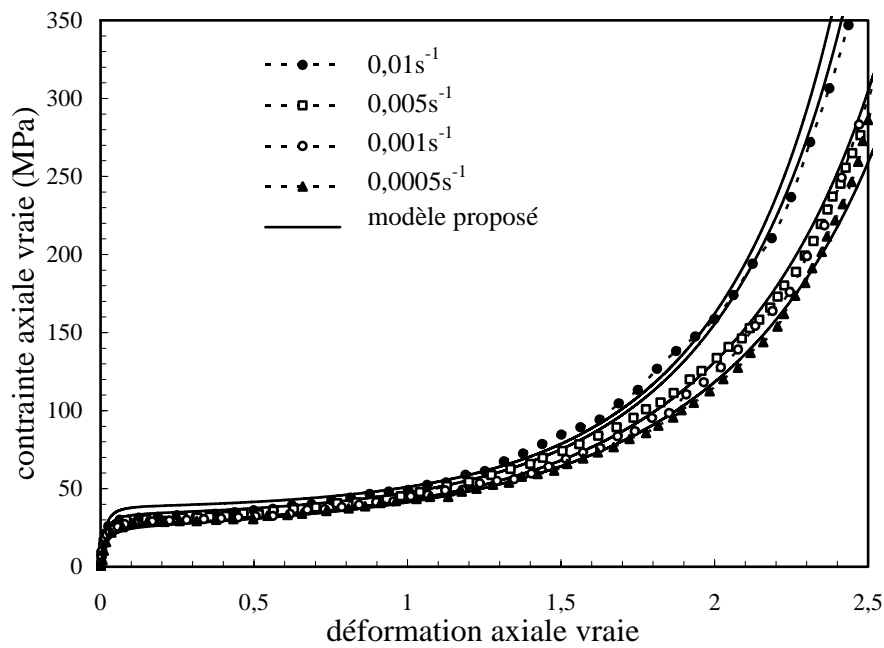
Résistance intermoléculaire	Degré de cristallinité	χ_c	0,66	
	Module de Young macroscopique	E_A	1900 (MPa)	
	Coefficient de proportionnalité	κ_{c1}	5	
	Module tangent	$E_t^a = E_t^c$	1 (MPa)	
	Contrainte isotrope cristalline	r^c	30,2 (MPa)	
	Contrainte isotrope amorphe	r^a	5,2 (MPa)	
	Contrainte de traînage cristalline	D^c	200 (MPa.s)	
	Contrainte de traînage amorphe	D^a	40 (MPa.s)	
	Coefficient de viscosité cristalline	m^c	2,3	
	Coefficient de viscosité amorphe	m^a	2,6	
	Coefficients de forme	$\alpha_1^a = \alpha_1^c$	5	
		$\beta_1^a = \beta_1^c$	0,45	
		$c_1^a = c_1^c$	40 (MPa)	
		$c_2^a = c_2^c$	800 (MPa)	
$c_3^a = c_3^c$		25 (s)		
$c_4^a = c_4^c$		5		
Résistance du réseau		Module caoutchoutique	$C_r = nk\theta$	0,7 (MPa)
		Densité d'enchevêtrement	N	100
	Paramètres de relaxation moléculaire	D	$7,3 \cdot 10^{28} \text{ (MPa.s)}^{-1}$	
		Q/R	$24,5 \cdot 10^3 \text{ (K)}$	

Tableau 2.3.3. Paramètres du modèle proposé pour le HD.

L'ensemble des paramètres matériaux impliqués dans chaque résistance, cristalline et amorphe, de la partie intermoléculaire a été identifié par ajustement sur les lois de comportement des phases cristalline et amorphe simulées à partir du modèle d'Ahzi et al. (2003).



(a)



(b)

Figure 2.3.7. Comparaison des simulations avec les données expérimentales en terme de réponse contrainte-déformation en utilisant : (a) le modèle d'Ahzi et al. (2003) et (b) le modèle proposé.

Cette procédure a été préférée à celle utilisée dans la partie précédente, car un seul degré de cristallinité était disponible. Les paramètres intervenant dans les fonctions ϕ_A^i et Ψ^i ont été

Chapitre 2. Modélisation du comportement en grandes déformations des polymères

calibrés pour appréhender avec le modèle la région de la courbe contrainte-déformation correspondant à la transition élastique-inélastique. En raison de l'absence de données sur les propriétés des phases cristalline et amorphe, certaines hypothèses ont dues être posées dans la procédure d'identification. Les coefficients de forme sont supposés être les mêmes pour les phases cristalline et amorphe, tandis que la contrainte isotrope est prise différente pour chacune des phases. D'autre part, étant donné que chaque phase a sa propre sensibilité à la viscosité, les paramètres du matériau, m^i et D^i , qui participent à la fonction d'écoulement (2.3.7) ont également été pris différents pour chaque phase. Ils ont été identifiés en utilisant les courbes contrainte-déformation effectuées à des vitesses de déformation différentes. La valeur des paramètres matériaux est résumée dans le tableau 2.3.3.

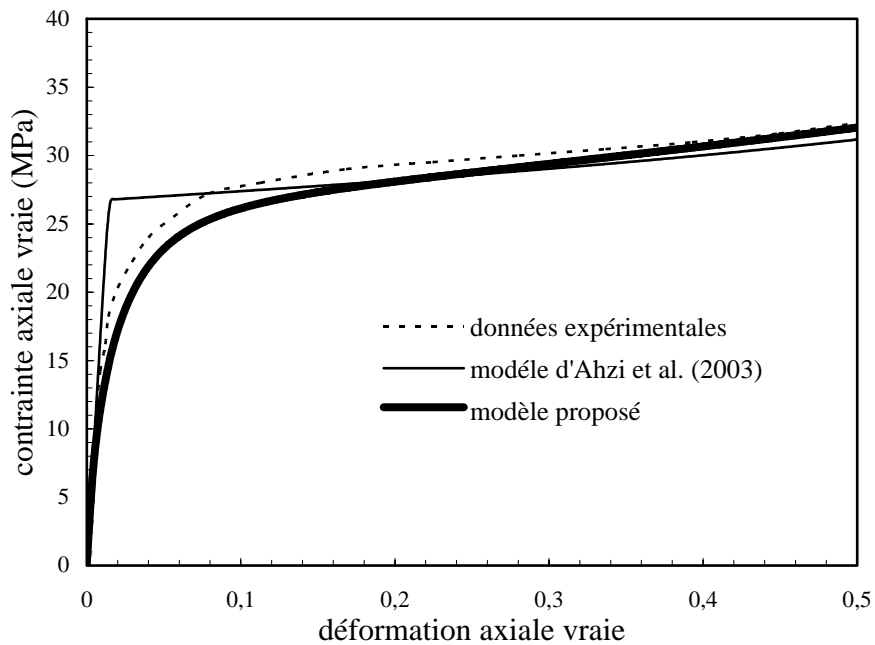
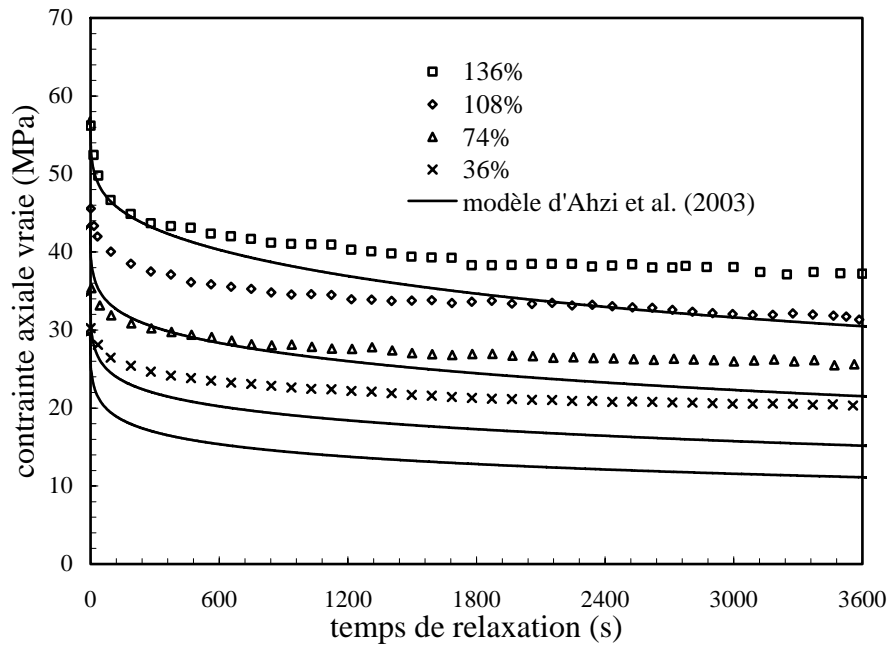


Figure 2.3.8. Comparaison du modèle d'Ahzi et al. (2003) et le modèle proposé dans la région de la limite élastique de la courbe contrainte-déformation à une vitesse de déformation de $0,001 \text{ s}^{-1}$.

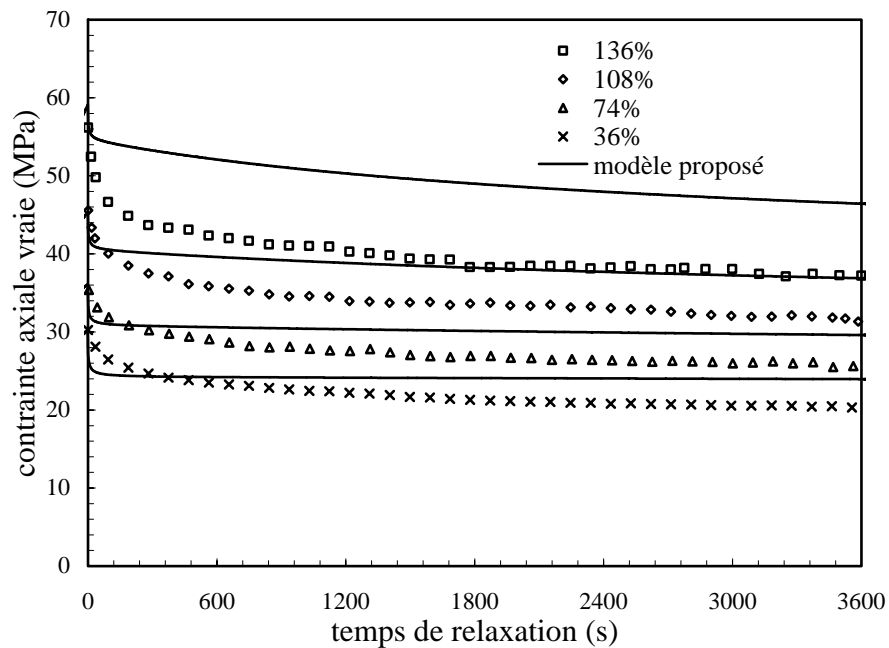
Les résultats du chargement monotone sont présentés sur la figure 2.3.7. Les symboles représentent les données expérimentales tandis que les courbes continues montrent les résultats des simulations en utilisant le modèle d'Ahzi et al. (2003) (figure 2.3.7a) et le modèle proposé (figure 2.3.7b). Pour les deux modèles, un bon accord apparaît entre les courbes simulées et les courbes expérimentales. En particulier, l'effet non linéaire de la vitesse est bien modélisé. Toutefois, comme le montre la figure 2.3.8, le modèle d'Ahzi et al. (2003) n'est pas en mesure de reproduire la transition non linéaire à l'écoulement, prévoyant

Chapitre 2. Modélisation du comportement en grandes déformations des polymères

plutôt un passage abrupt à l'écoulement. En revanche, le modèle proposé est en mesure de reproduire avec plus de précision cet aspect de la réponse du matériau.



(a)



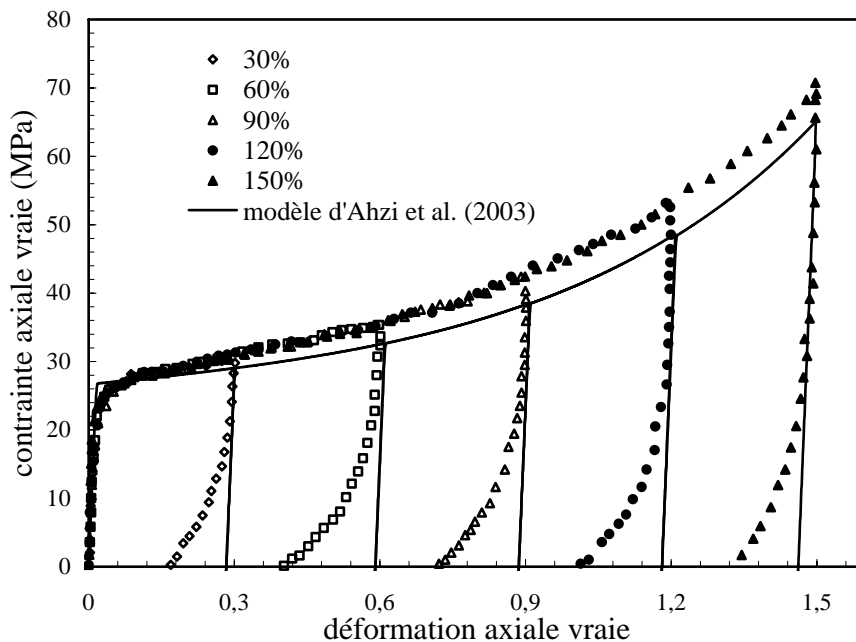
(b)

Figure 2.3.9. Prédictions de la contrainte de relaxation en comparaison avec les données expérimentales : (a) modèle d'Ahzi et al. (2003), (b) modèle proposé.

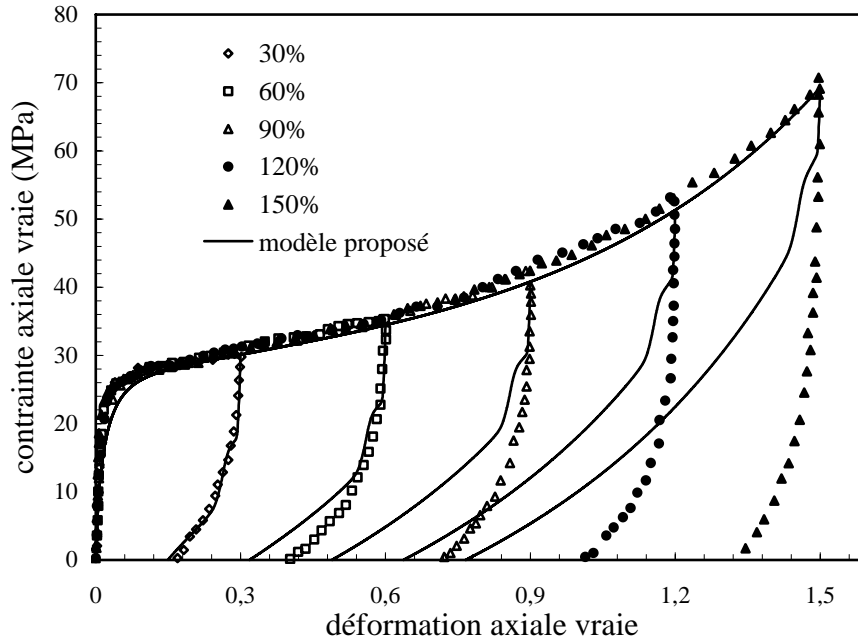
Chapitre 2. Modélisation du comportement en grandes déformations des polymères

Afin de vérifier la capacité prédictive du modèle proposé, la modélisation de la contrainte de relaxation a été effectuée, en utilisant les paramètres du matériau préalablement identifiés dans le chargement monotone. Les résultats prédits sont comparés aux données expérimentales dans la figure 2.3.9. La chute de contrainte est sous-estimée par les simulations du modèle proposé. En revanche, le modèle d'Ahzi et al. (2003) sur-estime le taux de relaxation des contraintes; la limite asymptotique observée expérimentalement n'est pas reproduite.

Un autre test discriminatoire pour la validation d'un modèle est sa capacité à prédire la réponse en déchargement. Les prédictions du modèle pour des essais à vitesse de déformation constante vraie de type chargement/déchargement sont présentées sur la figure 2.3.10 en les comparant aux données expérimentales. Dans cet essai, la déformation a été ramenée à une valeur prescrite sous une vitesse de déformation vraie constante de $0,001 \text{ s}^{-1}$ et ensuite ramenée progressivement jusqu'à une contrainte nulle avec la même vitesse de déformation absolue. Les valeurs des déformations imposées correspondantes aux déchargements successifs sont : 30, 60, 90, 120 et 150%. Notez qu'un nouvel échantillon a été utilisé pour obtenir chacune des courbes. Comme le montre très bien la figure 2.3.10a, le modèle d'Ahzi et al. (2003) n'est pas en mesure de prédire la réponse du matériau en déchargement. En fait, la forme des courbes de déchargement prédites par le modèle d'Ahzi et al. (2003) ressemble à celle observée dans les matériaux métalliques, à savoir une réponse parfaitement linéaire.



(a)



(b)

Figure 2.3.10. Prédictions du comportement charge-décharge en comparaison avec les données expérimentales : (a) modèle d’Ahzi et al. (2003), (b) modèle proposé.

Il est satisfaisant de constater que le modèle proposé prédit la non linéarité de la courbe au premier déchargement (figure 2.3.10b). Toutefois, il est incapable de prédire les autres; la déformation plastique prédite à contrainte nulle est clairement sous-estimée par rapport aux valeurs expérimentales. La déformation viscoélastique semble être surestimée par le modèle et, par conséquent, la déformation plastique est sous-estimée.

Pour résumer, le modèle proposé peut prédire le comportement du matériau HD pour les chargements monotones et les déchargements pour les faibles déformations, mais il est incapable de décrire la réponse de déchargement à des très grandes déformations, ici au-delà de 60%. Pour capturer le comportement non linéaire en décharge du HD en grandes déformations, des améliorations de la modélisation sont à présent proposées.

Les essais de déchargement ont révélé que la rigidité élastique est dépendante de la déformation appliquée. Il est observé une diminution du module de Young jusqu’à un certain niveau de déformation suivie d’une augmentation jusqu’à la rupture de l’échantillon. Cela peut être attribué à l’apparition de deux phénomènes physiques jouant un rôle inverse :

- un endommagement microstructural lié à la fragmentation lamellaire et à la micro-cavitation, conduisant à diminuer la rigidité.

Chapitre 2. Modélisation du comportement en grandes déformations des polymères

- une densification attribuée au durcissement de la contrainte résultant de l'orientation moléculaire, conduisant à augmenter la rigidité.

Il convient de mentionner que les équations constitutives utilisées dans ce travail sont déviatoriques et les effets du changement de volume ne sont pas introduits. Pour capturer la variation de volume d'un polymère vitreux renforcé par des nodules d'élastomère, Zairi et al. (2005b, 2008) ont proposé de combiner la théorie de Bodner (Bodner et Partom, 1975) avec des termes impliquant la composante hydrostatique et l'évolution du vide.

Afin de rendre compte de l'évolution du module de Young macroscopique avec la déformation, l'expression empirique suivante est proposée :

$$E_A = E_{A,0} (1 - D_{end} - D_{res}) \quad (2.3.15)$$

où $E_{A,0}$ est le module de Young initial. Les modules de Young E_A^a et E_A^c de chaque phase sont déterminés conformément au système d'équations (2.3.4). L'équation (2.3.15) présente deux contributions. La première, D_{end} , conduit à la diminution de la rigidité élastique (fragmentation lamellaire ou effets de micro-cavitation), tandis que la deuxième, D_{res} , conduit à l'augmentation de la rigidité élastique (effets d'orientation moléculaire).

L'équation d'évolution de D_{end} est donnée empiriquement par :

$$D_{end} = \alpha \left(1 - \exp(-\beta \ln(\lambda_{max})) \right) \quad (2.3.16)$$

où α et β sont des constantes du matériau et λ_{max} est l'étirement principal maximum rencontré au cours de l'histoire du chargement.

Notons que l'équation (2.3.16) correspond à la définition classique de la variable d'endommagement utilisée dans les modèles de comportement pour rendre compte de la diminution de la rigidité élastique des polymères, ou même des matériaux en général. Il convient de noter que la plupart des études se limitent à des petites déformations alors que le présent travail se concentre sur des très grandes déformations. Considérant que la diminution de la rigidité élastique peut être associée à des phénomènes de décohésion, son augmentation peut être attribuée à un phénomène de densification consécutif à l'étirement du réseau. Cela peut justifier l'utilisation d'une fonction de Langevin analogue à celle employée dans la relation contrainte-déformation du réseau (2.2.28) pour donner une équation d'évolution pour D_{res} . On choisit de l'exprimer comme suit :

$$D_{res} = \gamma \left(1 - N^{1/2} \frac{N-1}{3N-1} \mathcal{L}^{-1} \left(\frac{\bar{\lambda}_B^e}{\sqrt{N}} \right) \right) \quad (2.3.17)$$

Chapitre 2. Modélisation du comportement en grandes déformations des polymères

où γ est une constante du matériau. L'étirement sur une chaîne, $\bar{\lambda}_B^e$, est supposé rester à sa valeur atteinte au maximum de l'étirement axial rencontrées au cours de l'histoire du chargement. En d'autres termes, les changements de D_{res} sont supposés être irréversibles.

Les valeurs des paramètres impliqués dans l'équation d'évolution (2.3.15) du module de Young macroscopique sont données dans le tableau 2.3.4.

α	β	γ	m_0^c	α_2^c	β_2^c
0,7	4	0,22	2,1	16 (MPa)	-2,5

Tableau 2.3.4. Paramètres impliqués dans les équations du module, de r^c et de m^c .

Il a été démontré dans l'étude expérimentale que la viscosité évolue avec la déformation. Pour prendre en compte cet effet, le paramètre de viscosité dans l'équation (2.3.7) est considéré comme une fonction non linéaire de la déformation. Il est évident que chaque phase (cristalline et amorphe) a ses propres caractéristiques visqueuses. Compte tenu du taux de cristallinité important mis en jeu dans le matériau, on supposera que seule la viscosité de la phase cristalline évolue, en d'autres termes on imposera que $m^a = m_0^a$. Le paramètre de viscosité prend une forme similaire à celle proposée pour l'équation (2.3.17) :

$$m^c = m_0^c N^{1/2} \frac{N-1}{3N-1} \mathcal{L}^{-1} \left(\frac{\bar{\lambda}_B^e}{\sqrt{N}} \right) \quad (2.3.18)$$

où m_0^c est la valeur initiale de m^c . Encore une fois, $\bar{\lambda}_B^e$ représente l'étirement maximal d'une chaîne atteint au cours de son histoire de chargement.

On admettra également que la contrainte isotrope de la phase cristalline r^c évolue avec la déformation selon l'équation d'évolution suivante :

$$r^c = \alpha_2^c \left(1 + \exp(\beta_2^c \dot{\gamma}_A^{p-c}) \right) \quad (2.3.19)$$

où α_2^c et β_2^c sont les constantes du matériau. Le choix de $\dot{\gamma}_A^{p-c}$ suppose que l'évolution de r^c est irréversible avec l'accumulation de la déformation inélastique dans la phase cristalline.

Les paramètres ont été ajustés sur les courbes de chargement/déchargement à vitesse de déformation vraie constante. Leurs valeurs sont indiquées dans le tableau 2.3.4. Les valeurs des autres constantes du matériau utilisées dans les simulations précédentes et énumérées dans le tableau 2.3.3, sont utilisées ici. La figure 2.3.11 compare les courbes contrainte-déformation simulées et mesurées durant le chargement et le déchargement. On peut constater

Chapitre 2. Modélisation du comportement en grandes déformations des polymères

que le comportement non linéaire du déchargement est correctement reproduit. Toutefois, pendant le chargement monotone, même si le modèle tient compte des données expérimentales à des déformations modérées, la contrainte est sur-estimée en grandes déformations, au-delà environ de 90% de déformation. Il convient de noter que la plupart des modèles développés dans la littérature pour la modélisation du comportement en déchargement sont limitées à de petites déformations alors que nos simulations sont réalisées aux très grandes déformations.

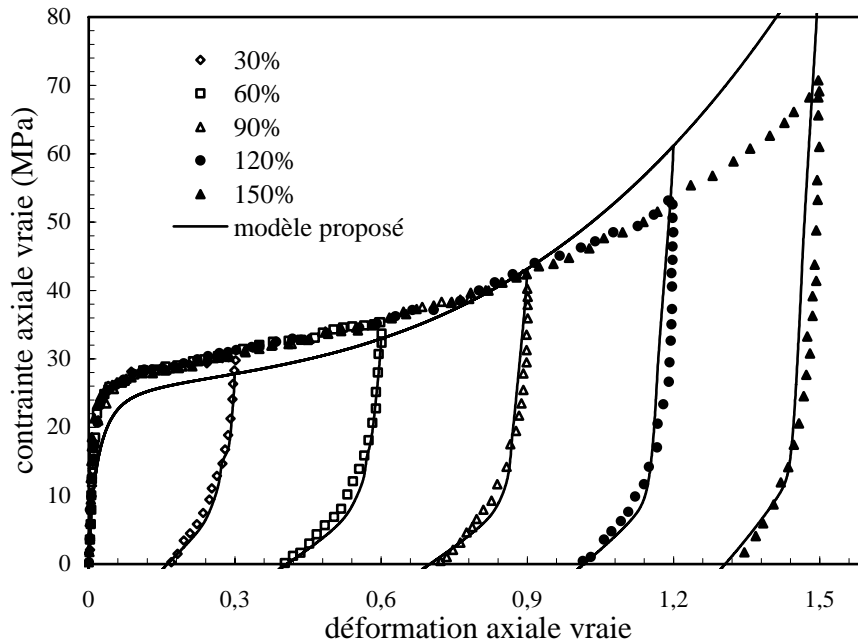
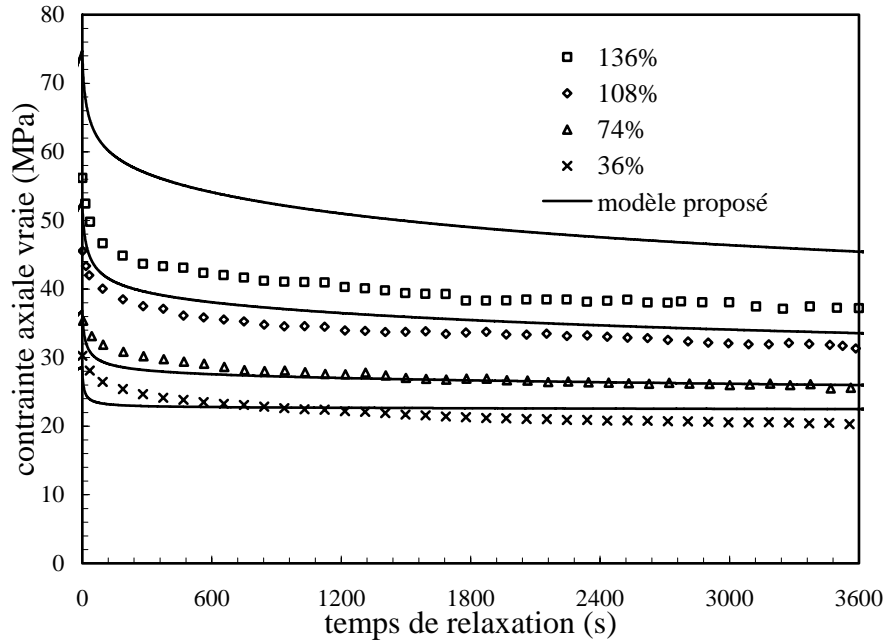
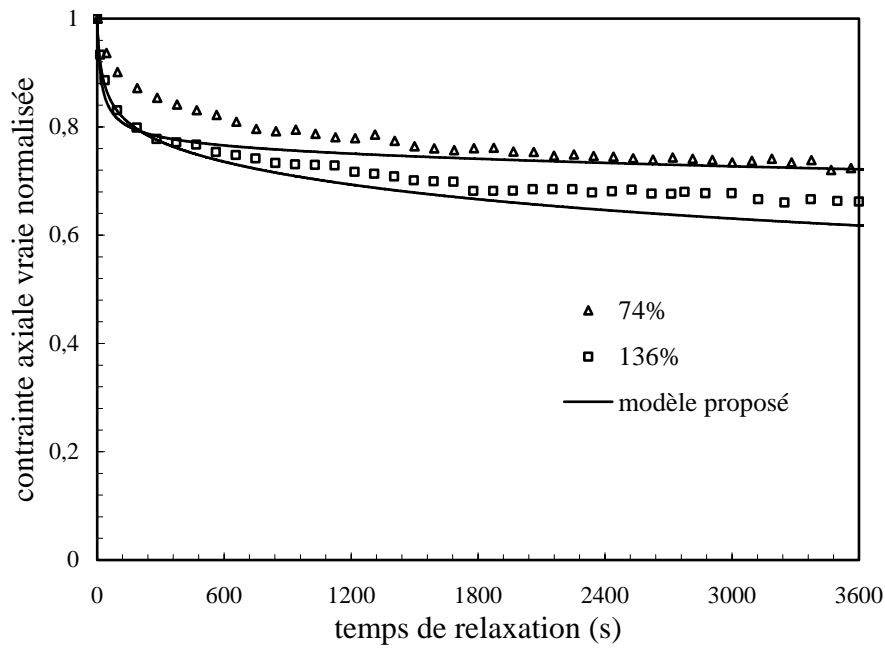


Figure 2.3.11. Comparaison des simulations du modèle proposé avec les données expérimentales en charge-décharge.

Les prédictions de la relaxation des contraintes sont représentées à la figure 2.3.12a. Pour les valeurs de 36, 74 et 108% de déformation, les prédictions et les données expérimentales sont proches les unes des autres. Comme pour les niveaux de déformations élevés les niveaux de contraintes à temps de relaxation nuls sont sur-estimés par le modèle. Les courbes de contrainte de relaxation en fonction du temps ne correspondent pas très bien aux données expérimentales pour la valeur de 136% de déformation. Toutefois, lorsque les courbes du taux de relaxation des contraintes expérimentales et simulées sont comparées, on peut constater que les tendances générales sont similaires. La relaxation des contraintes a été normalisée par la contrainte maximale et le résultat est présenté à la figure 2.3.12b pour deux valeurs de déformation : 74 et 136%. Le résultat simulé pour la valeur de 136% de déformation est en meilleur accord avec les données normalisées.



(a)



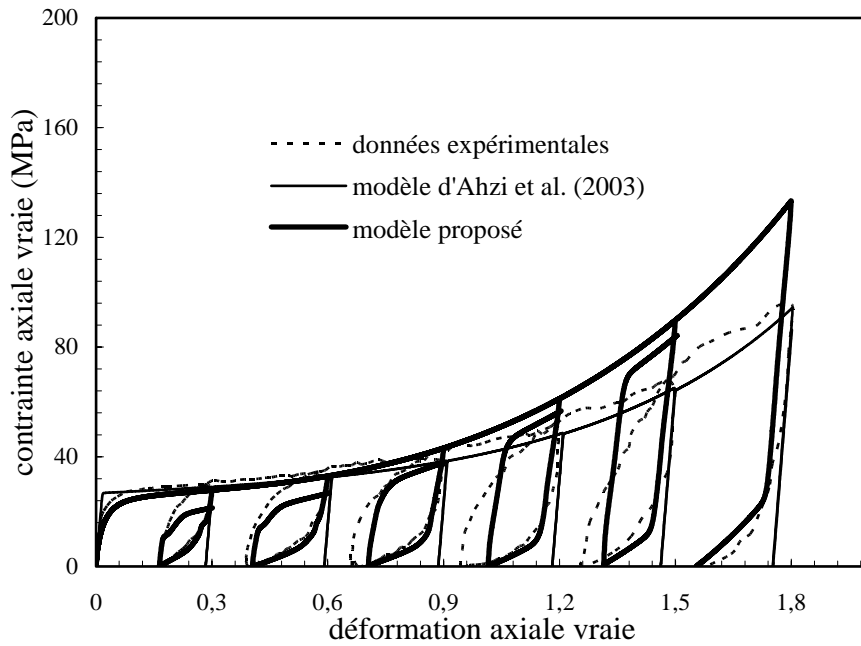
(b)

Figure 2.3.12. Prédiction de la relaxation à partir du modèle proposé en comparaison avec les données expérimentales : (a) contrainte en fonction du temps, (b) contrainte normalisée en fonction du temps.

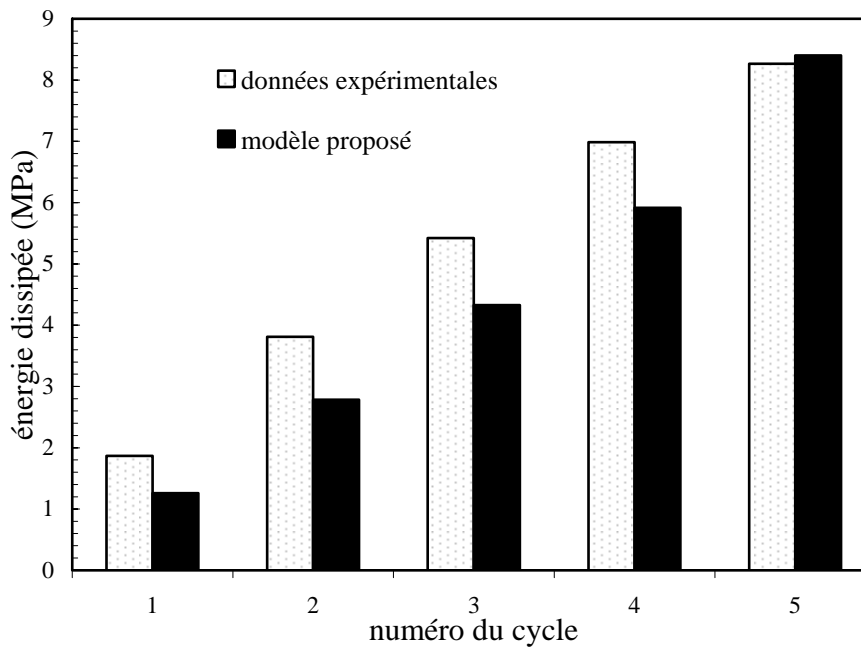
La capacité du modèle à reproduire les mécanismes dissipatifs (viscoélastique et viscoplastique) est également examinée. Les simulations ont été effectuées jusqu'à cinq

Chapitre 2. Modélisation du comportement en grandes déformations des polymères

niveaux de déformation et les résultats sont comparés aux données expérimentales sur la figure 2.3.13a.



(a)



(b)

Figure 2.3.13. Comparaison des simulations du nouveau modèle et des données expérimentales (a) des essais de chargement-déchargement-rechargement et (b) de l'énergie dissipée.

Chapitre 2. Modélisation du comportement en grandes déformations des polymères

Comme nous l'avons montré à la figure 2.3.10a, le modèle d'Ahzi et al. (2003) ne reproduit pas le comportement cyclique observé expérimentalement. En règle générale, un bon accord est obtenu en utilisant le modèle proposé. Au cours du rechargement, la partie viscoélastique de la courbe contrainte-déformation est reproduite assez bien jusqu'à environ 90% de déformation. Au-delà de cette valeur, la partie viscoélastique ne peut plus être bien décrite. Cependant, les courbes de déchargement non linéaires sont très bien reproduites. Les valeurs mesurées et prédites de l'énergie de dissipation à chaque cycle d'hystérésis sont données dans la figure 2.3.13b. On peut observer que les valeurs prédites sont en bon accord avec les données expérimentales, ce qui confirme la capacité du modèle à décrire le comportement non linéaire du HD sous chargement cyclique.

3.4. Remarques et conclusions partielles

Dans cette partie du travail, le comportement mécanique d'un HD a été étudié. En utilisant des échantillons découpés sur des tubes en HD, une série d'essais mécaniques a été effectuée. Les résultats expérimentaux ont montré que la réponse mécanique du matériau est fortement non linéaire et dépendant de la vitesse de déformation. Un modèle à base physique hyperélastique-viscoélastique-viscoplastique a été présenté. Il permet la description des principaux aspects du comportement non linéaire en grandes déformations du HD (chargement et déchargement non linéaire, dépendance à la vitesse de déformation et comportement en relaxation). Dans ce modèle, nous avons supposé que le comportement peut être décomposé en deux résistances agissant en parallèle, l'une capturant l'alignement moléculaire et la relaxation (viscohyperélastique), l'autre permettant de capturer la résistance intermoléculaire viscoélastique-viscoplastique qui est supposée être la contribution d'une résistance amorphe et d'une résistance cristalline agissant en parallèle. Les résultats de nos simulations de la réponse mécanique du HD ont été comparés aux observations expérimentales et un bon accord a été trouvé. Le modèle initial de Boyce et al. (2000), modifié par Ahzi et al. (2003), a également été étudié pour démontrer les capacités améliorées de notre modèle. Nous avons montré que le modèle est capable de capturer les tendances générales pour des essais de chargement-déchargement ainsi que des essais de relaxation. Toutefois, des hypothèses simplificatrices méritent d'être levées pour mieux prendre en compte un certain nombre de mécanismes. L'hypothèse d'isotropie des phases, si elle permet de conduire à une prédiction somme toute quantitativement et qualitativement bonne, reste

Chapitre 2. Modélisation du comportement en grandes déformations des polymères

une hypothèse forte du fait même que la phase cristalline est intrinsèquement anisotrope. En outre, l'anisotropie induite par la déformation due à la modification morphologique ne peut être ignorée, bien qu'elle ne soit pas prise en considération par le modèle. Introduire un effet d'orientation du réseau en cours de la déformation permettrait de mieux décrire physiquement les mécanismes. Enfin, la taille ou les effets de distribution des cristallites ne sont pas pris en compte. À cet égard, l'introduction d'une longueur interne dans une formulation composite plus étayée pourrait être utilisée pour proposer une description plus fine de la microstructure initiale et de son évolution.

Malgré ces verrous qui restent à lever, les résultats ont montré la capacité du formalisme utilisé à décrire le comportement charge-décharge des polymères. Nous nous proposons dans le prochain chapitre d'examiner la capacité d'une telle modélisation à reproduire le comportement en fatigue des polymères.

Chapitre 3. Modélisation du comportement en fatigue des élastomères en utilisant une théorie d'altération du réseau macromoléculaire

1. Introduction

Ce chapitre a pour objectif de proposer une modélisation permettant de reproduire le comportement en fatigue à faible nombre cycles des élastomères. Cette catégorie de polymères présente un comportement essentiellement visco-hyperélastique, la composante plastique étant largement minoritaire dans ces matériaux contrairement aux cas étudiés précédemment.

Les élastomères sont formés de très longues chaînes flexibles orientées au hasard et enroulées les unes sur les autres, soit avec des ponts entre chaînes ou des points de réticulation. La déformation des matériaux élastomères est généralement associée à une diminution d'entropie dans le réseau (Treloar, 1975) et le comportement macroscopique contrainte-déformation est extrêmement non linéaire. Le comportement peut être caractérisé essentiellement par trois zones principales : (i) aux faibles élongations, les chaînes se décroisent et des liaisons faibles entre elles se brisent, (ii) ensuite les chaînes se désenchevêtrent et s'alignent dans la direction du chargement, (iii) finalement, les chaînes sont étendues et atteignent leur limite d'extensibilité, ce qui conduit à la rupture finale. Les élastomères ont une large gamme d'applications, on peut citer par exemple les pneumatiques, les supports de moteur, les joints, les amortisseurs, les tuyaux, les revêtements de tunnels, etc. (Ward, 1985). Cette large gamme d'applications est due principalement à leur capacité à résister à de très larges déformations, sans déformation permanente significative, et d'absorber l'énergie mise en jeu. Leur comportement en grandes déformations est généralement dépendant du temps, et lorsqu'ils sont soumis à un chargement cyclique, en plus des phénomènes d'hystérésis, leurs propriétés mécaniques se détériorent. Par conséquent, la compréhension des mécanismes de déformation ayant lieu au cours du chargement cyclique et le développement de modèles de fatigue prédictifs sophistiqués permettant de rendre compte de l'évolution du comportement

Chapitre 3. Modélisation du comportement en grandes déformations des élastomères

mécanique sont d'une importance fondamentale pour la conception fiable de produits industriels.

Dans ce chapitre, nous étudierons le comportement en chargement cyclique jusqu'à rupture d'un élastomère : le SBR. Un mécanisme d'altération du réseau, basées sur des interprétations physiques du phénomène d'adoucissement des contraintes, est proposé afin d'interpréter la réponse mécanique dépendante du temps des matériaux élastomères sous chargement en fatigue, et ce jusqu'à la rupture. De nouveau, un modèle visco-hyperélastique à base physique, basé sur le même principe que ceux utilisés dans le deuxième chapitre, mais dans lequel nous intégrons une loi d'évolution de l'endommagement par dégradation des paramètres physiques due à l'altération du réseau. La forme générale du modèle est similaire à ceux présentés précédemment en éliminant la partie viscoplastique. Elle peut être essentiellement représentée par deux résistances parallèles : l'une permettant de décrire la réponse non linéaire d'équilibre et l'autre dépendante du temps permettant de décrire la déviation à l'équilibre, dans lequel les paramètres du réseau deviennent des fonctions du taux d'endommagement.

On commencera par présenter les résultats expérimentaux qui caractérisent la fatigue et la dépendance au temps de la réponse du matériau. On présentera ensuite les équations constitutives qui régissent la viscoélasticité en grandes déformations et la théorie d'altération du réseau proposée. La méthodologie pour la détermination des paramètres sera détaillée et l'efficacité du modèle vérifiée avec nos données expérimentales.

2. Description des essais expérimentaux

2.1. Matériaux et méthodes

Le matériau utilisé dans ce travail est un caoutchouc vulcanisé avec du soufre, le styrène-butadiène (SBR), chargé avec 34 pce de noir de carbone. Le tableau 3.2.1 détaille les caractéristiques du matériau fournis par le fabricant. Les échantillons ont été fournis par Trelleborg Group; leurs principales caractéristiques géométriques sont données dans la figure 3.2.1a. Ils ont un diamètre minimum égal à 20 mm et un rayon de courbure égal à 42 mm. Cette forme permet de localiser la déformation, et donc l'amorçage éventuel des fissures, dans

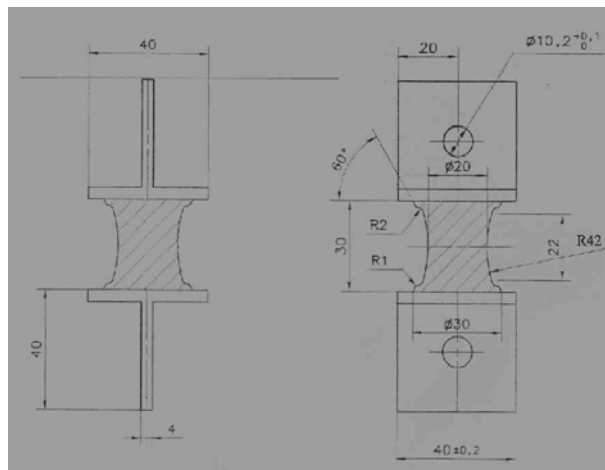
Chapitre 3. Modélisation du comportement en grandes déformations des élastomères

le plan médian, à savoir dans la plus petite section de l'échantillon. De toute évidence, le rayon de courbure imposé est suffisamment grand pour minimiser les effets de triaxialité.

Ingrédients	Value
SBR	100
Oxyde de zinc	10
Huile	0
Noir de carbone	34
Soufre	3
Acide stéarique	3
Antioxydant	5
Accélérateurs	4,3

Tableau 3.2.1. Formulation du matériau SBR (les ingrédients sont en pce - part pour cent en élastomères).

Pour mieux comprendre le comportement hyperélastique dépendant du temps du SBR, des essais de traction cyclique jusqu'à rupture et des essais de relaxation ont été réalisés. Les essais mécaniques ont été effectués sur le système, déjà présenté précédemment, constitué d'une machine d'essai électromécanique universelle Instron-5800 équipée d'un extensomètre optique (une caméra CCD reliée à un ordinateur) pour la mesure locale de la déformation longitudinale vraie. Le dispositif expérimental est présenté sur la figure 3.2.1b. Le système contrôle un pied motorisé sur lequel la caméra CCD est fixée de manière à suivre la contraction de la plus petite section de l'échantillon, qui est ensuite convertie en déformation vraie longitudinale en supposant l'incompressibilité du matériau.



(a)



(b)

Figure 3.2.1. (a) Illustration schématique de l'échantillon en forme de sablier. (b) Système vidéométrique utilisé pour enregistrer la valeur courante de la plus petite section transversale de l'échantillon en forme de sablier.

En outre, le système est capable de conserver in situ la vitesse de déformation locale vraie constante en régulant la vitesse de traverse de la machine d'essai. Le plus important avantage de la technique de mesure par vidéo est d'éviter toute perturbation induite par les extensomètres à contact classique. La force appliquée a été mesurée lors des essais en utilisant une cellule de charge de 1 kN. La contrainte vraie est déterminée en calculant le rapport de la force axiale avec la section transversale réelle de l'échantillon enregistrée par l'installation vidéo. Les essais de traction cycliques ont été menés de manière à atteindre la déformation maximale imposée lors du chargement, puis de parvenir à une contrainte vraie nulle lors du déchargement. Les essais ont été réalisés à température ambiante.

2.2. Discussion sur le comportement mécanique du SBR sous chargement cyclique

Dans ce paragraphe, différents phénomènes observés dans le comportement cyclique du SBR seront présentés et discutés. La figure 3.2.2 illustre l'adoucissement en contrainte résultant de l'effet Mullins du SBR à partir d'un essai de traction cyclique à déformation maximale augmentant tous les trois cycles. Les échantillons de SBR ont été étirés jusqu'à la contrainte maximale à une vitesse de déformation vraie de $0,01 \text{ s}^{-1}$ et déchargés à une contrainte vraie nulle à la même vitesse de déformation vraie absolue. La figure montre clairement que l'adoucissement le plus élevé pour le même niveau de déformation apparaît après la première charge. La réponse en contrainte-déformation du matériau devient répétitive après quelques

Chapitre 3. Modélisation du comportement en grandes déformations des élastomères

cycles pour le même niveau de déformation. La réponse contrainte-déformation reprend le même chemin que celui correspondant à un essai monotone lorsque l'étirement dépasse la déformation maximale appliquée précédemment. En outre, il peut être également observé que le taux d'adoucissement augmente avec le niveau de déformation. Nous avons remarqué qu'il existe une limite inférieure de la déformation, environ 0,05, à partir de laquelle l'adoucissement n'est plus visible. La présence de boucles d'hystérésis indique que le SBR est clairement visco-hyperélastique.

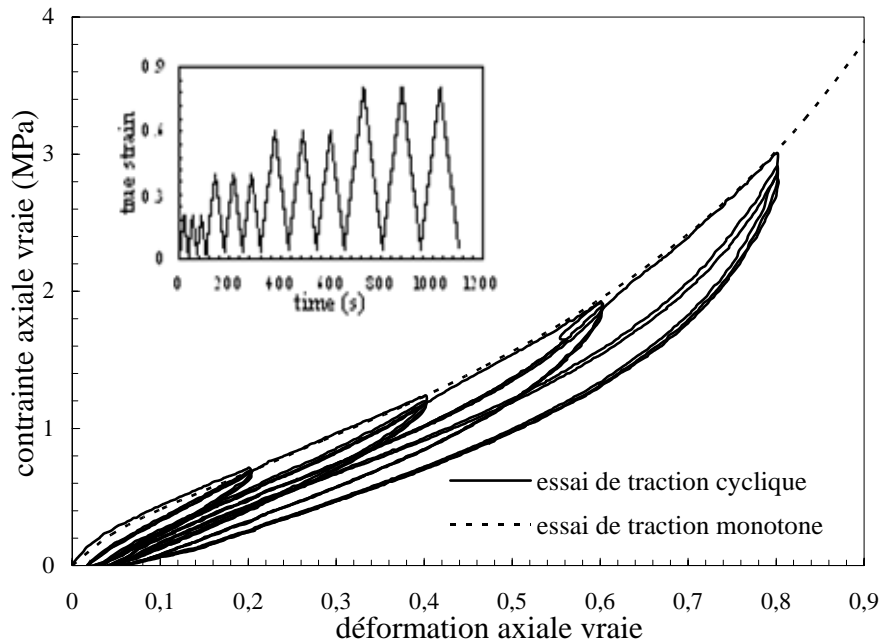
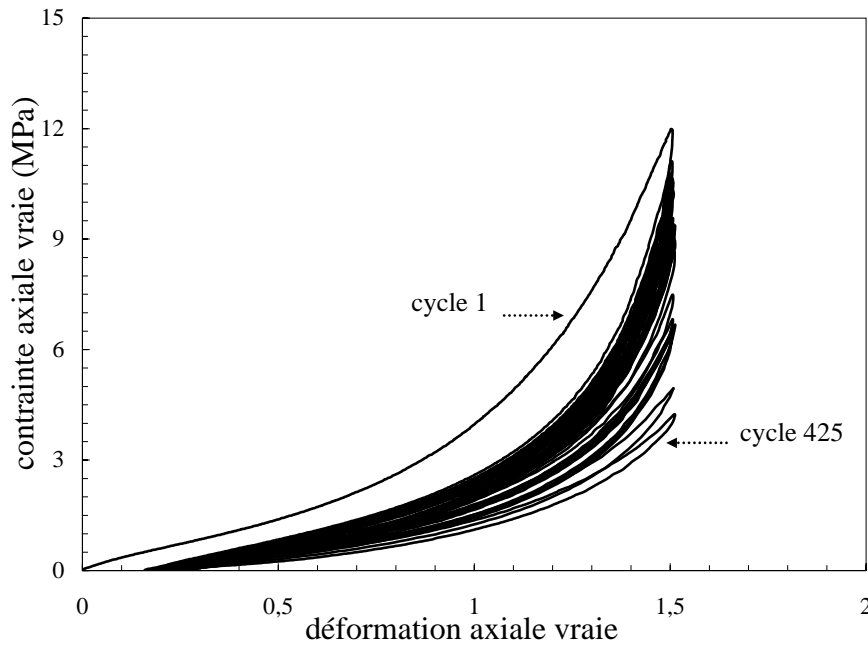


Figure 3.2.2. Courbe contrainte-déformation du SBR soumis à un essai de traction monotone et un essai de traction cyclique en augmentant la valeur de la déformation maximale tous les trois cycles.

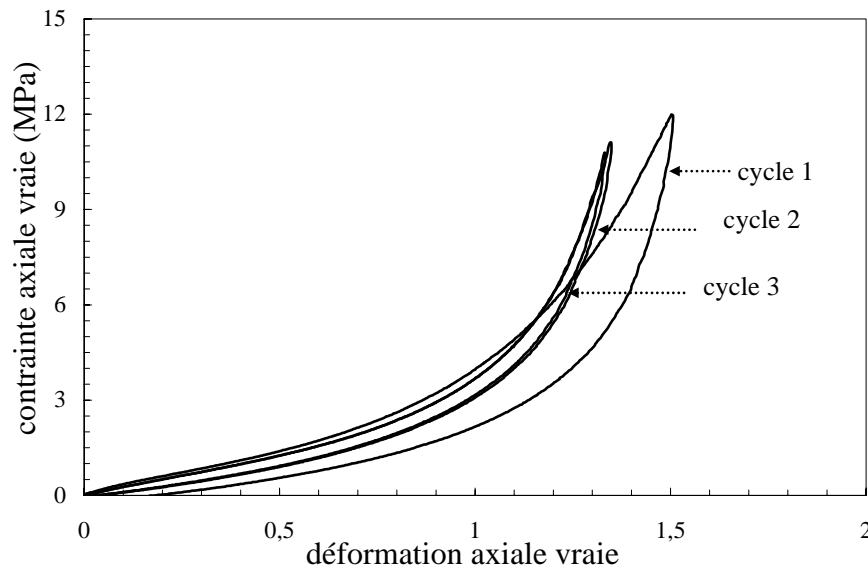
Afin d'évaluer l'adoucissement des contraintes au-delà de l'effet Mullins, la figure 3.2.3 présente les courbes contrainte-déformation du SBR soumis à un essai de traction cyclique jusqu'à rupture (les résultats sont présentés à chaque cinq cycles). Le test a été effectué à une vitesse de déformation vraie de $0,01 \text{ s}^{-1}$ et une déformation maximale fixée à 1,5. En raison de la présence de l'effet Mullins, la transition du premier au deuxième cycle manifeste la plus forte diminution de la contrainte et le premier cycle révèle une dissipation d'énergie importante représentée par le cycle d'hystérésis. La dissipation de l'énergie diminue, et les boucles d'hystérésis semblent se stabiliser après un certain nombre de cycles. Le matériau atteint une sorte d'état stabilisé pour lequel il n'y a pas de changement significatif dans le cycle d'hystérésis et dans la réponse du matériau. Après un certain nombre de cycles, une

Chapitre 3. Modélisation du comportement en grandes déformations des élastomères

diminution significative de la contrainte est observée. Une déformation résiduelle apparaît après le premier cycle et reste relativement constante pour la suite du chargement cyclique.



(a)



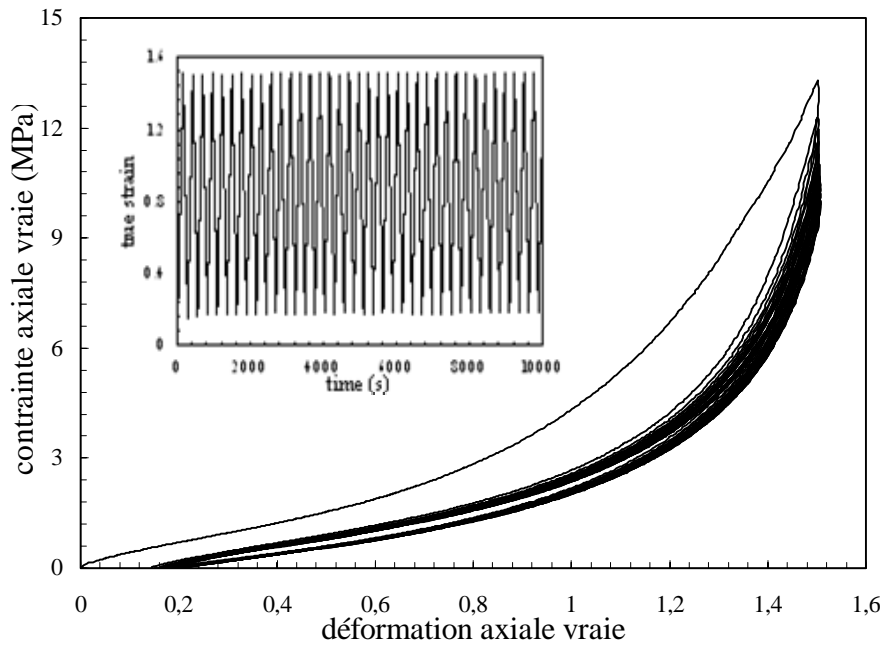
(b)

Figure 3.2.3. Courbe contrainte-déformation du SBR soumis à un essai de traction cyclique à une déformation maximale égale à 1,5 : (a) résultats du 1^{er} cycle jusqu'au 450^{ème} cycle, (b) comparaison entre les trois premiers cycles après élimination de la déformation rémanente.

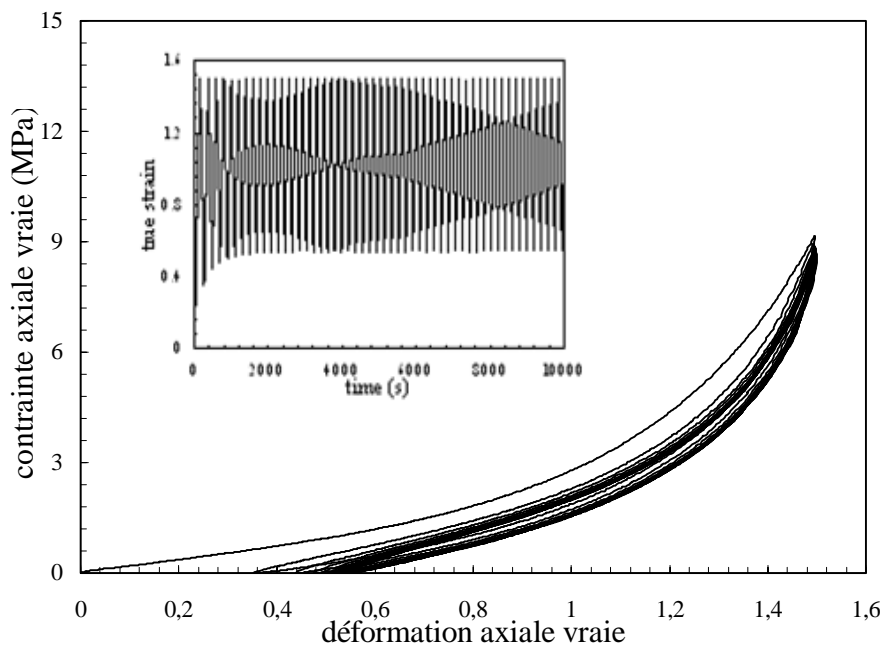
La figure 3.2.3b montre les courbes contrainte-déformation du SBR au cours des trois premiers cycles après soustraction de la déformation résiduelle. Il apparaît que le matériau se

Chapitre 3. Modélisation du comportement en grandes déformations des élastomères

comporte différemment entre le premier cycle et les autres. Ce phénomène peut être attribué à la réorganisation du réseau due à l'effet Mullins.



(a)



(b)

Figure 3.2.4. Effet du traitement thermique sur le recouvrement de la contrainte dans le SBR :
(a) réponse contrainte-déformation de l'échantillon vierge soumis à un essai de traction cyclique pour une déformation maximale de 1,5, (b) réponse contrainte-déformation de l'échantillon étiré puis soumis au même chargement cyclique après exposition à une température de 100°C pendant 48 h.

Chapitre 3. Modélisation du comportement en grandes déformations des élastomères

Il a été observé, dans la littérature, que l'effet Mullins est partiellement ou totalement récupéré en chauffant. Nous proposons à présent d'examiner la récupération de l'adoucissement de la contrainte au-delà de l'effet Mullins. Après que l'éprouvette ait été soumise à un test de traction cyclique (jusqu'au début de la période de stabilisation de la contrainte), celle-ci a été ensuite chauffée à 100°C pendant 48 h, puis étirée une deuxième fois avec le même essai de traction cyclique. La réponse contrainte-déformation du premier essai est présentée dans la figure 3.2.4a et peut être comparée à la réponse du second essai présentée dans la figure 3.2.4b. Ces deux essais démontrent que l'adoucissement des contraintes peut être considéré comme un processus d'endommagement puisque les phénomènes physiques qui se produisent ne sont pas récupérables. En effet, aucun recouvrement de la contrainte n'est remarqué. L'augmentation de la déformation résiduelle après que le matériau ait été chauffé soutient l'idée d'un réarrangement permanent du réseau macromoléculaire formé de longues chaînes. On peut toutefois noter que le traitement thermique (recuit) pourrait induire certains effets de vieillissement et donc affecter les résultats de la figure 3.2.4b.

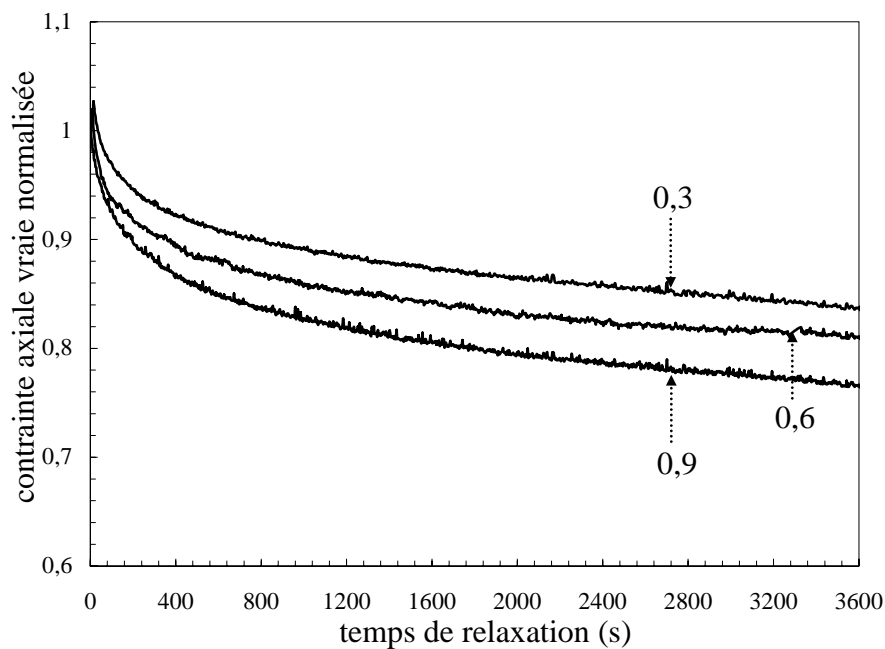


Figure 3.2.5. Contrainte de relaxation axiale vraie normalisée en fonction du temps de relaxation pour le SBR à différents niveaux de déformation.

Les effets visqueux sur le matériau SBR peuvent être aussi étudiés à travers des essais de relaxation. Dans un essai de relaxation, l'éprouvette de SBR est chargée avec une vitesse de déformation vraie constante jusqu'à un certain niveau de déformation vraie, qui est ensuite

Chapitre 3. Modélisation du comportement en grandes déformations des élastomères

conservée constant, et la réponse de la contrainte vraie correspondante est enregistrée en fonction du temps. La figure 3.2.5 montre l'évolution de la contrainte de relaxation, normalisée par la contrainte maximale, avec le temps après avoir atteint plusieurs niveaux de déformations : 0,3, 0,6 et 0,9. La réponse mécanique non linéaire du matériau est de nouveau soulignée. La diminution de la contrainte se produit au début du temps de relaxation, mais après une courte période la contrainte semble converger vers une limite asymptotique.

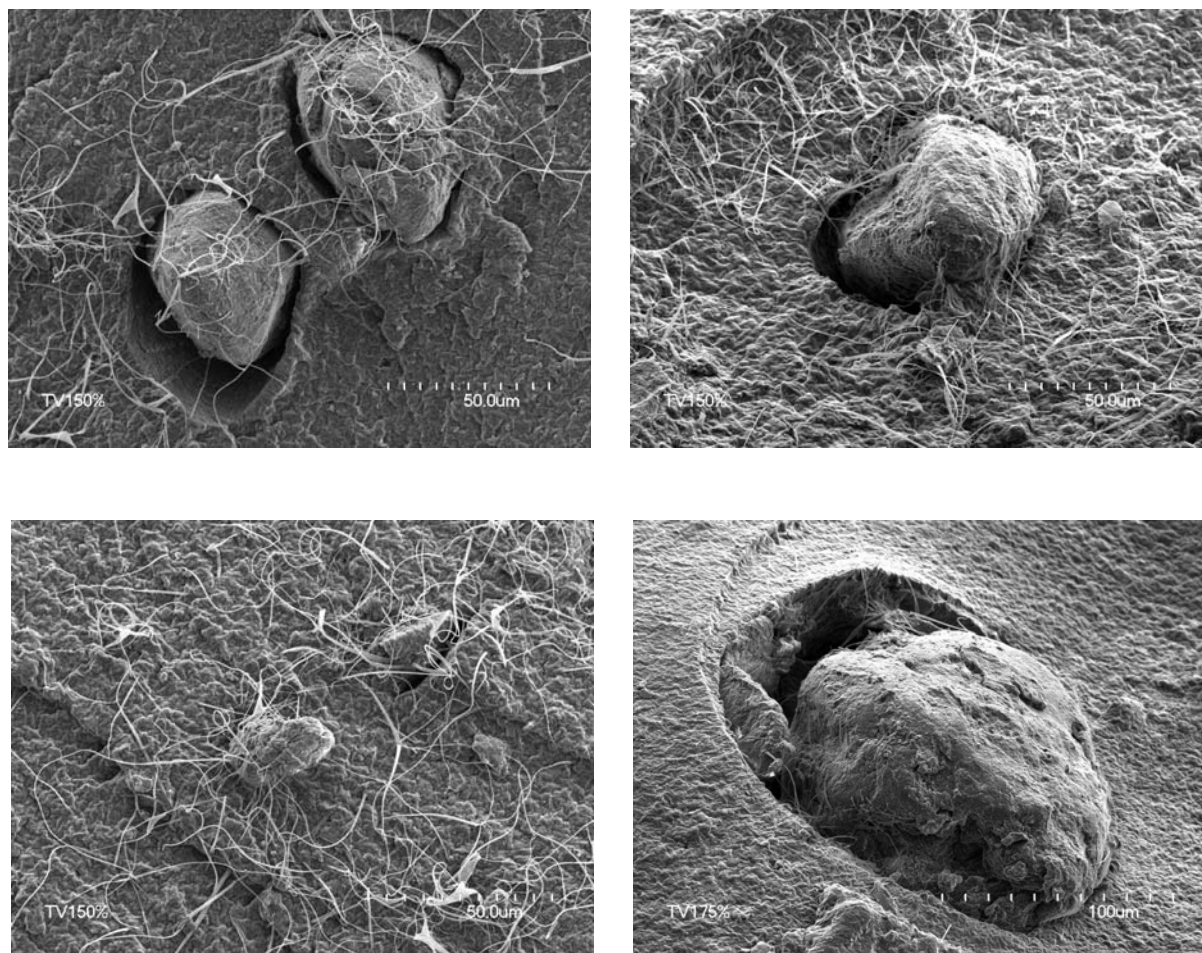
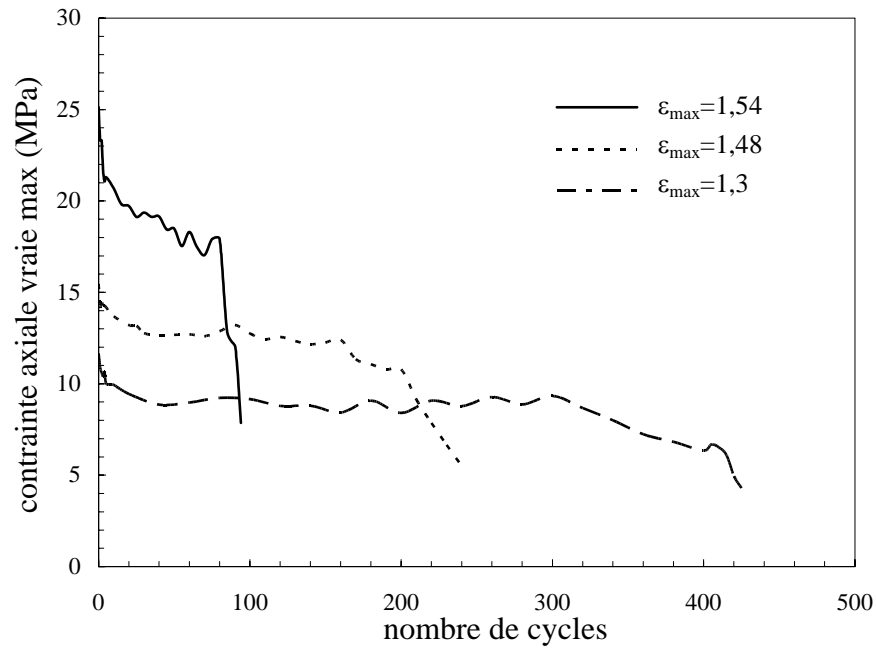


Figure 3.2.6. Exemple de micrographies au MEB des surfaces rompues.

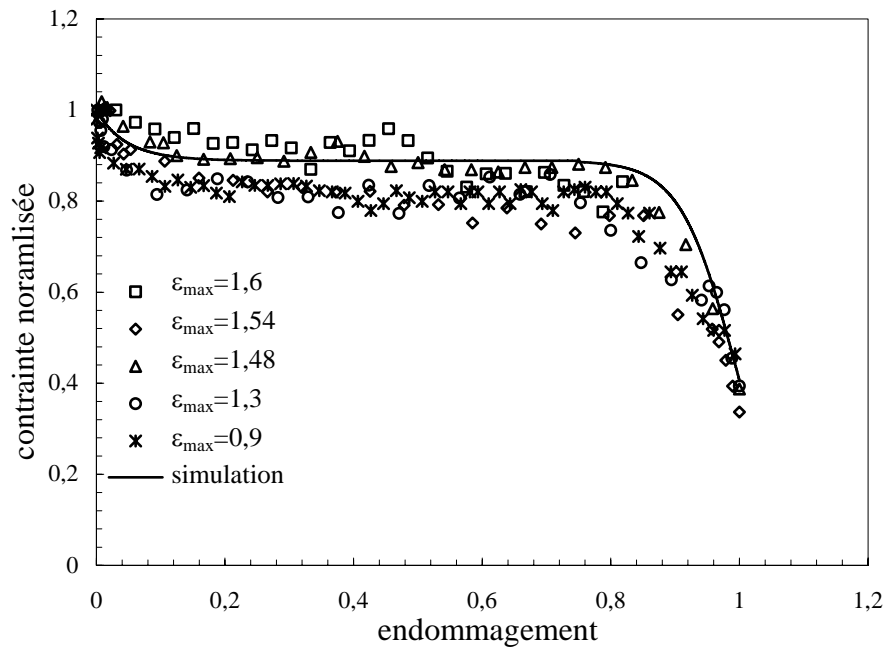
Des essais de traction cyclique jusqu'à rupture ont été effectués sur le matériau SBR. La figure 3.2.6 présente un exemple de micrographies effectuées sur les surfaces rompues à l'aide d'un microscope électronique à balayage (MEB). Avant observation, afin de limiter l'endommagement par irradiation et augmenter l'émission d'électrons, les échantillons ont été revêtus d'une couche conductrice mince. Les observations montrent clairement le décollement des renforts de la matrice de caoutchouc. Il peut être clairement observé par ailleurs un mécanisme de fibrillation important dans la matrice de caoutchouc qui semble être moteur dans le processus de déformation, les zones de fibrillation étant plus marquées que la

Chapitre 3. Modélisation du comportement en grandes déformations des élastomères

décohésion autour des renforts. Cette observation permet l'affirmation que la matrice d'élastomère joue un rôle majeur dans le processus de fatigue.



(a)



(b)

Figure 3.2.7. Résultats des essais de fatigue du SBR à différentes déformations maximales : (a) contrainte maximale en fonction du nombre de cycles, (b) contrainte maximale normalisée en fonction du paramètre d'endommagement.

Chapitre 3. Modélisation du comportement en grandes déformations des élastomères

La figure 3.2.7a montre les données obtenues en termes d'évolution de la contrainte maximale avec le nombre de cycles. Les essais cycliques ont été menés sous différents niveaux de déformation : 0,9, 1,3, 1,48, 1,54 et 1,6. Parce que nous avons négligé la déformation résiduelle, la déformation maximale est l'amplitude de la déformation, soit la déformation maximale à laquelle est soustrait la déformation résiduelle. Il peut être clairement observé que la contrainte diminue de façon monotone avec le nombre de cycles. Les courbes en forme de S peuvent être distinguer en trois zones : (i) un adoucissement de la contrainte, (ii) suivie par une variation faible de la contrainte (iii) et enfin une diminution rapide de la contrainte avant rupture. La figure 3.2.7b présente les résultats en termes de contrainte maximale normalisée en fonction du paramètre d'endommagement. Le paramètre d'endommagement présenté sur cette figure est défini comme le nombre de cycles appliqué N divisé par le nombre de cycles à rupture N_F :

$$D = \frac{N}{N_F} \quad (3.2.1)$$

où $0 \leq D \leq 1$. Le nombre de cycles à rupture N_F est fonction de la déformation maximale ε_{\max} comme la figure 3.2.8 le montre.

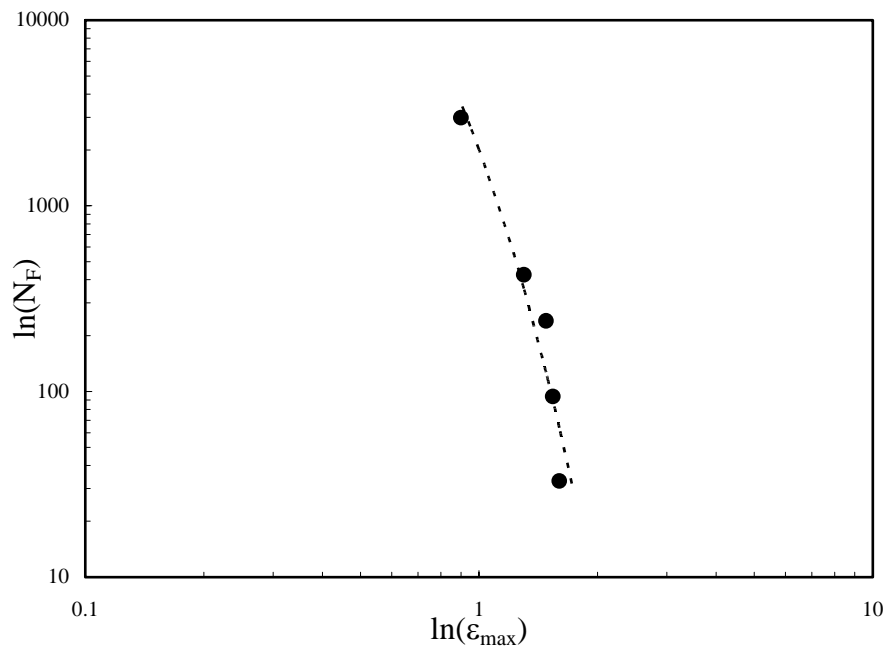


Figure 3.2.8. Durée de vie en fatigue du SBR.

Il convient de noter que la durée de vie en fatigue des matériaux élastomères est généralement considérée comme le nombre de cycles nécessaires pour provoquer l'apparition d'une macro

Chapitre 3. Modélisation du comportement en grandes déformations des élastomères

fissure (classiquement 1 mm de longueur). Nous considérerons que la rupture se produit à la fin de la chute de contrainte, autrement dit dans la troisième zone de la courbe S-N. Notez que cette zone ne correspond pas à la rupture de l'échantillon en deux parties. Dans ce contexte, la « ruine » n'est pas nécessairement la « rupture », mais doit être comprise comme la forte dégradation de la microstructure conduisant à la diminution catastrophique de la rigidité et la perte complète d'intégrité du matériau. Dans la figure 3.2.7b, nous nous concentrons uniquement sur les données expérimentales représentées par les symboles. La figure montre que l'évolution de la contrainte maximale normalisée ne dépend que du taux d'endommagement atteint par l'échantillon. En effet, on peut observer un nuage de points autour d'une courbe maîtresse et théoriquement on peut considérer l'évolution de la contrainte maximale normalisée en fonction du paramètre d'endommagement comme une propriété intrinsèque du matériau. Cette quantité peut être utilisée comme le critère qui permet de quantifier le taux d'endommagement subis par le matériau durant l'histoire de chargement en fatigue.

La suite de ce chapitre a pour but de proposer un modèle pour le comportement en fatigue du SBR, généralisable à tous matériaux caoutchoutiques visco-hyperélastiques.

3. Modélisation

Notre étude expérimentale confirme que le comportement des matériaux élastomères en grandes déformations est visco-hyperélastique, accompagné d'une forte déformabilité non linéaire. Lorsqu'ils sont soumis à des chargements cycliques des phénomènes dissipatifs non linéaires sont observés. Après que l'effet Mullins soit supprimé, la réponse dissipative de notre matériau devient répétitive. La contrainte dans les élastomères est une contribution d'une contrainte d'équilibre et d'un écart dépendant du temps de l'état d'équilibre.

Pour décrire le comportement mécanique du SBR, nous choisissons d'utiliser une représentation de Zener. Comme la figure 3.3.1 le montre, la représentation mathématique des observations expérimentales peuvent être décrites à partir d'une décomposition du comportement en deux parties : (i) une résistance du réseau A (un ressort hyperélastique) décrivant la réponse d'équilibre, (ii) en parallèle avec une branche de Maxwell B (un ressort hyperélastique en série avec un amortisseur visqueux) décrivant l'écart en fonction du temps de l'état d'équilibre.

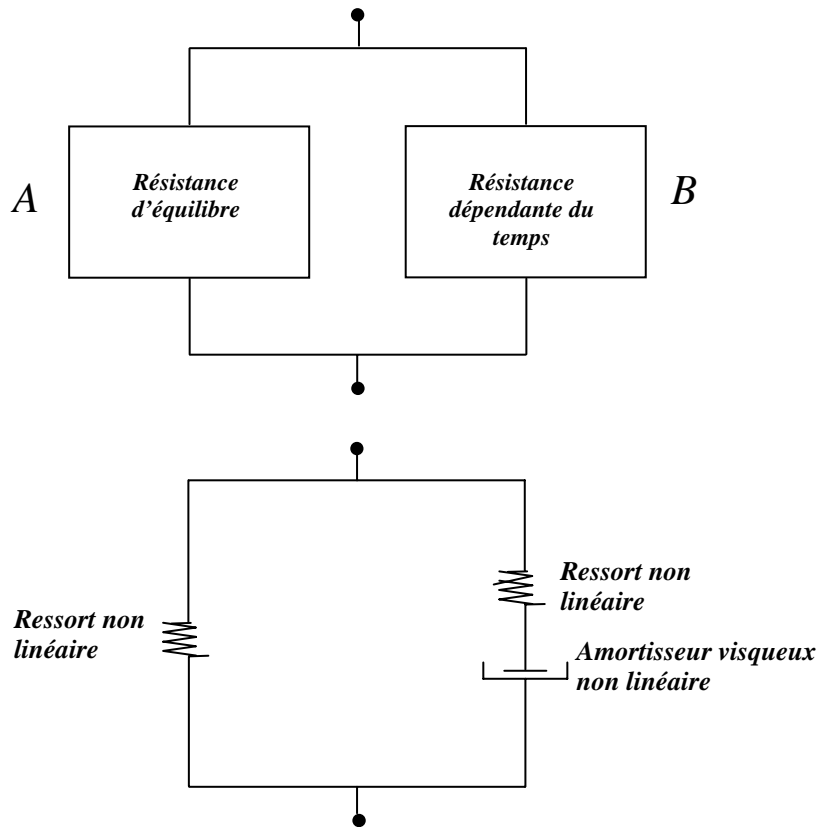


Figure 3.3.1. Illustration schématique du modèle de Zener.

3.1. Modèle viscoélastique en grandes déformations

3.1.1. Branche A : résistance d'équilibre

La branche *A* est constituée d'un ressort hyperélastique capturant l'alignement du réseau moléculaire. Plusieurs expressions de l'énergie de déformation pour matériaux élastomères ont été proposées dans la littérature. On se propose d'utiliser le même formalisme que pour celui donné dans la modélisation des thermoplastiques, en utilisant à nouveau le modèle de Arruda et Boyce (1993) donnée par l'équation (2.2.28) du chapitre 2. Dans cette équation, le nombre de chaînes par unité de volume sera appelé n_A avec $C_{rA} = n_A k \theta$ et le nombre moyen de monomères dans une chaîne de polymère sera appelé N_A ($\sqrt{N_A}$ représentant la limite d'extensibilité des chaînes définie à l'échelle macroscopique par l'asymptote verticale au durcissement structural).

3.1.2. Branche B : résistance dépendante du temps

La branche B est constituée par un ressort hyperélastique en série avec un amortisseur visqueux. Sur le plan moléculaire, l'élément hyperélastique correspond à la résistance entropique à l'alignement du réseau moléculaire tandis que l'élément visqueux produit le processus de relaxation moléculaire dû à la reptation des chaînes. Le processus de reptation des chaînes est représenté schématiquement à la figure 3.3.2. Pour illustrer ce processus physique dépendant du temps, une chaîne libre est incluse dans le réseau déformé (figure 3.3.2a). La figure illustre également le mouvement des extrémités pendantes et la région centrale de la chaîne supposée libre quand une déformation est imposée au réseau (figure 3.3.2b). Dans l'état déformé et l'état relaxé (figure 3.3.2c), la chaîne libre tend à revenir lentement à une configuration plus détendue.

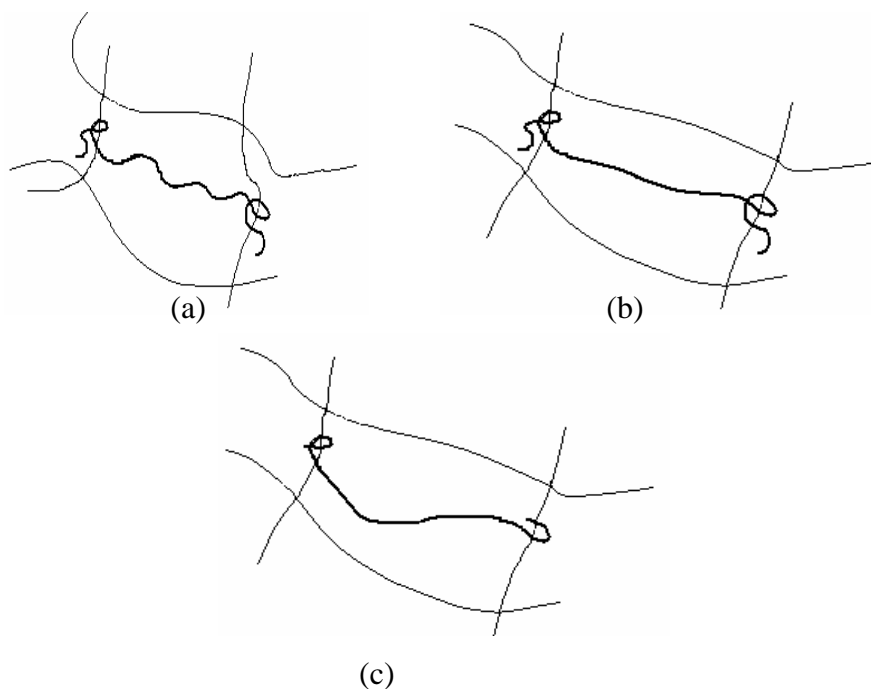


Figure 3.3.2. Illustration schématique du processus de reptation des chaînes : (a) réseau non déformé, (b) réseau déformé après chargement instantané, (c) réseau déformé et relaxé.

Alors que la déformation dans l'élément hyperélastique de la branche A est associée à la déformation totale, pour la branche B , il est nécessaire de séparer la déformation totale en composantes élastique et inélastique (ou visqueuse). Comme montrée par l'équation (2.2.23), le gradient de déformation \mathbf{F}_B est décomposé en une partie orientation du réseau \mathbf{F}_B^N et une

Chapitre 3. Modélisation du comportement en grandes déformations des élastomères

partie écoulement \mathbf{F}_B^f d'une façon multiplicative. Cette décomposition introduit la notion de la configuration intermédiaire (relaxée) supposée libre de contrainte. Les principales équations sont décrites dans le paragraphe 2.3.1.2 du chapitre 2.

Comme pour la branche A , on utilise la densité d'énergie de déformation d'Arruda et Boyce (1993) pour décrire le comportement du réseau (ressort hyperélastique). Les paramètres impliqués dans cette équation seront notés avec un indice B : n_B (avec $C_{rB} = n_B k \theta$) et N_B . Le seul paramètre de relaxation moléculaire, intervenant dans l'équation régissant l'amortisseur visqueux, est noté C_f .

3.2. Cinétique d'altération du réseau

Les résultats expérimentaux précédents montrent que le matériau SBR soumis à des essais de fatigue manifeste une détérioration de ses propriétés mécaniques (voir figure 3.2.7). Il convient de préciser que l'unicité de la contrainte normalisée en fonction du paramètre d'endommagement démontre que les mécanismes de déformation par fatigue (fatigue des liaisons faibles et scission de chaînes) ne dépendent que de l'endommagement induits. Dans la figure 3.2.7b, trois zones peuvent être clairement distinguées :

- (i) Dans la première zone, un faible adoucissement des contraintes a lieu entre le deuxième cycle et un paramètre d'endommagement D égal à 0,2.
- (ii) Dans la seconde zone, une variation très faible de la contrainte maximale peut être observée jusqu'au paramètre d'endommagement critique D_c .
- (iii) La troisième et dernière zone correspond à une rapide diminution de la contrainte maximale jusqu'à ce que l'échantillon rompe.

Les différentes zones peuvent être analysées d'un point de vue physique, en liant le réarrangement des chaînes du réseau sous tension et les observations macroscopiques. La première zone peut être connectée à la rupture de chaînes courtes. Au cours du premier étirement quelques chaînes atteignent leur limite d'extensibilité (ce qui conduit à la rupture de ces chaînes) et de la même manière certaines liaisons faibles se brisent (Marckmann et al., 2002).

La recouvrance partielle ou totale avec le temps et la température de l'effet Mullins suggère que la rupture des interactions moléculaires faibles entre chaînes joue un rôle important dans le processus. Toutefois, les essais de recuit réalisés dans ce travail ont montré que

Chapitre 3. Modélisation du comportement en grandes déformations des élastomères

l'adoucissement au-delà de l'effet Mullins n'est jamais récupéré. Le premier cycle conduit à un nombre constant de liaisons rigides entre enchevêtrements pour des chargements équivalents ou plus petits que la déformation au premier chargement. Cependant, les résultats expérimentaux montrent une diminution de la contrainte au cours du cyclage. On peut expliquer ce phénomène par le scénario illustré à la figure 3.3.3. Des chaînes courtes coincées entre deux chaînes enchevêtrées gardent leur intégrité après le premier cycle. En cyclant, les chaînes se désenchevêtrent, transférant ainsi les contraintes aux petites chaînes encore intègres, qui se brisent par la suite.

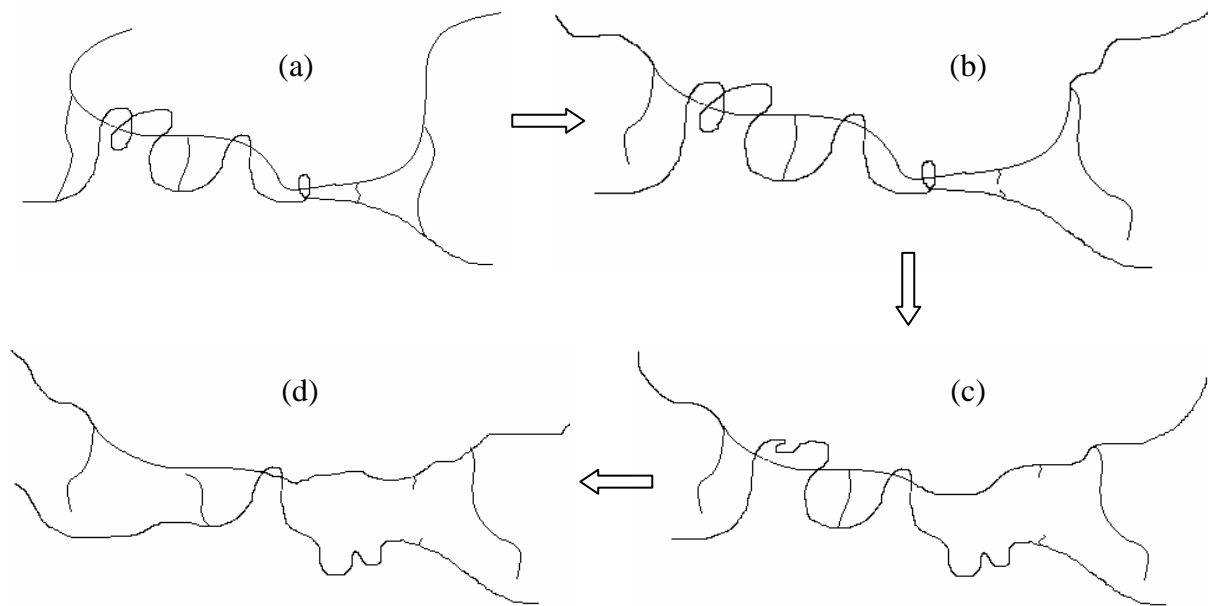


Figure 3.3.3. Illustration schématique du processus d'adoucissement des contraintes : (a) réseau non déformé, (b) effet Mullins lorsque les chaînes courtes atteignent leur limite d'extensibilité, (c) désenchevêtrement des chaînes, (d) rupture des chaînes coincées entre deux enchevêtrements après N cycles de fatigue.

À mesure que la rupture des chaînes et des liens s'accroît avec le nombre de cycles, et à mesure que le nombre de points de jonctions entre chaînes décroît, le nombre moyen de segments de monomères dans une chaîne de polymère augmente. La zone de faible adoucissement survenant après le premier cycle à la même origine que l'effet Mullins, mais avec une intensité plus faible car il est étendu dans le temps. Récemment, Marckmann et al. (2002) décrivent l'effet Mullins comme une altération du réseau due à l'augmentation de la longueur moyenne des chaînes du réseau, et ont retenu comme critère l'étirement maximal. Le chargement par fatigue génère des cavitations, craquelures et décohésions entre charges et matrice élastomère (Le Cam et al., 2004). La deuxième zone est probablement une

Chapitre 3. Modélisation du comportement en grandes déformations des élastomères

conséquence de l'apparition de microfissures et de leur croissance dans la matrice. Leur croissance rapide, due à la coalescence et la rupture des ligaments, conduit à la manifestation de la troisième zone. Etant donné que les mesures ont été réalisées localement dans la plus petite section de l'échantillon (où se produit la localisation des déformations) à vitesse de déformation vraie constante, les différentes étapes des courbes expérimentales obtenues peuvent être considérées comme intrinsèques. Bien qu'étant un phénomène brusque, la rupture finale peut être aussi considérée comme une propriété intrinsèque du matériau, puisque la vitesse de déformation vraie demeure constante tout au cours de l'histoire du chargement.

Du point de vue du modèle, deux paramètres physiques peuvent être affectés par l'altération du réseau : le nombre de segments $N_{A,B}$ et de la densité de chaînes $n_{A,B}$. Nous avons choisi d'exprimer ces deux paramètres en fonction du taux d'endommagement D subi par le matériau au cours de son histoire :

$$\begin{aligned} N_{A,B} &= N_{A,B}(D) \\ n_{A,B} &= n_{A,B}(D) \end{aligned} \quad (3.3.1)$$

La réorganisation du réseau conduit à une augmentation du nombre de segments $N_{A,B}$. La loi de conservation de la masse impose que le nombre total de monomères par unité de volume reste constant. Il convient de remarquer que cette condition a été respectée ici. Toutefois, au cours de la réorganisation du réseau, des chaînes pendantes, qui ne participent pas à la rigidité du matériau, peuvent apparaître. Ce qui implique que le nombre total de monomères par unité de volume n'est pas nécessairement constant, même si, dans cette étude nous le considérerons constant, les chaînes transformées en chaînes pendantes étant négligées. La densité de chaînes $n_{A,B}$ devrait donc évoluer de telle sorte que :

$$n_{A,B}N_{A,B} = n_0N_0 = \text{constant} \quad (3.3.2)$$

où n_0 et N_0 désignent respectivement les valeurs initiales de la densité de chaînes et le nombre de segments à l'état initial.

Pour décrire les mécanismes de fatigue, nous proposons d'exprimer le nombre de segments $N_{A,B}$ sous la forme exponentielle suivante :

$$N_{A,B} = \begin{cases} N_0 + \alpha(1 - \exp(-\beta D)) & 0 \leq D \leq D_c \\ \tilde{N}_0 + \gamma \exp(\eta D) & D_c \leq D \leq 1 \end{cases} \quad (3.3.3)$$

Chapitre 3. Modélisation du comportement en grandes déformations des élastomères

où α , β , γ , η sont des paramètres matériaux. Si le matériau n'est pas endommagé, $D = 0$, on retrouve la valeur initiale de $N_{A,B}$, c'est-à-dire $N_{A,B} = N_0$. La rupture est censée se produire quand $D = 1$.

La condition de continuité de la fonction $N_{A,B}$ au point critique D_c conduit à :

$$\tilde{N}_0 = N_0 + \alpha(1 - \exp(-\beta D_c)) - \gamma \exp(\eta D_c) \quad (3.3.4)$$

Parce que la réponse du matériau incluant l'hystérésis ne semble pas être significativement affectée par le chargement cyclique après que l'effet Mullins ait été négligé, les paramètres de relaxation moléculaire sont à priori supposés constants pendant le chargement en fatigue.

3.3. Identification du modèle proposé

Dans ce paragraphe, la comparaison des simulations avec les résultats expérimentaux est présentée. Nous commencerons par l'identification des paramètres du modèle à partir de la réponse du matériau SBR vierge (considérée comme la réponse du matériau, après que l'effet Mullins ait été retiré). Une fois ces paramètres connus, nous suivrons l'évolution de la contrainte maximale pendant le cyclage et nous identifierons les paramètres d'endommagement liés à sa variation.

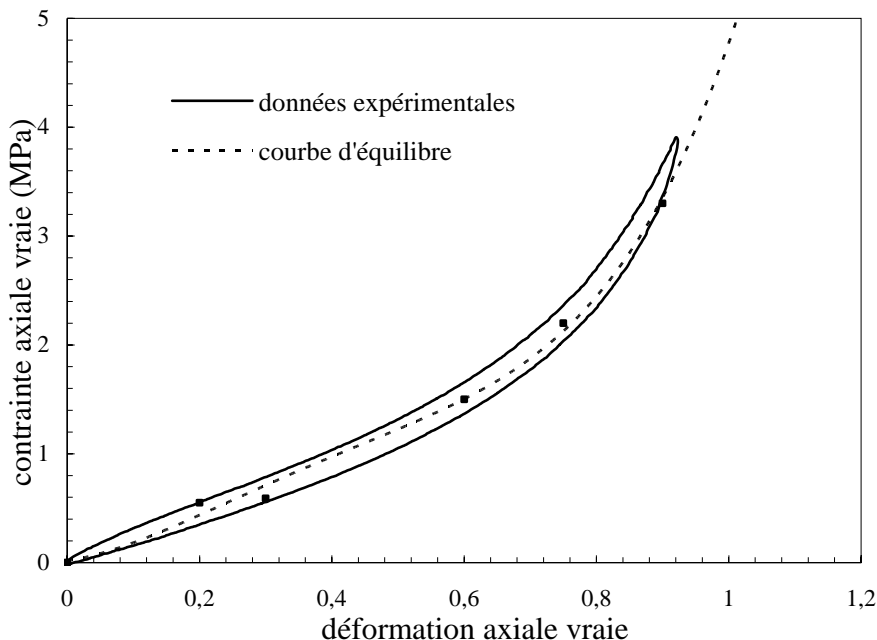


Figure 3.3.4. Courbe de traction du SBR comparée à la courbe d'équilibre estimée.

Chapitre 3. Modélisation du comportement en grandes déformations des élastomères

La figure 3.3.4 présente une comparaison entre la courbe de chargement-déchargement en contrainte-déformation et la courbe d'équilibre estimée à partir de la contrainte d'équilibre de relaxation à différents niveaux de déformation. Dans cette étude, par souci de simplification, nous considérons que la courbe d'équilibre est confondue avec la courbe de la décharge. C'est la raison pour laquelle le module caoutchoutique et la limite d'extensibilité des chaînes de chaque branche ont été prises égales, c'est-à-dire que $C_{rA} = C_{rB} = n_0 k \theta$ et $N_A = N_B = N_0$. Ces paramètres ont été déterminés par ajustement du modèle de comportement aux données monotones en contrainte-déformation. La calibration simultanée du paramètre de relaxation moléculaire C_f complète la procédure d'identification de la réponse du matériau vierge. Les valeurs sont présentées dans le tableau 3.3.1.

Loi de comportement	Module caoutchoutique	$C_{rA} = C_{rB} = n_0 k \theta$	0,18 (MPa)
	Densité d'enchevêtrement	$N_A = N_B = N_0$	26,5
	Paramètre de relaxation moléculaire	C_f	$2,6 \times 10^{-2}$ (MPa.s) ⁻¹
Endommagement par fatigue	Paramètre de dommage pré-critique	α	2,5
	Paramètre de dommage pré-critique	β	19,9
	Paramètre de dommage critique	D_c	0,75
	Paramètre de dommage post-critique	γ	$12,9 \times 10^{-10}$
	Paramètre de dommage post-critique	η	23,8

Tableau 3.3.1. Paramètres du SBR.

Les paramètres intervenant dans l'évolution du modèle à huit chaînes sous chargements cycliques ont été déterminés par ajustement des données de la figure 3.2.7b. Cette figure montre un bon accord entre le modèle et les données expérimentales qui forment un nuage de points autour de la modélisation. La figure 3.3.5 montre l'évolution des paramètres $n_{A,B}$ et $N_{A,B}$ en fonction du taux d'endommagement. La figure permet de montrer comment ces deux paramètres sont affectés par l'altération du réseau. Comme le nombre de points de jonctions entre chaînes diminue avec le nombre de cycles (une conséquence de l'augmentation de la rupture des chaînes et des liens), le nombre de segments dans une chaîne $N_{A,B}$ augmente et la densité de chaîne $n_{A,B}$ (à savoir le module caoutchoutique $C_{rA,B}$) diminue. Cette dégradation

Chapitre 3. Modélisation du comportement en grandes déformations des élastomères

imposée au réseau peut rendre compte de la réponse du matériau, de l'adoucissement de Mullins jusqu'à rupture.

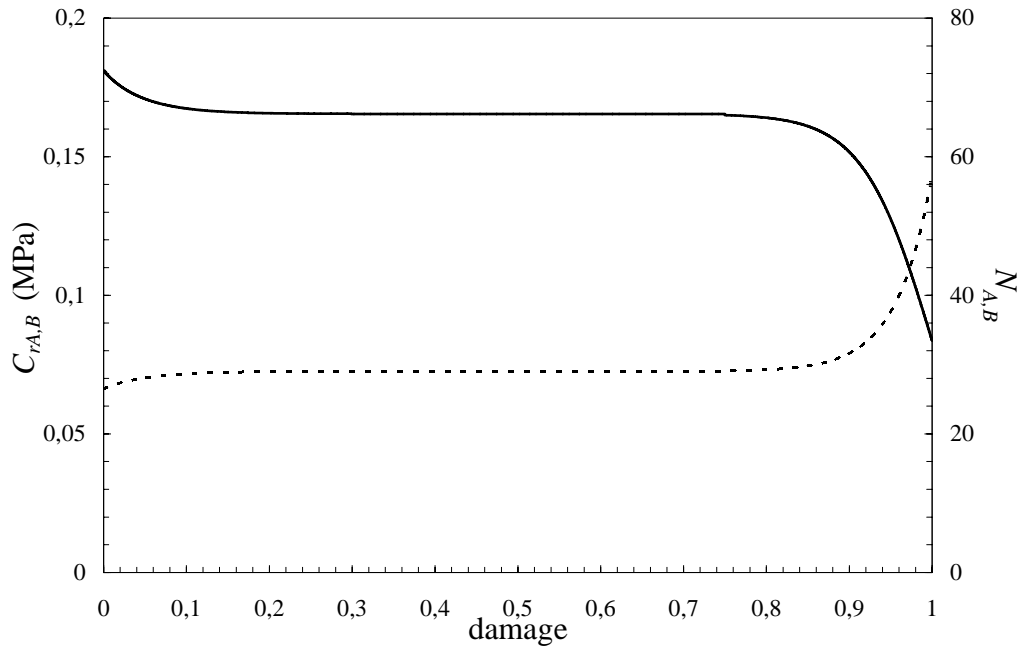


Figure 3.3.5. Evolution au cours du chargement en fatigue des deux paramètres physiques affectés par l'altération du réseau : $C_{rA,B} = n_{A,B} k \theta$ (ligne en continue) et $N_{A,B}$ (ligne en pointillée).

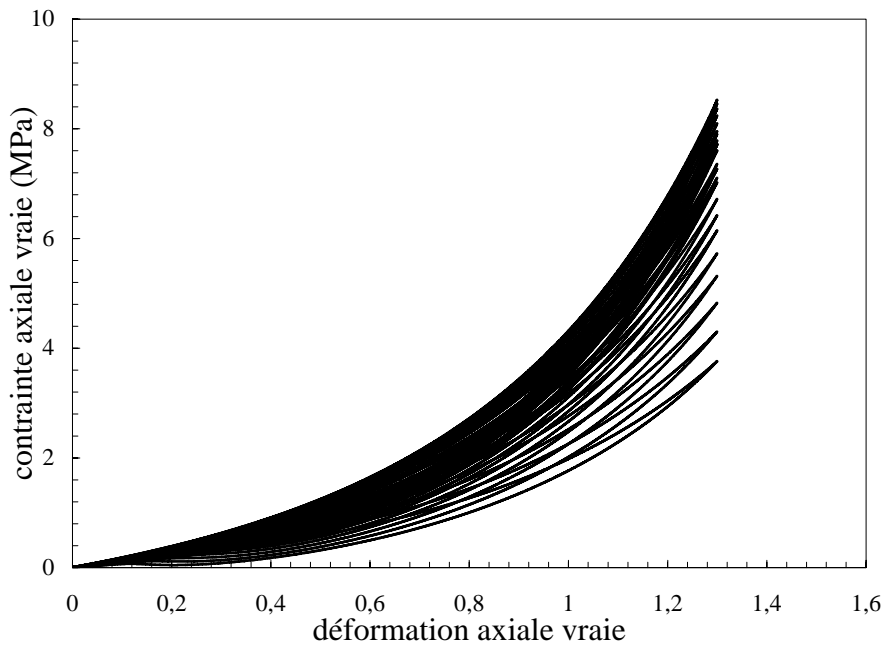


Figure 3.3.6. Simulation numérique des courbes contrainte-déformation du SBR soumis à des essais de traction cyclique à une déformation maximale de 1,3.

Chapitre 3. Modélisation du comportement en grandes déformations des élastomères

A titre d'exemple, la figure 3.3.6 présente les résultats numériques en termes de courbes contrainte-déformation du matériau SBR soumis à un test de traction cyclique jusqu'à rupture (Les résultats sont présentés tous les cinq cycles). Cette figure peut être qualitativement comparée aux données expérimentales de la figure 3.2.3a.

3.4. Validation du modèle proposé

La figure 3.3.7 montre la capacité du modèle proposé à capturer quantitativement le comportement contrainte-déformation du SBR à différents niveaux de déformation et d'endommagement. A chaque niveau de déformation, les courbes contrainte-déformation du SBR sont comparées avec le modèle à trois niveaux différents d'endommagement. Les lignes en pointillés désignent les données expérimentales tandis que les traits pleins représentent les résultats de la simulation. Ces courbes montrent la capacité du modèle à reproduire les principales caractéristiques des données expérimentales sur une large gamme de déformation. La modélisation du comportement du SBR est moins précise pour des déformations très importantes sans doute en raison de l'utilisation du modèle à huit chaînes dans la résistance capturant la réponse d'équilibre et dans la branche de Maxwell.

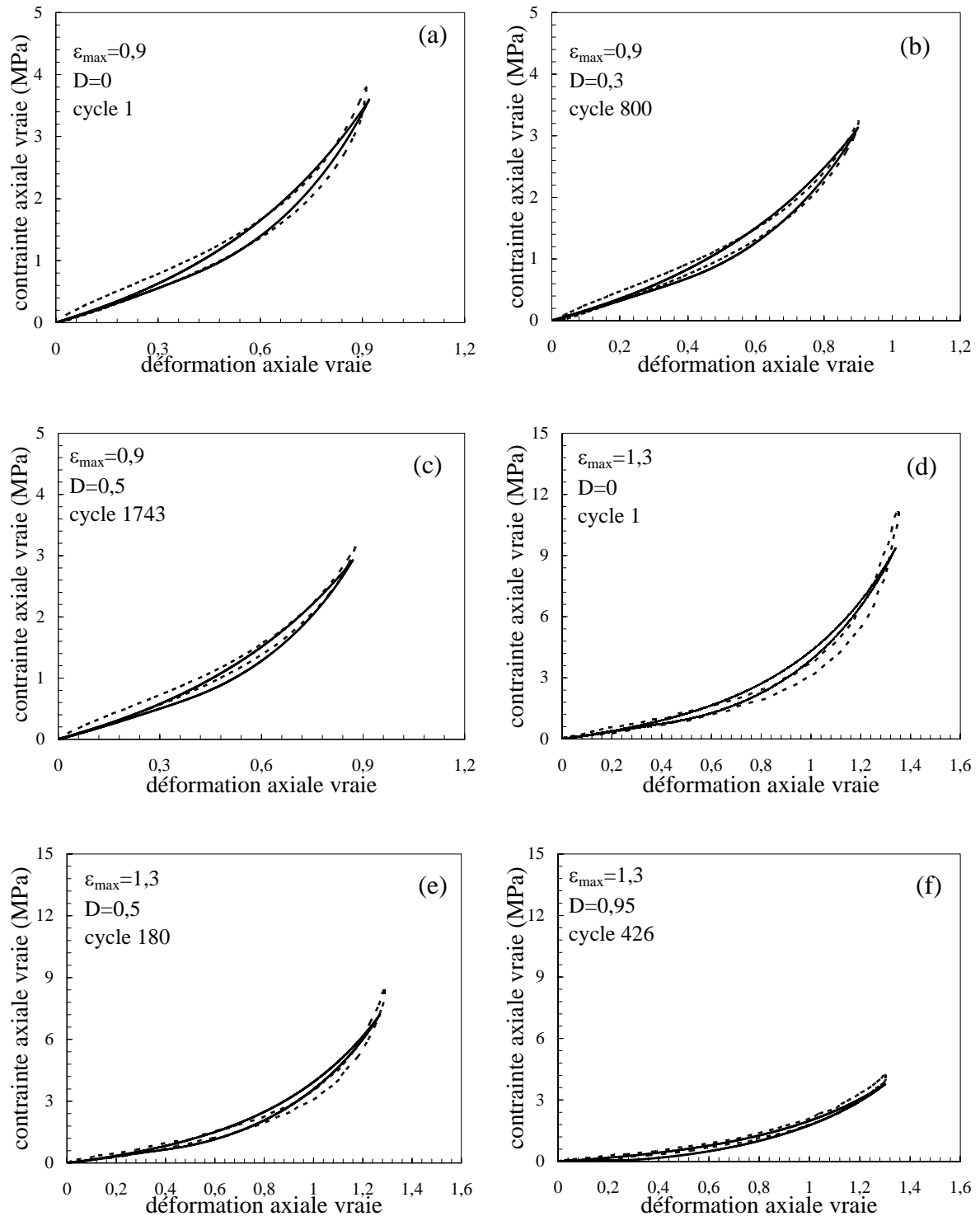
En fait, le modèle à huit chaînes ne parvient pas à reproduire fidèlement le fort durcissement de la réponse contrainte-déformation du SBR pour des déformations très importantes correspondant à l'alignement des chaînes moléculaires dans la direction du chargement. Mais notre choix a été principalement motivé par la base physique de ce modèle pour les élastomères, reliant propriétés du réseau au comportement macroscopique. L'avantage de ce modèle physique réside dans le faible nombre de paramètres, $C_{rA} = C_{rB}$ et $N_A = N_B$, facile à déterminer expérimentalement, auxquels on doit ajouter un paramètre de relaxation moléculaire, C_f pour la viscoélasticité.

La théorie d'altération du réseau proposée, basée sur l'évolution des propriétés du réseau lors du chargement en fatigue, a ensuite été implantée dans le modèle pour reproduire la dégradation des propriétés mécaniques d'un point de vue physique. Les résultats ci-dessus ont montré l'efficacité de notre modèle d'altération de réseau à capturer la réponse du SBR sous des conditions de chargement à amplitudes constantes.

Toutefois, dans la plupart des structures en caoutchouc les déformations appliquées s'alternent rarement entre des limites constantes, les conditions en service conduisant plutôt à des sollicitations à amplitudes variables. Ce type de chargement peut être un test très sévère

Chapitre 3. Modélisation du comportement en grandes déformations des élastomères

pour la validation d'un modèle. Nous nous proposons dans la suite d'examiner les capacités prédictives du modèle proposé à capturer des tests à amplitudes variables. Pour illustrer ce point, deux niveaux de chargement ont été appliqués comme schématisé à la figure 3.3.8.



Chapitre 3. Modélisation du comportement en grandes déformations des élastomères

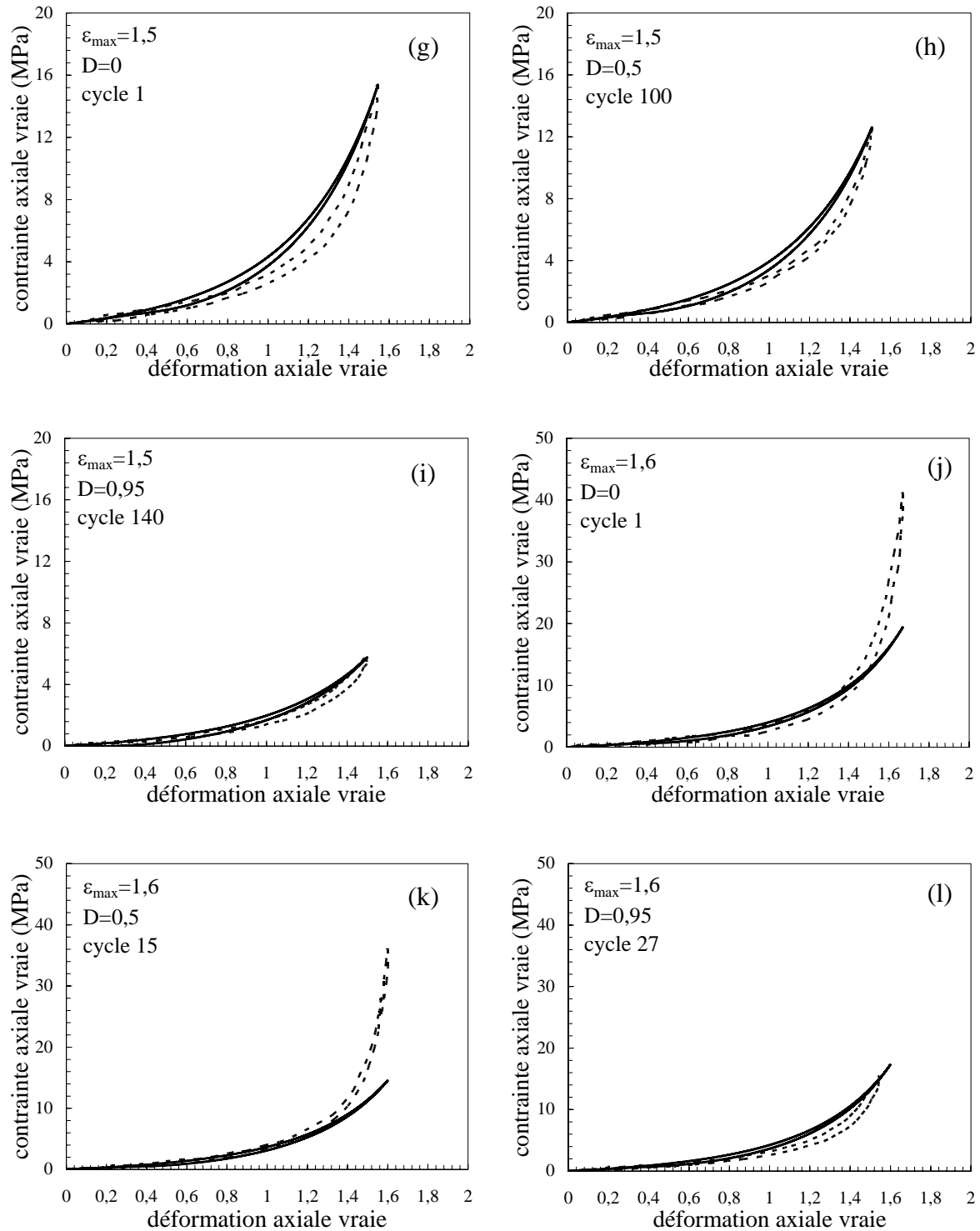


Figure 3.3.7. Comparaison des résultats de la simulation (lignes en continues) avec les données expérimentales (lignes en pointillés) pour la réponse contrainte-déformation du SBR à différents niveaux de déformation et d'endommagement : (a) $\epsilon_{\max}=0,9$, $D=0$; (b) $\epsilon_{\max}=0,9$, $D=0,3$; (c) $\epsilon_{\max}=0,9$, $D=0,5$; (d) $\epsilon_{\max}=1,3$, $D=0$; (e) $\epsilon_{\max}=1,3$, $D=0,5$; (f) $\epsilon_{\max}=1,3$, $D=0,95$; (g) $\epsilon_{\max}=1,5$, $D=0$; (h) $\epsilon_{\max}=1,5$, $D=0,5$; (i) $\epsilon_{\max}=1,5$, $D=0,95$; (j) $\epsilon_{\max}=1,6$, $D=0$; (k) $\epsilon_{\max}=1,6$, $D=0,5$; (l) $\epsilon_{\max}=1,6$, $D=0,95$.

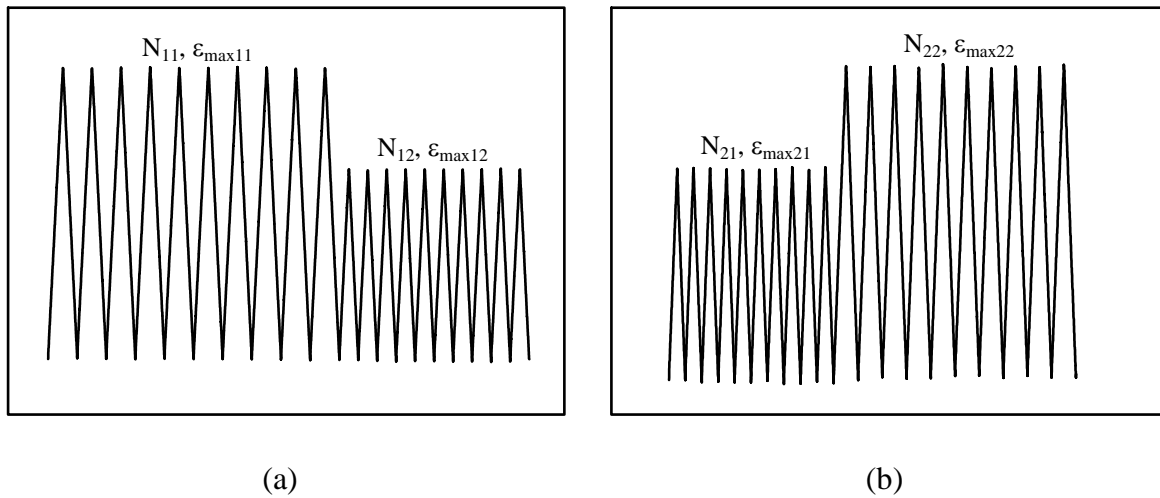
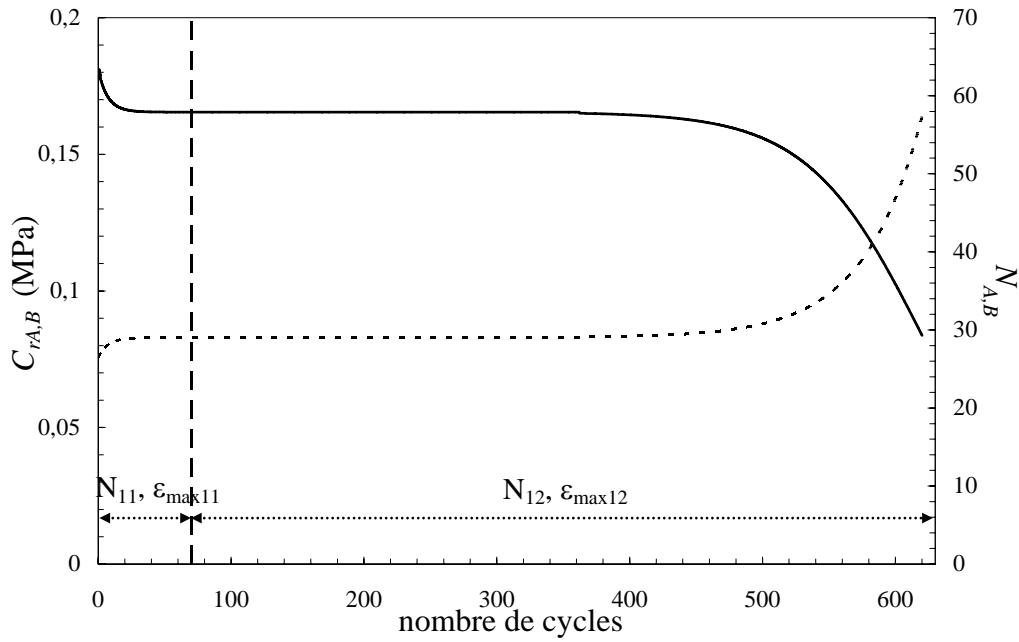
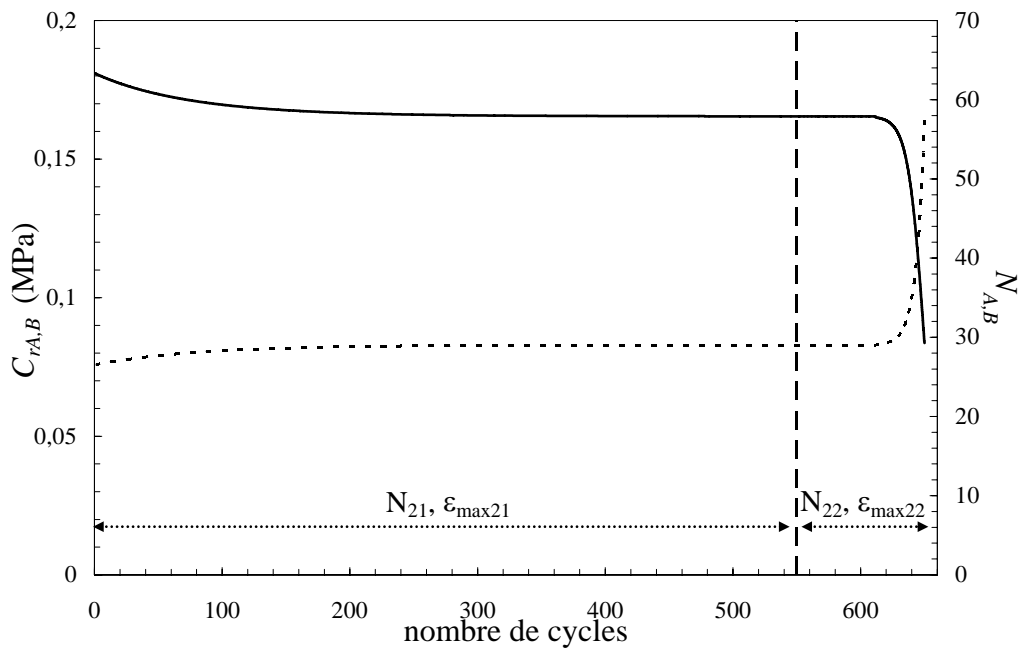


Figure 3.3.8. Deux niveaux de chargement : (a) chargement haut-bas ($\epsilon_{\max 11} > \epsilon_{\max 12}$), (b) chargement bas-haut ($\epsilon_{\max 21} < \epsilon_{\max 22}$).

Dans un premier temps (figure 3.3.8a) un niveau de chargement haut, puis un niveau bas ont été considérés ($\epsilon_{\max 11}$ pour N_{11} cycles et $\epsilon_{\max 12}$ pour N_{12} cycles) et dans un second temps (figure 3.3.8b) les deux niveaux ont été inversés ($\epsilon_{\max 21}$ pour N_{21} cycles et $\epsilon_{\max 22}$ pour N_{22} cycles). Dans les deux cas, la déformation maximale appliquée pour le niveau de chargement haut est prise égal à 1,7 et celle appliquée pour le niveau de chargement bas égale à 1,2. Notez que pour tous les essais, l'effet Mullins a été éliminé en réalisant un étirement préliminaire au-delà de la plus grande déformation atteinte ensuite en fatigue. Pour le chargement haut-bas, $N_{11} = 70$ cycles ont été appliqués dans le premier bloc et $N_{12} = 550$ cycles ont été nécessaires pour atteindre la rupture dans le deuxième bloc. Dans le cas du chargement bas-haut, $N_{21} = 550$ cycles ont été appliqués dans le premier bloc et la rupture s'est produite à $N_{22} = 102$ cycles dans le deuxième bloc. Nous avons remarqué que la déformation rémanente est différente en chargement haut-bas et bas-haut. En effet, les amplitudes de déformation pour l'essai haut-bas sont $\epsilon_{\max 11} = 1,45$ et $\epsilon_{\max 12} = 0,95$, et les amplitudes de déformation pour l'essai bas-haut sont $\epsilon_{\max 21} = 1,04$ et $\epsilon_{\max 22} = 1,5$. Il est clair que l'ordre d'application de la déformation maximale a une influence sur les déformations rémanentes. Une manière naturelle de prédire l'endommagement cumulé par fatigue sous chargement à amplitudes variables est d'utiliser la loi de Miner, une accumulation linéaire de l'endommagement par fatigue.



(a)



(b)

Figure 3.3.9. Evolution durant deux niveaux de chargement de $C_{rA,B} = n_{A,B} k \theta$ (lignes en continues) et $N_{A,B}$ (lignes en pointillés) : (a) chargement haut-bas ($\epsilon_{\max11} > \epsilon_{\max12}$), (b) chargement bas-haut ($\epsilon_{\max21} < \epsilon_{\max22}$).

L'équation (3.2.1) est réécrite sous la forme suivante :

Chapitre 3. Modélisation du comportement en grandes déformations des élastomères

$$D = \sum_{i=1}^{n_b} D_{N_i} = \sum_{i=1}^{n_b} \frac{N_i(\varepsilon_{\max i})}{N_{F_i}(\varepsilon_{\max i})} \quad (3.3.5)$$

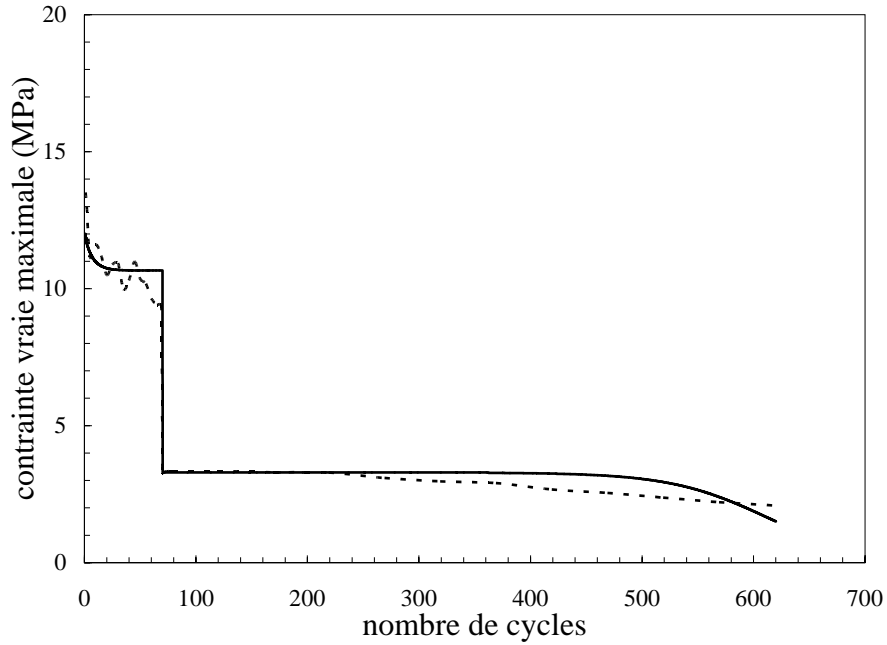
où N_i et N_{F_i} sont respectivement le nombre de cycles actuel et le nombre de cycles à rupture sous le i^{eme} niveau de chargement à amplitude constante à un niveau de déformation maximale $\varepsilon_{\max i}$. Le terme n_b désigne le nombre de différents niveaux de chargement appliqué.

La figure 3.2.8 permet d'extraire par interpolation la durée de vie en fatigue pour les amplitudes de déformations correspondantes. Nous avons trouvé $N_{F11} = 150$ pour $\varepsilon_{\max 11} = 1,45$, $N_{F12} = 2680$ pour $\varepsilon_{\max 21} = 0,95$, $N_{F21} = 1600$ pour $\varepsilon_{\max 21} = 1,04$, et $N_{F22} = 110$ pour $\varepsilon_{\max 22} = 1,5$. Même si les déformations maximales ne sont pas exactement les mêmes pour les deux cas, il peut toutefois être conclu que le chargement bas-haut conduit à une durée de vie en fatigue plus grande que lorsque l'ordre est inversé. Nous pouvons faire remarquer que la loi de Miner est loin d'être un critère de rupture optimal pour ce matériau. La question de la prédiction du nombre de cycles à rupture pour les élastomères fera l'objet du prochain chapitre. Bien que les critères développés dans le prochain chapitre pourraient être utilisés sans grande difficulté comme données d'entrée dans la loi de comportement présentée, nous souhaitons utiliser une approche simplifiée impliquant directement les données expérimentales. En utilisant les données expérimentales de deux niveaux de chargement, la relation entre l'endommagement total D_{N_1, N_2} et le nombre de cycles peut être donnée par :

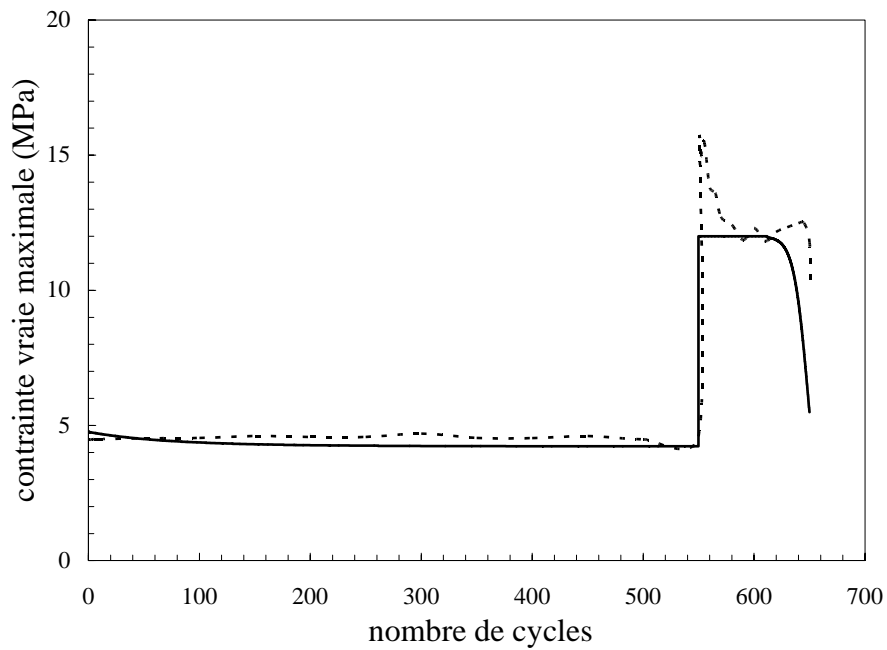
$$D_{N_1, N_2} = D_{N_1} + \Delta D \quad (3.3.6)$$

où $D_{N_1} = N_1/N_{F1}$ est l'endommagement dans le premier bloc, qui agit comme l'endommagement initial lorsque le deuxième bloc commence. À la fin des $N_1 + N_2$ cycles $D_{N_1, N_2} = 1$.

L'évolution des deux paramètres physiques, $C_{rA,B}$ et $N_{A,B}$, affectés par l'altération du réseau durant les deux niveaux de chargement est présentée dans la figure 3.3.9. Il apparaît que la cinétique de l'endommagement dans les deux situations est différente. En particulier, lorsqu'un niveau de chargement bas est appliqué dans le deuxième bloc la période de rupture apparaît progressivement et représente une partie importante de la durée de vie en fatigue. En revanche, lorsqu'un niveau de chargement haut est appliqué dans le deuxième bloc la rupture semble brutale. Ces observations numériques sont conformes à l'expérimental.



(a)



(b)

Figure 3.3.10. Comparaison des résultats de la simulation (lignes en continues) et les données expérimentales (lignes en pointillées) pour la contrainte maximale du SBR pendant deux niveaux de chargement : (a) chargement haut-bas ($\epsilon_{\max 11} > \epsilon_{\max 12}$), (b) chargement bas-haut ($\epsilon_{\max 21} < \epsilon_{\max 22}$).

Chapitre 3. Modélisation du comportement en grandes déformations des élastomères

Dans la figure 3.3.10 les données expérimentales en terme de contrainte maximale sont comparées avec les simulations. Les données expérimentales sont reproduites de manière satisfaisantes par le modèle dans le cas haut-bas. Cependant, lorsque l'on considère le cas bas-haut, le modèle ne parvient pas à reproduire l'adoucissement des contraintes dans le deuxième bloc. Ce résultat peut s'expliquer par la seule dépendance de notre théorie d'altération du réseau au taux d'endommagement. Comme le montre la figure 3.2.7b, l'adoucissement des contraintes a lieu uniquement pour le niveau d'endommagement de moins de 0,2. Lorsque nous procédons à un essai de niveau de chargement bas-haut, l'adoucissement des contraintes survient au début de chaque bloc et comme notre cinétique d'altération du réseau ne dépend pas de l'étirement maximal appliqué, le modèle n'est pas en mesure de simuler l'adoucissement survenant après le premier bloc. Ceci peut s'expliquer par le fait que le processus d'adoucissement ait été consommé par le bloc précédent, et aucun adoucissement n'est ensuite possible.

Afin de présenter un modèle optimal d'altération du réseau, il est proposé d'exprimer le nombre de segments $N_{A,B}$, en fonction du paramètre d'endommagement D , par les conditions suivantes :

$$\begin{aligned} \text{si } \varepsilon_{\max i} > \varepsilon_{\max i+1} \quad N_{A,B} &= \begin{cases} N_0 + \alpha(1 - \exp(-\beta D)) & 0 \leq D \leq D_c \\ \tilde{N}_0 + \gamma \exp(\eta D) & D_c \leq D \leq 1 \end{cases} \\ \text{si } \varepsilon_{\max i} < \varepsilon_{\max i+1} \quad N_{A,B} &= \begin{cases} N_0 + \alpha(1 - \exp(-\beta D)) & 0 \leq D \leq D_{N_i} \leq D_c \\ N_0 + \alpha(1 - \exp(-\beta(D - D_{N_i}))) & D_{N_i} \leq D \leq D_c \\ \tilde{N}_0 + \gamma \exp(\eta(D - D_{N_i})) & D_c \leq D \leq 1 \end{cases} \end{aligned} \quad (3.3.7)$$

où $1 \leq i \leq n_b$. Le terme \tilde{N}_0 est défini dans l'équation (2.4.5).

Notez que la condition (3.3.2) due à la conservation de la masse est encore prise en compte. Dans les deux conditions, l'endommagement à la fin du bloc i est considéré comme l'endommagement initial pour le bloc $i+1$. L'équation (3.3.7) introduit explicitement une dépendance de $N_{A,B}$ (et donc de $C_{rA,B}$) à l'état de déformation maximale au cours de l'histoire du chargement par fatigue. La modification proposée implique que lorsque la déformation maximale du bloc $i+1$ est supérieure à celle du bloc précédent i le réseau vierge est récupéré et remplace le réseau modifié obtenu à la fin du bloc i . La figure 2.4.19 montre l'amélioration des capacités du modèle pour capturer l'adoucissement des contraintes des chargements multi-niveaux.

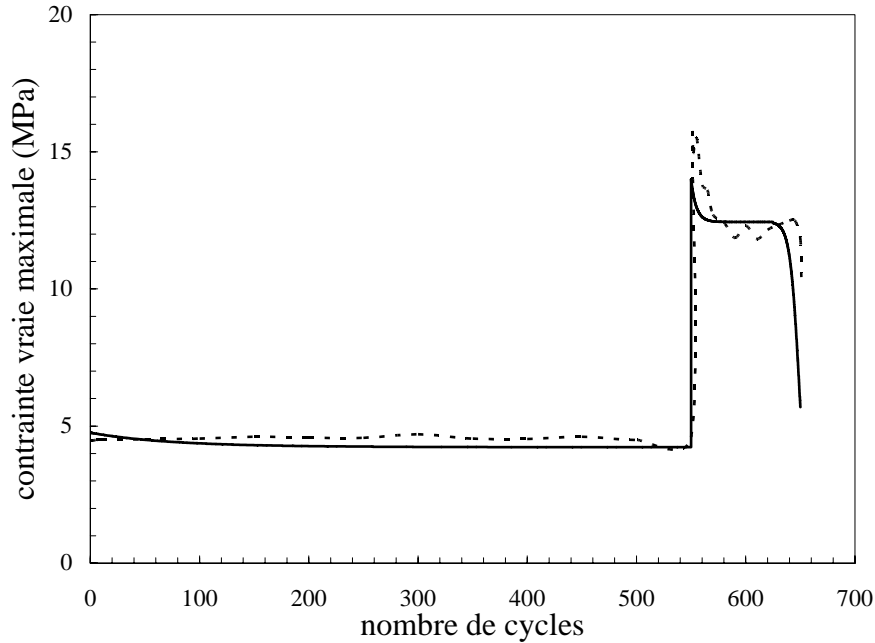


Figure 2.4.19. Résultat de la simulation (traits pleins) du modèle amélioré par rapport aux données expérimentales (ligne pointillée) pour la contrainte maximale du SBR pendant un chargement bas-haut ($\epsilon_{\max 21} < \epsilon_{\max 22}$).

4. Remarques et conclusions partielles

Le but de ce chapitre était de proposer une nouvelle théorie d'altération du réseau pour capturer la réponse dépendante du temps et en grandes déformations des élastomères soumis à des chargements en fatigue et ce, jusqu'à rupture.

Le comportement mécanique sous chargement cyclique d'un matériau SBR a été étudié. Les résultats expérimentaux ont montré que la réponse mécanique du matériau est non seulement fortement non linéaire, mais se caractérise aussi par la dissipation d'énergie et la détérioration des propriétés mécaniques sous chargement cyclique. Nous avons montré que l'évolution de la contrainte maximale normalisée, sous des essais de chargement-déchargement, ne dépend que du taux d'endommagement supporté par l'échantillon. Le modèle à base physique visco-hyperélastique de Bergstrom et Boyce (1998) a été revisité afin de capturer l'évolution du comportement sous chargement cyclique du SBR. Le comportement du matériau est décrit par deux résistances agissant en parallèle (une résistance tenant compte de l'état d'équilibre et une autre pour traiter de l'écart dépendant du temps à l'équilibre) dans lesquelles une cinétique

Chapitre 3. Modélisation du comportement en grandes déformations des élastomères

des paramètres physiques a été proposée. Les observations expérimentales sous chargement cyclique ont été comparées aux résultats de nos simulations et le modèle proposé a montré sa capacité à prédire l'évolution du comportement mécanique.

Les équations constitutives ont été présentées dans leur forme la plus générale dans le but d'être applicable à tous matériaux élastomères visco-hyperélastiques. En outre, la théorie est assez simple à implanter dans un code de calculs par éléments finis. En plus des trois paramètres de la loi de comportement vierge, seulement cinq paramètres d'endommagement supplémentaires sont nécessaires pour prédire la réponse mécanique des matériaux élastomères endommagés par des chargements en fatigue et ce, jusqu'à la rupture finale.

Toutefois, plusieurs améliorations du modèle sont encore à prévoir. En effet, le taux de renforts ayant inévitablement un effet sur le niveau d'adoucissement, devrait être pris en compte explicitement dans la formulation du modèle. On peut noter que la compréhension du couplage existant entre microstructure et altération du réseau lors d'un chargement en fatigue reste aussi un verrou. Par ailleurs, la condition d'incompressibilité supposée dans la construction du modèle n'est manifestement pas respectée en raison des mécanismes de décohésions (cavitation, craquelage et décohésion charges-matrice) survenant à la dernière partie de l'histoire du chargement en fatigue. La théorie présentée ici est limitée aux processus isotherme. Cependant, les effets d'auto-échauffement pourraient jouer un rôle important au moins pour la réponse de la fatigue en grand nombre de cycles et devrait être intégrés dans le modèle.

Bien que très prometteuse l'approche développée dans ce chapitre ne permet pas de prédire la durée de vie en fatigue, puisque le nombre de cycles à rupture est une donnée d'entrée. Afin de palier à cela nous nous proposons dans le prochain chapitre d'étudier un critère de durée de vie en fatigue.

Chapitre 4. Prédiction de la durée de vie en fatigue multiaxiale des polymères

1. Introduction

Dans la troisième partie du chapitre 1, nous avons rappelé de manière non exhaustive quelques approches mises en œuvre pour traiter les problèmes liés à la fatigue des élastomères. En particulier, l'enjeu essentiel pour l'ingénieur est de pouvoir disposer d'outils permettant de dimensionner les composants structuraux à base élastomère et de pouvoir lui associer une durée de vie, en fonction des conditions réelles d'utilisation. En dépit d'applications industrielles relativement étendues, il faut reconnaître que de nombreux aspects de la rupture par fatigue des élastomères sont encore mal compris ou mal diffusés du fait même d'enjeux économiques inhérents à l'utilisation de ces matériaux.

Sous chargement cyclique, comme pour de nombreux matériaux, les propriétés mécaniques des élastomères se dégradent. Dès lors, la compréhension des mécanismes d'endommagement induits par des sollicitations de fatigue constitue une étape importante dans le processus d'élaborations de critères de durée de vie.

Ce présent chapitre se veut une contribution à l'étude de la fatigue d'élastomères sous chargements multiaxiaux. Une campagne importante d'essais comportant des chargements de traction uniaxiale, de torsion ou combinés sous amplitudes constantes ou variables a été mise en œuvre. Après avoir étudié quelques critères bien établis et leur validité au regard de nos résultats expérimentaux, nous avons, dans le cadre de la mécanique de l'endommagement continu, proposé un outil en capacité de prédire la durée de vie en fatigue d'élastomères (non cristallisables) soumis à des chargements multiaxiaux.

La deuxième partie de ce chapitre est consacrée à l'étude expérimentale et détaille les essais de fatigue réalisés sur un élastomère type (butadiène-styrène - SBR). Nous étudions et discutons la validité de quelques critères relevés dans la littérature dans la troisième partie. Dans une quatrième partie, nous présentons le modèle (écrit en formulation tridimensionnelle), basé sur la mécanique de l'endommagement continu, que nous avons développé. Les différentes étapes du calcul sont détaillées. Nous présentons également la

méthode d'identification des paramètres du modèle et analysons sa robustesse en terme de prédiction au regard de nos résultats expérimentaux. Dans un deuxième temps, on propose une forme généralisée du modèle, dans le but de prendre en compte les effets de chargements en intégrant l'influence de la déformation moyenne. Le nouveau modèle est ensuite validé en comparant ses prédictions avec les données expérimentales correspondant aux essais en chargement multiaxial à amplitude constante et variable.

2. Programme expérimentale et observations

2.1. Matériau et moyen d'essais

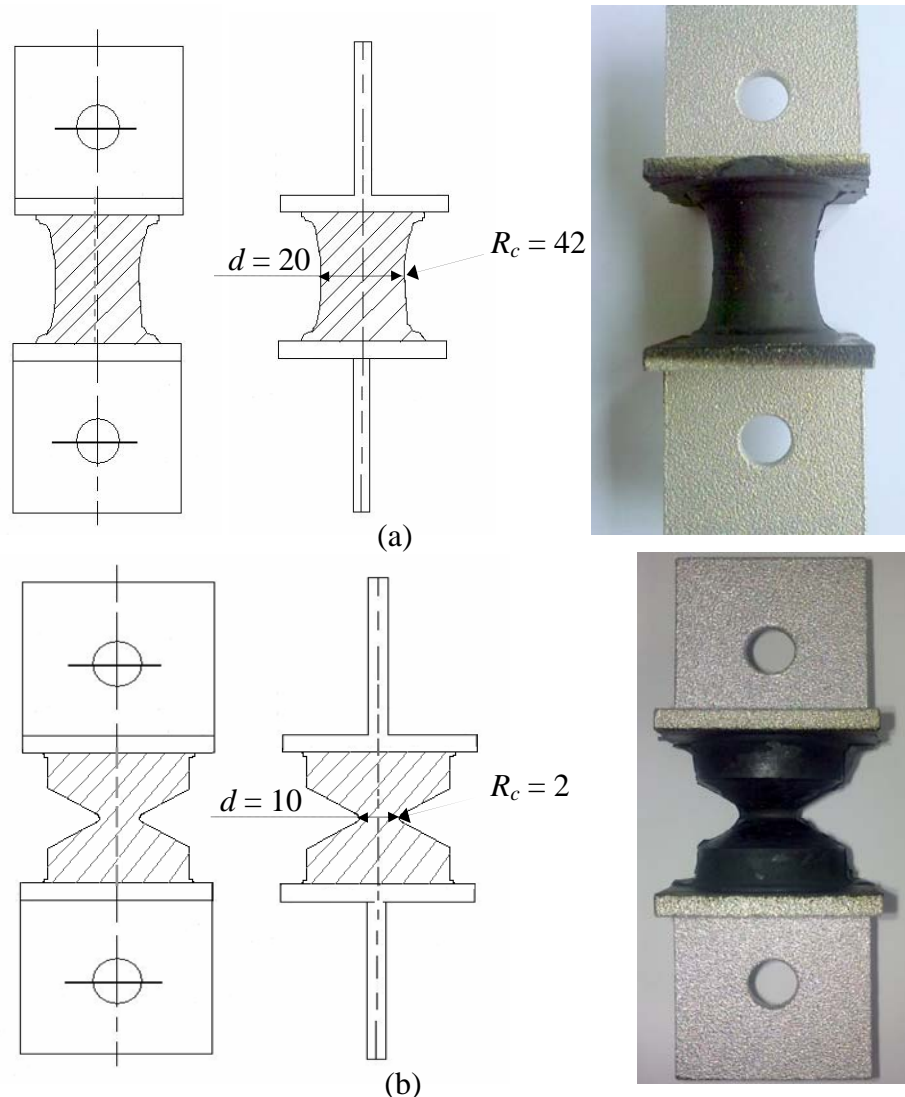


Figure 4.2.1. Géométries des échantillons utilisées pour les essais de traction et torsion (les dimensions sont en mm) : (a) AE42, (b) AE2.

Le matériau fourni par Trelleborg et utilisé pour l'étude en fatigue multiaxiale est celui présenté dans le chapitre 3. C'est un SBR chargé avec 34 pce de noir de carbone, dont la formulation est donnée dans le tableau 3.2.1. Contrairement à l'étude précédente, deux types de géométries des échantillons ont été considérés (figure 4.2.1). Les échantillons sont axisymétriques et présentent des rayons de courbure, $R_c = 42$ mm pour l'AE42 et $R_c = 2$ mm pour l'AE2, permettant d'initier des fissures de fatigue dans la section minimale ($d = 20$ mm pour l'AE42 et $d = 10$ mm pour l'AE2 au centre de l'échantillon).

Les essais de fatigue ont été effectués sur une machine d'essais de traction - torsion Instron-8874 hydraulique équipée de mors hydrauliques (figure 4.2.2), à température ambiante pour des fréquences de 3 à 5 Hz. Le chargement cyclique, effectué en contrôle de déplacement et/ou d'angle, suit une fonction sinusoïdale. Les amplitudes ont été sélectionnées afin de couvrir un large éventail de durée de vie par fatigue. Les données du déplacement et de la force en fonction du temps sont enregistrées en temps réel via un logiciel permettant également le pilotage de l'essai.



Figure 4.2.2. Machine de fatigue en traction-torsion Instron-8874.

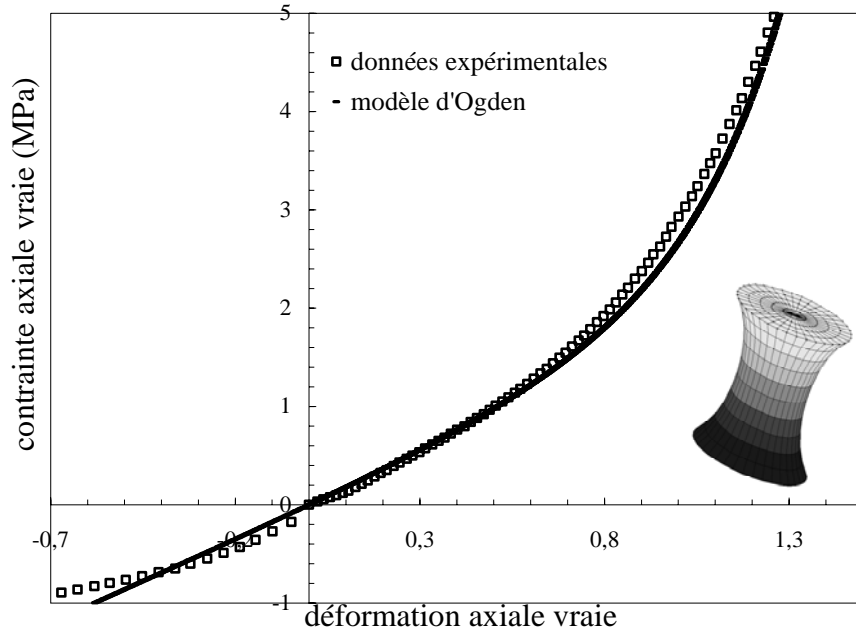
La densité d'énergie de déformation d'Ogden a été utilisée pour reproduire la réponse constitutive intrinsèque du matériau SBR déterminée expérimentalement au cours de chargement monotone (traction-compression et torsion). La formulation générale de la densité d'énergie de déformation d'Ogden est exprimée comme suit (Ogden, 1972) :

$$W = \sum_{i=1}^n \frac{\mu_i}{\alpha_i} (\lambda_1^{\alpha_i} + \lambda_2^{\alpha_i} + \lambda_3^{\alpha_i} - 3) + \frac{9}{2} K (J^{1/3} - 1)^2 \quad (4.2.1)$$

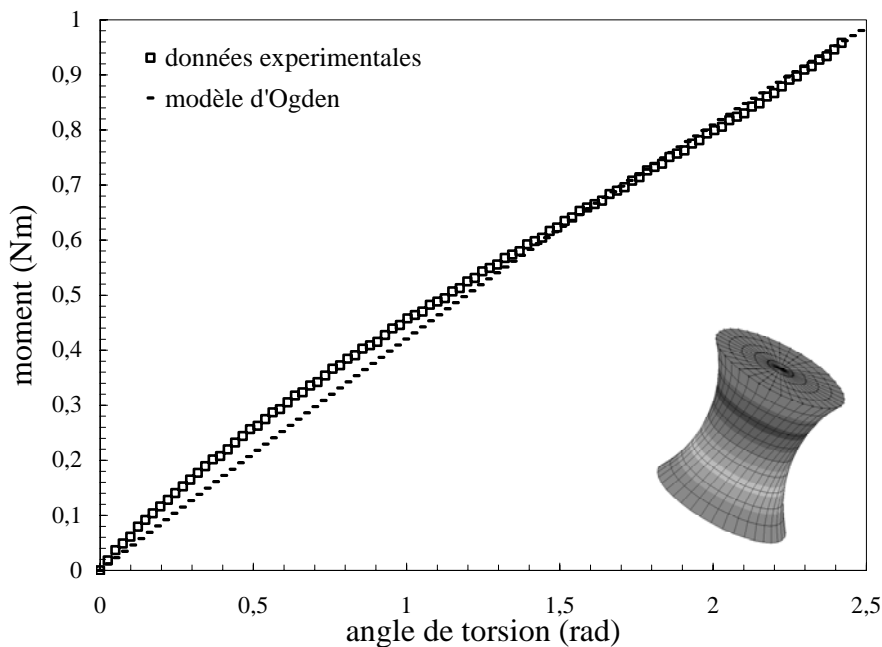
où μ_i et α_i sont des paramètres matériaux dépendant de la température. Le terme

$\mu = \sum_{i=1}^n \mu_i$ est le module de cisaillement, K est le module de compressibilité et $J = \lambda_1 \lambda_2 \lambda_3$

est le Jacobien (égal à 1 pour les matériaux incompressibles).



(a)



(b)

Figure 4.2.3. Comparaison entre les données expérimentales et la simulation numérique pour l'AE42 pour : (a) un chargement en traction-compression et (b) un chargement en torsion.

Comme dans le chapitre précédent, dans notre analyse du comportement du matériau, l'effet Mullins (adoucissement au premier cycle) a été éliminé. Dans ce but, on fait d'abord subir à l'échantillon un chargement au moins supérieur au chargement maximal appliqué ultérieurement pour les essais de fatigue puis une décharge jusqu'à contrainte nulle. Cela permet ainsi d'éliminer l'effet Mullins en considérant le matériau comme vierge après cette étape. Les paramètres de la loi d'Ogden sont ainsi identifiés sur les données expérimentales issues du deuxième chargement.

Comme illustré par la figure 4.2.3 il est nécessaire d'utiliser un modèle d'Ogden de deuxième ordre pour décrire la réponse mécanique aussi bien en traction-compression qu'en torsion. La figure montre clairement un accord satisfaisant entre les données expérimentales et le modèle en terme de réponse globale. Les valeurs optimales des paramètres matériaux sont données dans le tableau 4.2.1.

μ_1 (MPa)	μ_2 (MPa)	α_1	α_2
5,25	$1,52 \times 10^{-2}$	$2,14 \times 10^{-1}$	4,06

Tableau 4.2.1. Paramètres de la loi d'Ogden du second ordre.

2.2. Description des essais de fatigue et résultats

2.2.1. Conditions expérimentales

Des essais à amplitudes constantes et variables ont été réalisés sur les deux géométries. La figure 4.2.4 présente schématiquement les trajets de chargement retenus dans l'étude où θ représente l'angle de torsion et δ représente l'allongement axial. Les essais à amplitudes constantes sont ceux notés de A à F et correspondent à des chargements de traction, de torsion ou de traction-torsion combinés. L'essai A est un essai de traction pure avec un déplacement axial minimum de zéro ($R = 0$). L'essai B est un essai de torsion pure avec un angle de torsion minimum de zéro ($R = 0$). L'essai C est un chemin de chargement proportionnel dans lequel le déplacement axial et l'angle de torsion en phase démarre à partir de zéro ($R = 0$). Le chemin D est un essai en compression partant de zéro jusqu'à la rupture par fatigue effectué sur les éprouvettes AE42 ($R = 0$). Les chemins E et F sont, respectivement, des essais de fatigue en torsion et en traction avec un minimum d'amplitude variable ($R \neq 0$).

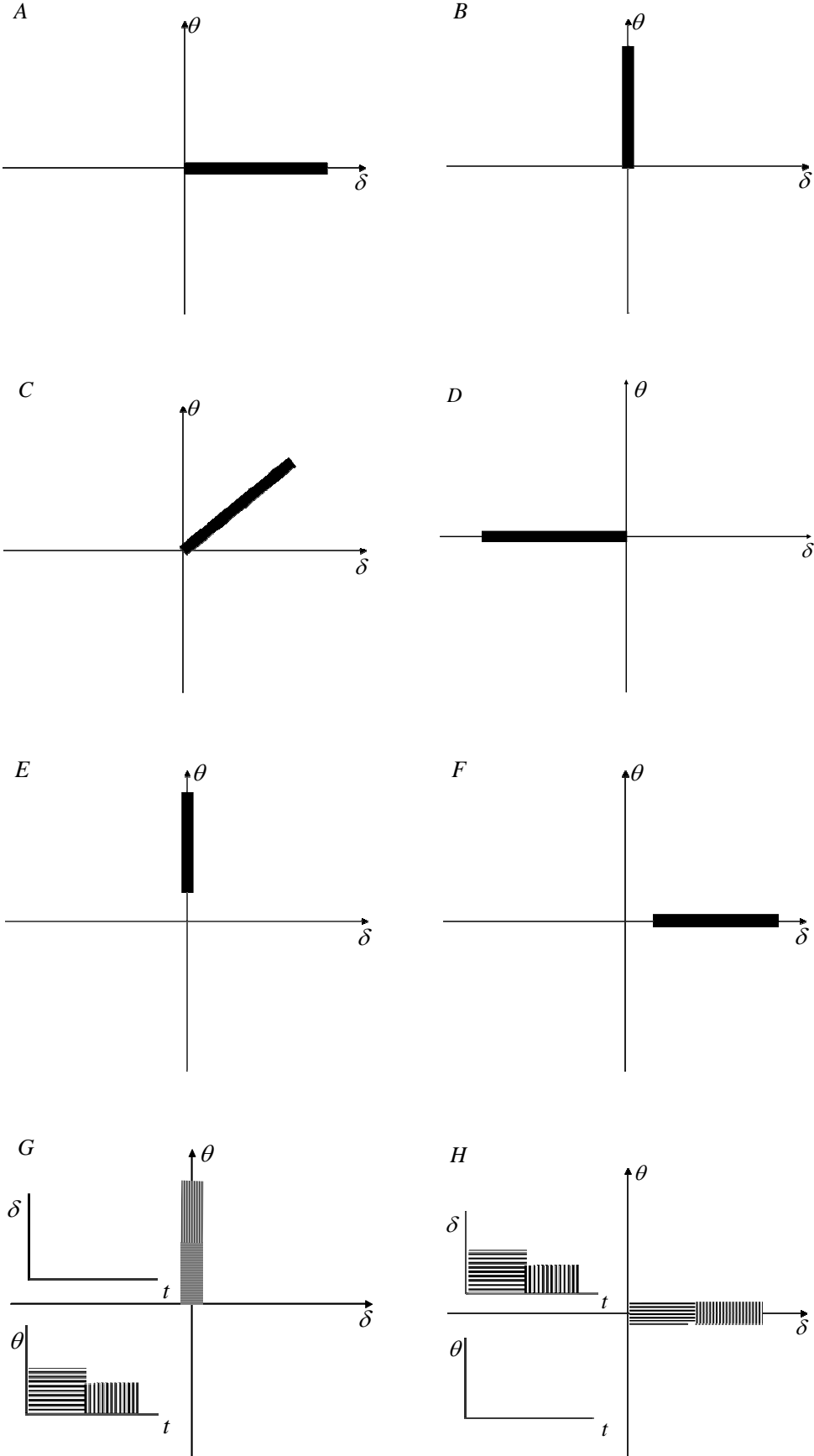


Figure 4.2.4. Description schématique des différents chemins de chargement.

Les essais au signal d'amplitudes variables sont les essais G et H consistant en une combinaison de chargements à amplitudes constantes : deux blocs avec différents niveaux de déplacement maximum pour l'essai de chargement axial H et différents niveaux d'angle pour l'essai de chargement en torsion G.

Les tableaux 4.2.2 à 4.2.4 regroupent les conditions expérimentales ainsi que le nombre de cycles à rupture par fatigue pour les chemins de chargement A, B, C et D, respectivement, pour les éprouvettes AE42 et AE2. Ceux concernant les trajets E et F sont décrits dans le tableau 4.2.6, les essais G et H étant retranscrits, respectivement, dans les tableaux 4.2.3 et 4.2.5. Pour les essais à rapport de charge non nul ($R \neq 0$) deux procédures ont été suivies :

- La première consiste à garder une amplitude constante tout en faisant varier la valeur minimale du déplacement imposé (essais E1 à E3 et F1 à F3) ce qui conduit à une variation de la valeur maximale.
- Dans la seconde la position maximale est maintenue constante et l'on fait varier la position minimale (essais E4 à E6 et F4 à F7) ce qui entraîne une variation de l'amplitude.

Le critère d'arrêt généralement utilisé pour mesurer la durée de vie des caoutchoucs est le nombre de cycles nécessaires à l'apparition d'une fissure de 1 mm de longueur. Un deuxième critère repose sur la mesure de la rigidité (explicitement la charge appliquée), qui ne doit pas descendre en dessous d'une valeur donnée. Dans cette étude, nous avons opté pour le premier critère.

Code du test	ω (Hz)	δ_{max} (mm)	δ_{min} (mm)	θ_{max} (°)	θ_{min} (°)	N_f
AE42 A	5	5.6	0.0	0.0	0.0	3000000
AE42 A	5	7	0.0	0.0	0.0	500000
AE42 A	5	8.4	0.0	0.0	0.0	160000
AE42 A	5	9.8	0.0	0.0	0.0	24000
AE42 A	5	11.2	0.0	0.0	0.0	19200
AE42 A	5	12.6	0.0	0.0	0.0	12564
AE42 A	5	14	0.0	0.0	0.0	6000
AE42 A	5	15.4	0.0	0.0	0.0	4300
AE42 A	5	16.8	0.0	0.0	0.0	3050
AE42 A	5	18.2	0.0	0.0	0.0	2200
AE42 A	5	19.6	0.0	0.0	0.0	1800
AE42 A	5	21	0.0	0.0	0.0	1350
AE42 A	5	22.4	0.0	0.0	0.0	1050
AE42 A	5	23.8	0.0	0.0	0.0	900

AE42 A	5	25.2	0.0	0.0	0.0	800
AE42 A	5	26.6	0.0	0.0	0.0	650
AE42 A	5	28	0.0	0.0	0.0	560
AE42 B	3	0.0	0.0	100	0.0	1100000
AE42 B	3	0.0	0.0	105	0.0	1000000
AE42 B	3	0.0	0.0	110	0.0	680000
AE42 B	3	0.0	0.0	115	0.0	400000
AE42 B	3	0.0	0.0	120	0.0	280000
AE42 B	3	0.0	0.0	125	0.0	200000
AE42 B	3	0.0	0.0	130	0.0	130000
AE42 B	3	0.0	0.0	135	0.0	100000
AE42 B	3	0.0	0.0	140	0.0	79000
AE42 B	3	0.0	0.0	145	0.0	68000
AE42 C	5	5.6	0.0	50	0.0	1300000
AE42 C	5	8.4	0.0	50	0.0	60000
AE42 C	5	9.8	0.0	50	0.0	15000
AE42 C	5	14	0.0	50	0.0	4200
AE42 C	5	16.8	0.0	50	0.0	1776
AE42 C	5	19.6	0.0	50	0.0	1200
AE42 C	5	8.4	0.0	50	0.0	60000
AE42 C	5	5.6	0.0	100	0.0	400000
AE42 C	5	9.8	0.0	100	0.0	10000
AE42 C	5	14	0.0	100	0.0	3080
AE42 C	5	16.8	0.0	100	0.0	1413
AE42 C	5	19.6	0.0	100	0.0	850
AE42 C	5	8.4	0.0	100	0.0	500
AE42 D	5	0.0	-9.8	0.0	0.0	300000
AE42 D	5	0.0	-11.2	0.0	0.0	55500
AE42 D	5	0.0	-12.6	0.0	0.0	15333
AE42 D	5	0.0	-14	0.0	0.0	10000
AE42 D	5	0.0	-15.4	0.0	0.0	5900
AE42 D	5	0.0	-16.8	0.0	0.0	2932
AE42 D	5	0.0	-18.2	0.0	0.0	1360
AE42 D	5	0.0	-19.6	0.0	0.0	600

Tableau 4.2.2. Durée de vie en fatigue des essais à amplitude constante pour l'éprouvette

AE42.

				Bloc 1			Bloc 2		
Code du test				ω_1 (Hz)	δ_{max} (mm)	N_1	ω_2 (Hz)	δ_{max} (mm)	N_2
AE42	H1	LH	5	7		200000	5	11.2	11000
AE42	H1	LH	5	7		200000	5	8.4	82500
AE42	H2	HL	5	8.4		80000	5	7	118470
AE42	H2	LH	5	8.4		80000	5	11.2	10011
AE42	H2	LH	5	8.4		80000	5	14	3760
AE42	H3	HL	5	14		3250	5	7	100010
AE42	H3	HL	5	14		3250	5	11.2	150213
AE42	H3	LH	5	14		3250	5	16.8	950
AE42	H3	LH	5	14		3250	5	19.6	550

AE42	H3	LH	5	14	3250	5	22.4	450
AE42	H4	HL	5	16.8	1525	5	11.2	5000
AE42	H4	HL	5	16.8	1525	5	14	1070
AE42	H4	LH	5	16.8	1525	5	22.4	290
AE42	H5	HL	5	19.6	800	5	14	2875
AE42	H6	HL	5	22.4	525	5	11.2	13103
AE42	H6	HL	5	22.4	525	5	15	2140
AE42	H6	HL	5	22.4	525	5	16.8	1300

Tableau 4.2.3. Durée de vie en fatigue des essais d'amplitude variable ($N_f = N_1 + N_2$).

Code du test		ω (Hz)	δ_{max} (mm)	δ_{min} (mm)	θ_{max} (°)	θ_{min} (°)	N_f
AE2	A	5	2.25	0.0	0.0	0.0	760000
AE2	A	5	2.81	0.0	0.0	0.0	402500
AE2	A	5	3.38	0.0	0.0	0.0	110500
AE2	A	5	4.5	0.0	0.0	0.0	13000
AE2	A	5	5.63	0.0	0.0	0.0	5000
AE2	A	5	6.75	0.0	0.0	0.0	1800
AE2	A	5	7.88	0.0	0.0	0.0	600
AE2	A	5	9.00	0.0	0.0	0.0	200
AE2	B	3	0.0	0.0	40	0.0	1000000
AE2	B	3	0.0	0.0	45	0.0	600000
AE2	B	3	0.0	0.0	50	0.0	413510
AE2	B	3	0.0	0.0	55	0.0	200000
AE2	B	3	0.0	0.0	60	0.0	165654
AE2	B	3	0.0	0.0	65	0.0	60000
AE2	B	3	0.0	0.0	70	0.0	32000
AE2	B	3	0.0	0.0	75	0.0	20000
AE2	B	3	0.0	0.0	80	0.0	12000
AE2	B	3	0.0	0.0	85	0.0	9000
AE2	B	3	0.0	0.0	90	0.0	8000
AE2	B	3	0.0	0.0	95	0.0	5500
AE2	B	3	0.0	0.0	100	0.0	3201
AE2	C	5	2.25	0.0	40	0.0	150000
AE2	C	5	3.38	0.0	40	0.0	33725
AE2	C	5	4.5	0.0	40	0.0	3750
AE2	C	5	5.63	0.0	40	0.0	1385
AE2	C	5	2.25	0.0	60	0.0	22365
AE2	C	5	3.38	0.0	60	0.0	8000
AE2	C	5	4.5	0.0	60	0.0	3036
AE2	C	5	5.63	0.0	60	0.0	1000
AE2	C	5	2.25	0.0	80	0.0	22365
AE2	C	5	3.375	0.0	80	0.0	8000
AE2	C	5	4.5	0.0	80	0.0	3036
AE2	C	5	5.63	0.0	80	0.0	1000

Tableau 4.2.4. Durée de vie en fatigue des essais à amplitude constante pour l'éprouvette

AE2.

			Bloc 1			Bloc 2		
Code du test	ω_1 (Hz)	θ_{max} (°)	N_1	ω_2 (Hz)	θ_{max} (°)	N_2		
AE2 G 1 LH	5	40	380000	5	60	95654		
AE2 G 1 LH	5	40	380000	5	80	13000		
AE2 G 2 HL	5	60	48500	5	40	318855		
AE2 G 2 LH	5	60	48500	5	50	100394		
AE2 G 2 LH	5	60	48500	5	80	9100		
AE2 G 3 HL	5	60	48500	5	100	1908		
AE2 G 3 HL	5	80	3250	5	40	511444		
AE2 G 3 LH	5	80	3250	5	60	40960		
AE2 G 3 LH	5	80	3250	5	100	928		
AE2 G 3 LH	5	100	2900	5	60	46467		
AE2 G 3 LH	5	100	2900	5	80	10878		

			Bloc 1			Bloc 2		
Code du test	ω_1 (Hz)	δ_{max} (mm)	N_1	ω_2 (Hz)	δ_{max} (mm)	N_2		
AE2 H 4 LH	5	2.25	380000	5	1.15	30000		
AE2 H 5 HL	5	2.25	380000	5	1.2	13725		
AE2 H 6 HL	5	2.25	380000	5	1.25	4575		
AE2 H 6 HL	5	3.38	50000	5	1.1	600000		
AE2 H 6 HL	5	3.38	50000	5	1.2	5000		
AE2 H 6 HL	5	3.38	50000	5	1.25	1771		
AE2 H 6 HL	5	3.38	50000	5	1.3	775		
AE2 H 6 HL	5	4.5	7000	5	1.1	760454		
AE2 H 6 HL	5	4.5	7000	5	1.2	26494		
AE2 H 6 HL	5	4.5	7000	5	1.25	1333		
AE2 H 6 HL	5	4.5	7000	5	1.3	613		
AE2 H 6 HL	5	6.75	850	5	1.15	24901		
AE2 H 6 HL	5	6.75	850	5	1.2	7540		
AE2 H 6 HL	5	6.75	850	5	1.25	1190		

Tableau 4.2.5. Durée de vie en fatigue des essais à amplitude variable ($N_f=N_1 + N_2$).

Code du test	ω (Hz)	δ_{max} (mm)	δ_{min} (mm)	θ_{max} (°)	θ_{min} (°)	R	N
AE2 F 1	5	2.45	0.2	0	0	12.25	941596
AE2 F 1	5	2.65	0.28	0	0	6.63	710654
AE2 F 1	5	2.85	0.32	0	0	4.75	615562
AE2 F 1	5	3.05	0.36	0	0	3.81	370123
AE2 F 1	5	3.25	0.4	0	0	3.25	250116
AE2 F 1	5	3.45	0.44	0	0	2.88	190120
AE2 F 1	5	3.65	0.48	0	0	2.60	160150
AE2 F 1	5	3.85	0.52	0	0	2.40	128250
AE2 F 1	5	4.05	0.57	0	0	2.25	110000
AE2 F 1	5	4.25	0.60	0	0	2.125	100000
AE2 F 2	5	3.73	0.35	0	0	10.66	46422
AE2 F 2	5	4.08	0.7	0	0	5.83	35200
AE2 F 2	5	4.43	1.05	0	0	4.22	29023
AE2 F 2	5	4.78	1.4	0	0	3.41	26120
AE2 F 2	5	5.13	1.75	0	0	2.93	24048
AE2 F 2	5	5.48	2.1	0	0	2.61	23700
AE2 F 2	5	5.83	2.45	0	0	2.38	22752

AE2 F 2	5	6.18	2.8	0	0	2.21	21900
AE2 F 2	5	6.53	3.15	0	0	2.07	20800
AE2 F 3	5	6.18	0.55	0	0	11.24	2512
AE2 F 3	5	6.73	1.1	0	0	6.12	1511
AE2 F 3	5	7.28	1.65	0	0	4.41	1450
AE2 F 3	5	7.83	2.2	0	0	3.56	1405
AE2 F 3	5	8.38	2.75	0	0	3.05	1390
AE2 F 3	5	8.93	3.3	0	0	2.71	1367
AE2 F 3	5	9.48	3.85	0	0	2.46	1250
AE2 F 3	5	10.03	4.4	0	0	2.28	1050
AE2 F 3	5	10.52	4.95	0	0	2.14	1000
AE2 F 3	5	11.13	5.5	0	0	2.02	950
AE2 F 3	5	11.68	6.05	0	0	1.93	901
AE2 F 4	5	6.75	0.6	0	0	11.25	934
AE2 F 4	5	6.75	1.2	0	0	5.63	1735
AE2 F 4	5	6.75	1.8	0	0	3.75	3647
AE2 F 4	5	6.75	2.4	0	0	2.81	4141
AE2 F 4	5	6.75	3.0	0	0	2.25	8422
AE2 F 4	5	6.75	3.6	0	0	1.88	18284
AE2 F 4	5	6.75	4.2	0	0	1.61	40973
AE2 F 5	5	5.63	0.55	0	0	10.23	3444
AE2 F 5	5	5.63	1.1	0	0	5.11	4414
AE2 F 5	5	5.63	2.2	0	0	2.56	11887
AE2 F 5	5	5.63	2.7	0	0	2.08	35484
AE2 F 5	5	5.63	3.2	0	0	1.76	79455
AE2 F 6	5	4.5	0.5	0	0	9	13321
AE2 F 6	5	4.5	1	0	0	4.5	30501
AE2 F 6	5	4.5	1.5	0	0	3	43626
AE2 F 6	5	4.5	2	0	0	2.25	100426
AE2 F 6	5	4.5	2.5	0	0	1.8	209037
AE2 F 7	5	3.8	0.35	0	0	10.86	80000
AE2 F 7	5	3.8	0.7	0	0	5.43	100200
AE2 F 7	5	3.8	1.05	0	0	3.62	120000
AE2 F 7	5	3.8	1.4	0	0	2.71	206713
AE2 F 7	5	3.8	1.75	0	0	2.17	363500
AE2 E 1	5	0	0	55	5	11	392612
AE2 E 1	5	0	0	60	10	6	300000
AE2 E 1	5	0	0	65	15	4.33	255000
AE2 E 1	5	0	0	70	20	3.5	180000
AE2 E 1	5	0	0	75	25	3	110000
AE2 E 1	5	0	0	80	30	2.67	89200
AE2 E 1	5	0	0	85	35	2.43	78900
AE2 E 1	5	0	0	90	40	2.25	69900
AE2 E 1	5	0	0	95	45	2.11	58960
AE2 E 1	5	0	0	100	50	2	49586
AE2 E 2	5	0	0	77	7	11	49565
AE2 E 2	5	0	0	84	14	6	22749
AE2 E 2	5	0	0	91	21	4.33	19000
AE2 E 2	5	0	0	98	28	3.5	16561
AE2 E 2	5	0	0	105	35	3	11000

AE2 E 2	5	0	0	112	42	2.67	8436
AE2 E 2	5	0	0	119	49	2.43	7500
AE2 E 2	5	0	0	126	56	2.25	5579
AE2 E 2	5	0	0	133	63	2.11	5000
AE2 E 3	5	0	0	105	5	21	6000
AE2 E 3	5	0	0	110	10	11	3415
AE2 E 3	5	0	0	115	15	7.67	3000
AE2 E 3	5	0	0	120	20	6	2800
AE2 E 3	5	0	0	125	25	5	2400
AE2 E 3	5	0	0	130	30	4.33	2315
AE2 E 3	5	0	0	135	35	3.86	2100
AE2 E 3	5	0	0	140	40	3.5	2015
AE2 E 3	5	0	0	145	45	3.22	1900
AE2 E 4	5	0	0	100	20	5	6811
AE2 E 4	5	0	0	100	30	3.33	8010
AE2 E 4	5	0	0	100	40	2.5	16210
AE2 E 4	5	0	0	100	50	2	22664
AE2 E 4	5	0	0	100	60	1.67	51000
AE2 E 4	5	0	0	100	70	1.43	70556
AE2 E 5	5	0	0	80	10	8	25411
AE2 E 5	5	0	0	80	20	4	32594
AE2 E 5	5	0	0	80	30	2.67	47715
AE2 E 5	5	0	0	80	40	2	120580
AE2 E 5	5	0	0	80	50	1.6	278700
AE2 E 6	5	0	0	70	10	7	64503
AE2 E 6	5	0	0	70	20	3.5	108875
AE2 E 6	5	0	0	70	30	2.33	220000
AE2 E 6	5	0	0	70	40	1.75	725618

Tableau 4.2.6. Durée de vie en fatigue avec effet de R pour les chemins de chargement E et

F.

2.2.2. Plan de propagation des fissures

Il est important de souligner que les plans de propagation des fissures dépendent évidemment du type de chargement appliqué. Le critère basé sur la densité d'énergie de fissuration permet la prédiction de l'orientation de ce plan (Mars 2001; 2002). La figure 4.2.5 montre des exemples photographiques et schématiques de fissures obtenues pour différents chemins de chargement et pour les deux types d'éprouvettes. Les figures 4.2.5a et 4.2.5d montrent une fissure inclinée résultant d'un essai de torsion, respectivement, pour les géométries AE42 et AE2. Pour les essais de fatigue en traction, une fissure perpendiculaire à la direction de chargement est généralement observée dans tous les cas comme l'illustrent à titre d'exemple les figures 4.2.5b et 4.2.5e. Enfin, concernant les essais de compression, la fissure semble

s'initier au cœur de l'éprouvette pour se propager vers l'extérieur dans la direction du chargement comme la figure 4.2.5c le montre.

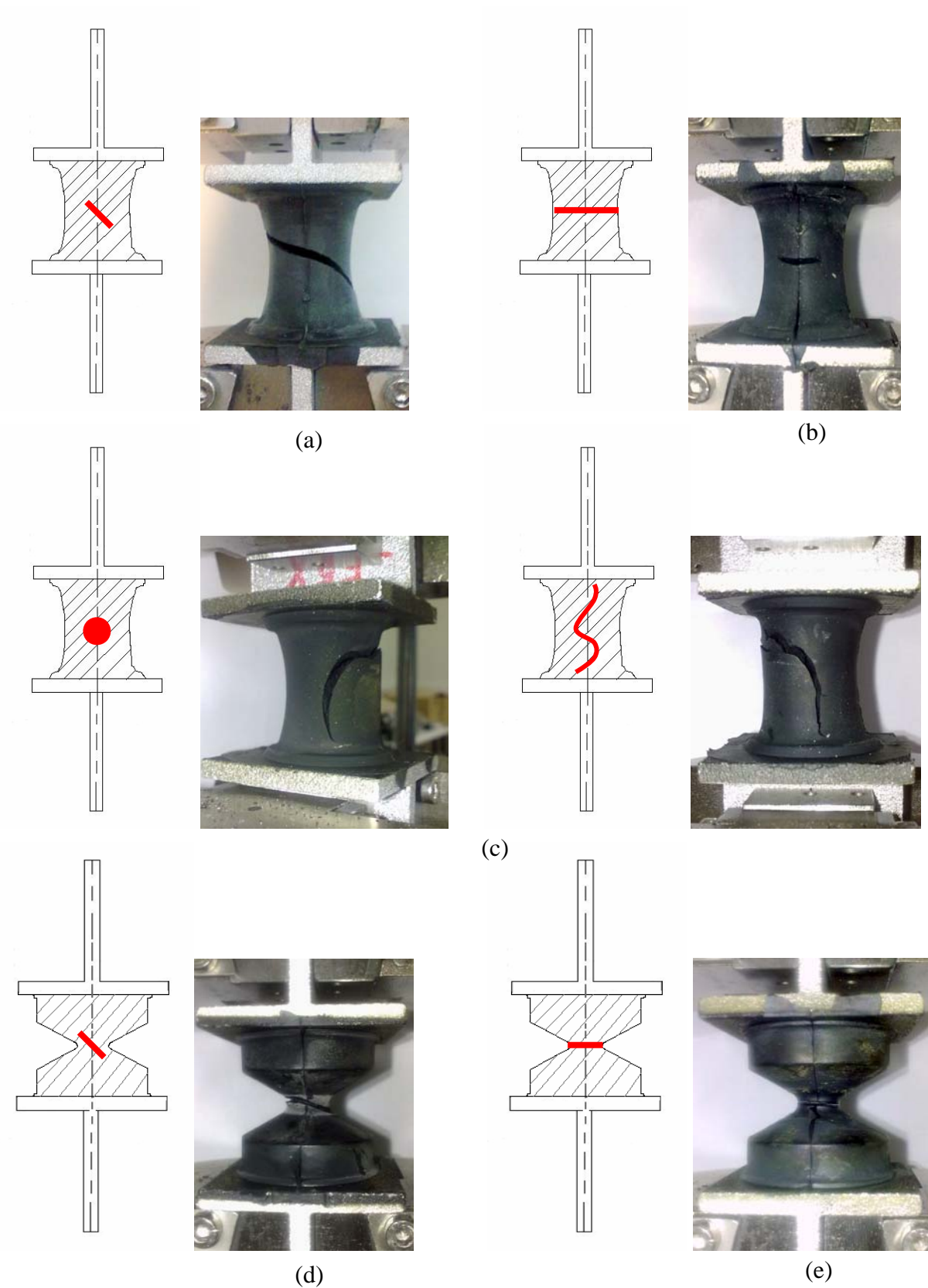
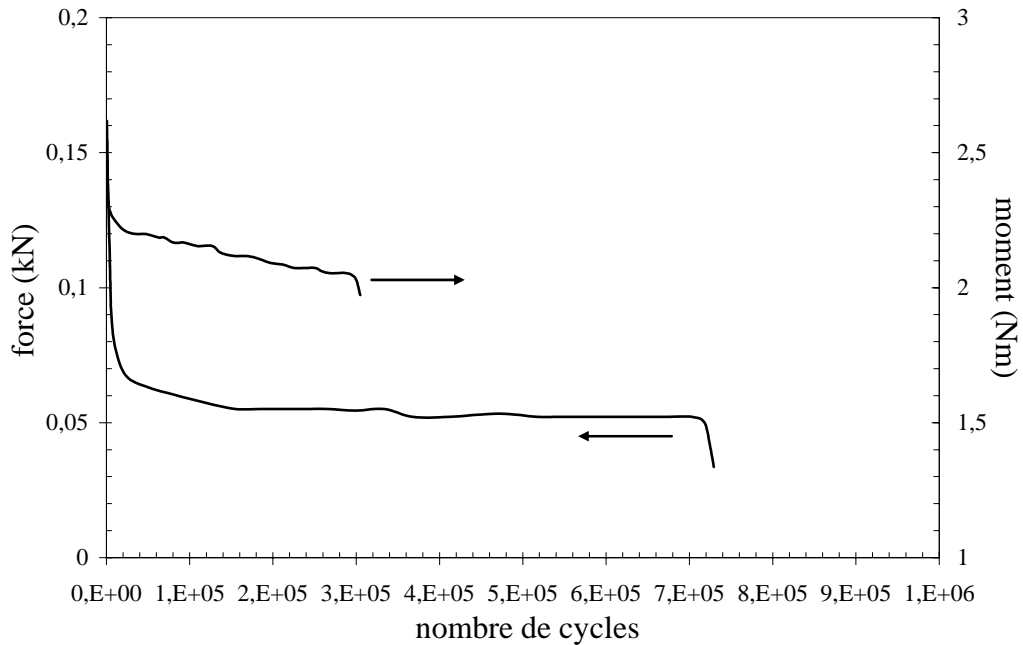


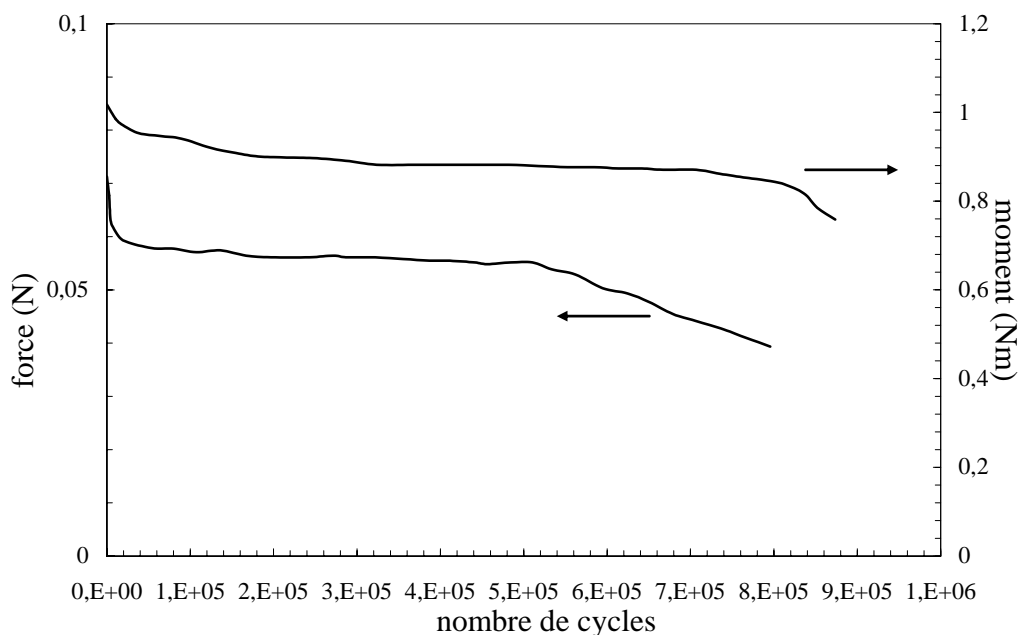
Figure 4.2.5. Fissures observées en fatigue pour l'éprouvette (a), (b), (c) AE42, (d), (e) AE2.

2.2.3. Evolution de la charge ou du couple appliqué

Les évolutions de la charge axiale maximale et du couple en fonction du temps pour les deux géométries d'éprouvettes AE42 et AE2 sont présentées dans la figure 4.2.6.



(a)



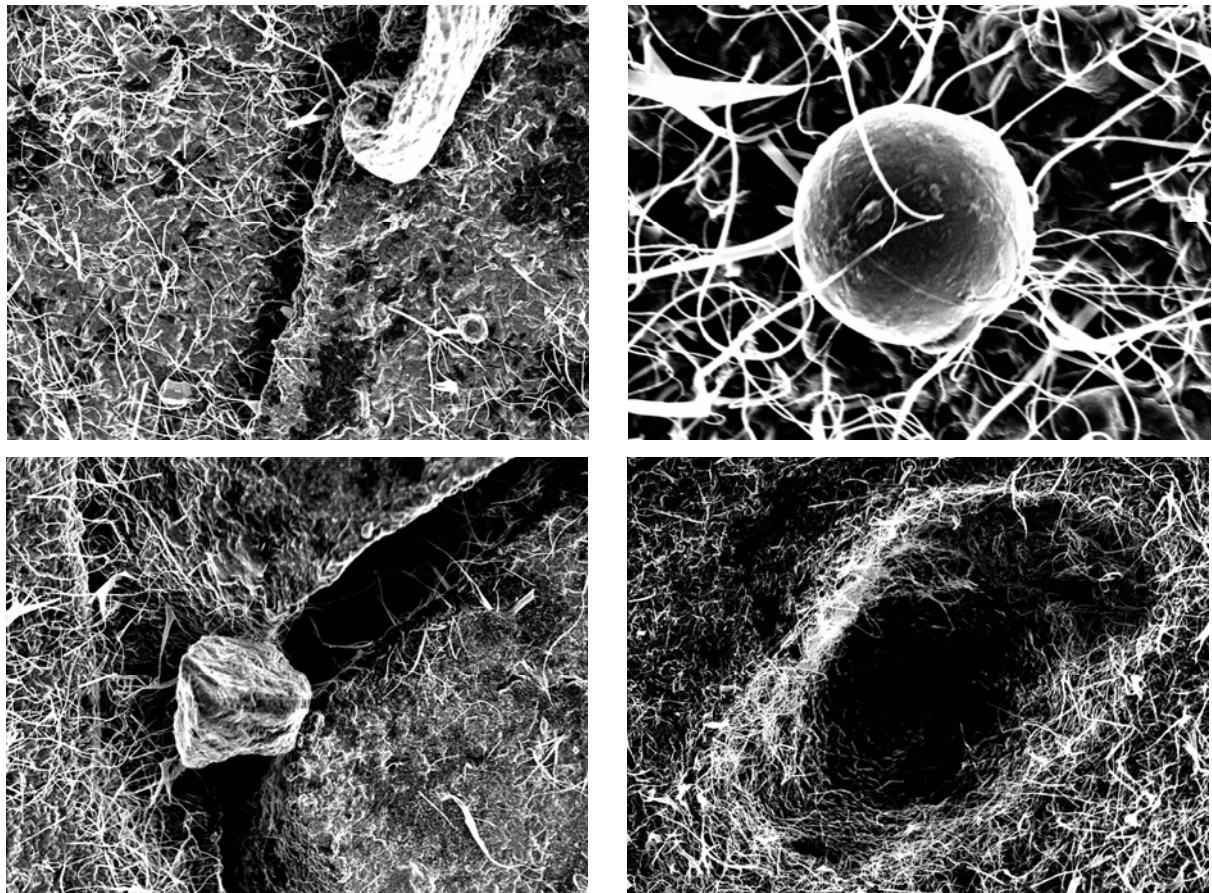
(b)

Figure 4.2.6. Évolution de la charge maximale en fonction du nombre de cycles pour des essais de fatigue de traction uniaxiale et de torsion pour l'éprouvette : (a) AE42, (b) AE2.

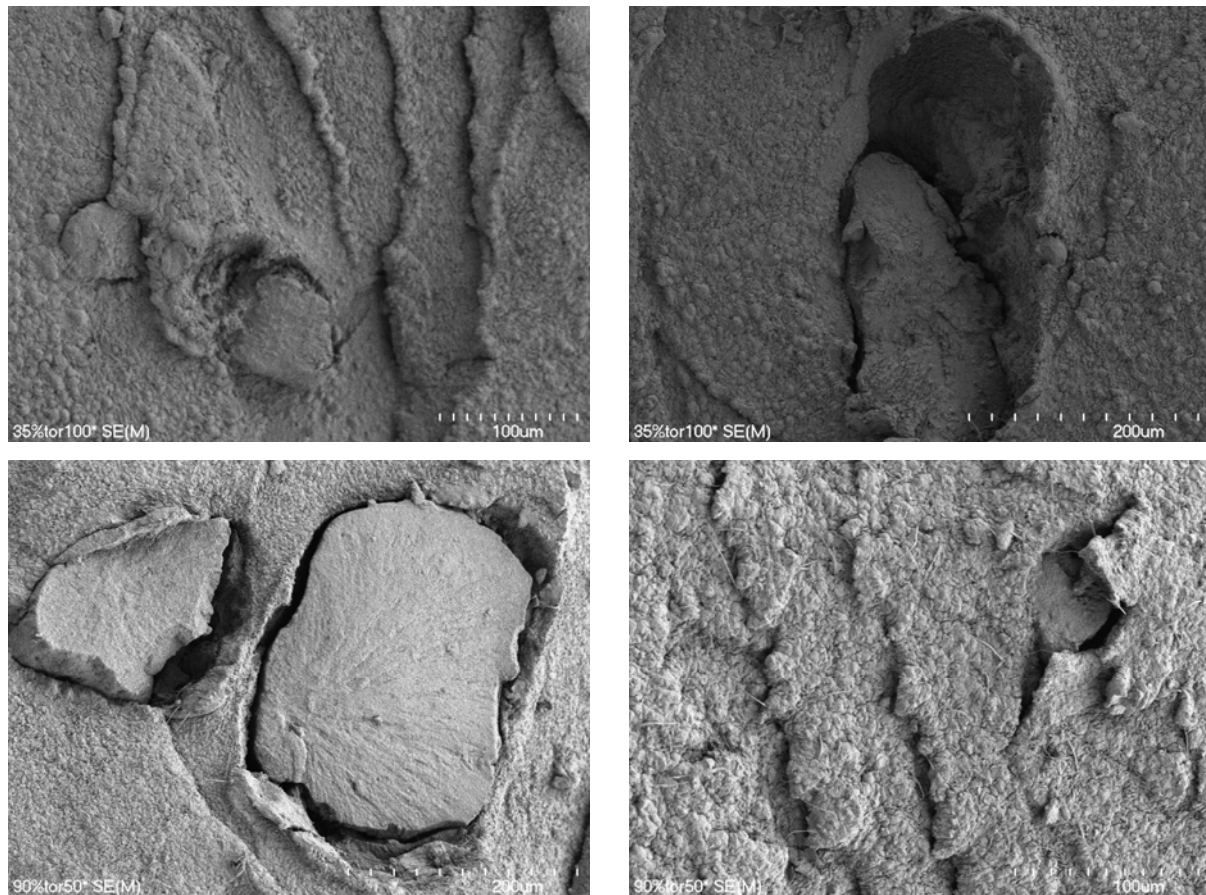
Pour l'éprouvette AE42, on observe que sous chargement de traction à amplitude constante, le niveau de la contrainte nominale diminue très rapidement d'environ 50%, pour se stabiliser jusqu'à l'apparition d'une macrofissure. L'évolution observée pour l'éprouvette AE2 est identique mais la diminution initiale de la contrainte est beaucoup plus faible. Cette différence marquée est probablement une conséquence de l'auto-échauffement du SBR. Pour l'essai de torsion, nous n'observons pas de stabilisation de la contrainte mais un adoucissement continu jusqu'à rupture.

2.2.4. Observation des faciès de rupture

La figure 4.2.7 présente un exemple de micrographies effectuées au MEB des faciès de rupture sur des éprouvettes rompues par fatigue sous des chargements de traction et de torsion. Avant observations, afin d'augmenter l'émission d'électrons et minimiser l'endommagement par irradiation, les échantillons ont été revêtus d'une couche conductrice mince.



(a)



(b)

Figure 4.2.7. Micrographie MEB des faciès de rupture pour des éprouvettes rompues sous chargement : (a) de traction, (b) de torsion

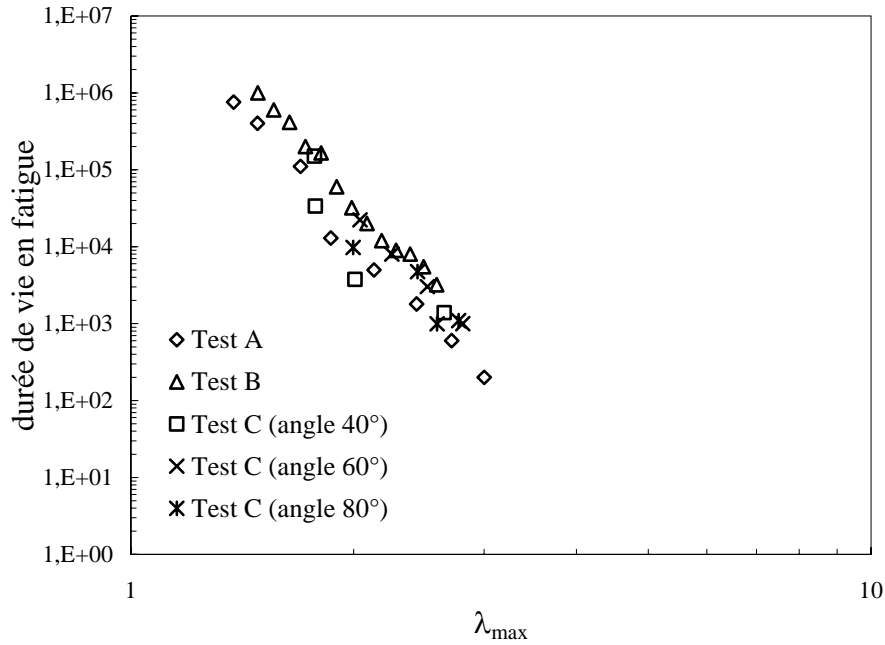
Un mécanisme d'endommagement similaire pour les deux modes de chargement a été observé. En effet, les observations montrent clairement des décohésions charge-matrice mais également des ruptures de charges. Comme pour les essais à plus faible nombre de cycles examinés dans le chapitre précédent, il peut être clairement observé un mécanisme de fibrillation important dans la matrice, dépendant du type de chargement. En effet, il peut être observé une fibrillation plus importante dans le cas de la traction que dans le cas de la torsion.

3. Validité des modèles existants

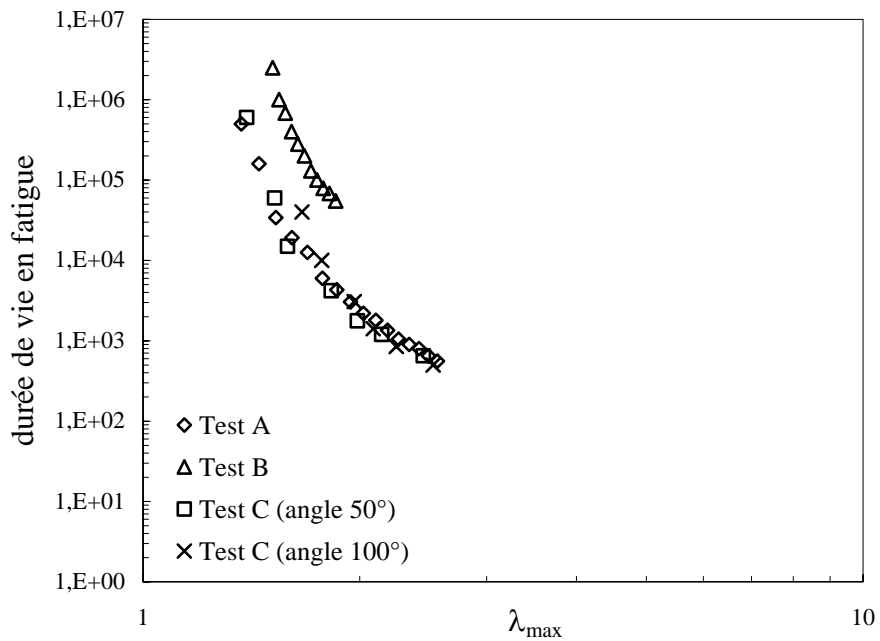
Dans cette partie du chapitre 4, nous examinons la pertinence de critères de rupture de la littérature en utilisant les résultats des essais présentés dans la section précédente. Des critères

en déformation, en contrainte et en énergie sont appliqués à notre base de données expérimentale.

3.1. Critère de rupture en déformation



(a)



(b)

Figure 4.3.1. Nombre de cycles à rupture en fonction de l'elongation principale maximale

λ_{max} pour l'éprouvette : (a) AE2, (b) AE42.

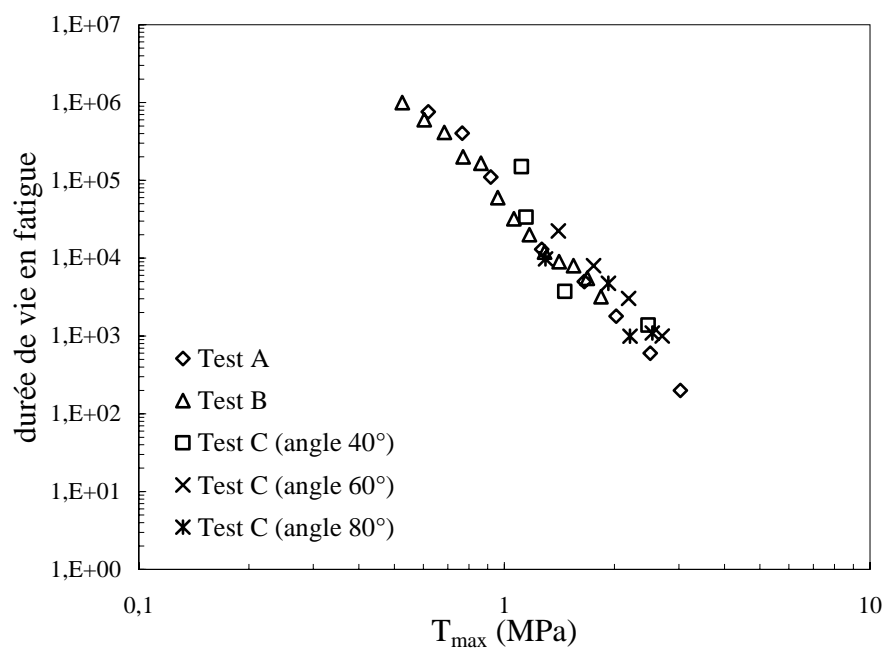
Comme déjà mentionné dans la bibliographie, l'élongation principale maximale λ_{\max} a souvent été utilisée comme critère de fatigue pour unifier les données expérimentales multiaxiales obtenues sur matériaux élastomères. Dans ce critère on trace l'élongation principale maximale en fonction du nombre de cycles à rupture pour les deux géométries considérées. On peut clairement observer à la figure 4.3.1, que l'utilisation de l'élongation principale maximale comme critère de fatigue pour le SBR ne permet pas d'unifier les données expérimentales. Ces courbes montrent que les données des essais de traction et traction - torsion combinée forment un nuage de points serré tandis que celles des essais de torsion s'en éloignent. Le rapprochement entre les résultats de traction et de traction - torsion combinée est probablement dû au fait que dans les essais combinés la traction est prédominante devant la torsion au regard des angles utilisés.

3.2. Critères de rupture en contrainte

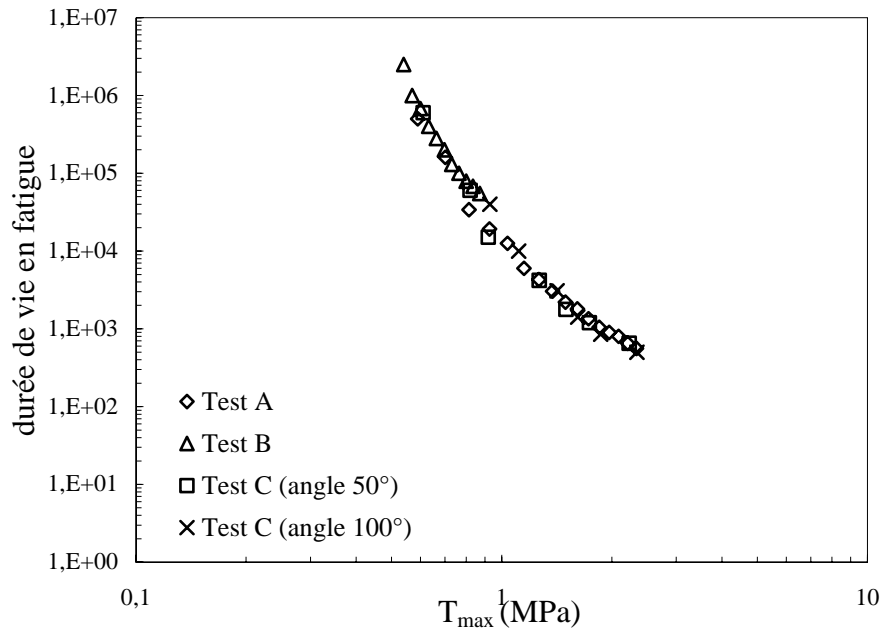
3.2.1. Contrainte de Cauchy principale maximale

Un autre critère naturel pour l'analyse de la durée de vie en fatigue des matériaux est l'utilisation des contraintes et en particulier la contrainte de Cauchy principale maximale

T_{\max} .



(a)



(b)

Figure 4.3.2. Nombre de cycles à l'initiation en fonction de la contrainte de Cauchy principale maximale T_{\max} pour l'éprouvette : (a) AE2, (b) AE42.

Ce critère est appliqué à nos données expérimentales à la figure 4.3.2 pour les deux géométries d'éprouvette considérées. Il apparaît que pour le matériau de l'étude l'analyse en contrainte de Cauchy principale maximale semble plus pertinente qu'une analyse impliquant la déformation dans la mesure où les données expérimentales sont plus unifiées. Cette constatation vaut surtout pour la géométrie AE2, où les points expérimentaux sont quasiment superposés.

3.2.2. Contrainte de Dang Van maximale

Cette approche a été proposée récemment par Brunac et al. (2009), qui s'est inspirée du travail de Dang Van sur la non-initiation des fissures par fatigue dans les métaux soumis à des chargements périodiques arbitraires. Le principe de l'approche de Dang Van est schématisé dans la figure 4.3.3. À tout point de la structure élastomérique prise en considération, l'histoire du chargement mécanique est caractérisée par la variation en fonction du temps d'une certaine variable de contrainte $\tau(t)$. Le chargement est supposé être périodique afin que la séquence successive des points $\tau(t)$ définis un chemin fermé dans l'espace des

contraintes. Un résultat mathématique classique affirme qu'il existe une sphère unique de rayon minimal contenant un tel chemin (la sphère de Dang Van). Le centre (tenseur) et de rayon (scalaire) de cette sphère seront respectivement notée C et R . Dans le cas des essais uniaxiaux, dont les résultats sont résumés dans le diagramme de Haigh, le chemin de contrainte est contenu dans un segment $[\tau_{\min}, \tau_{\max}]$ de la droite réelle. Le centre et le rayon de la sphère de Dang Van sont donnés par :

$$C = \frac{1}{2}(\tau_{\max} + \tau_{\min})$$

$$R = \frac{1}{2}(\tau_{\max} - \tau_{\min})$$
(4.3.1)

Dans l'équation (4.3.1.), C représente la quantité suivante :

$$C \equiv \|C\| \equiv (C : C)^{1/2}$$
(4.3.2)

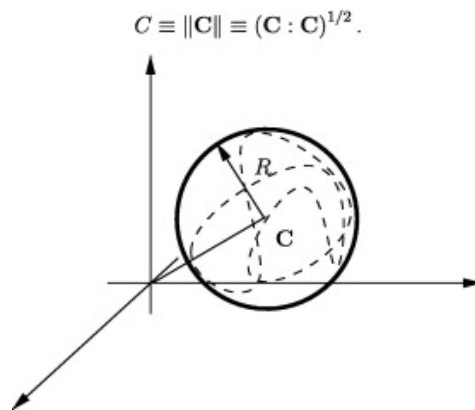


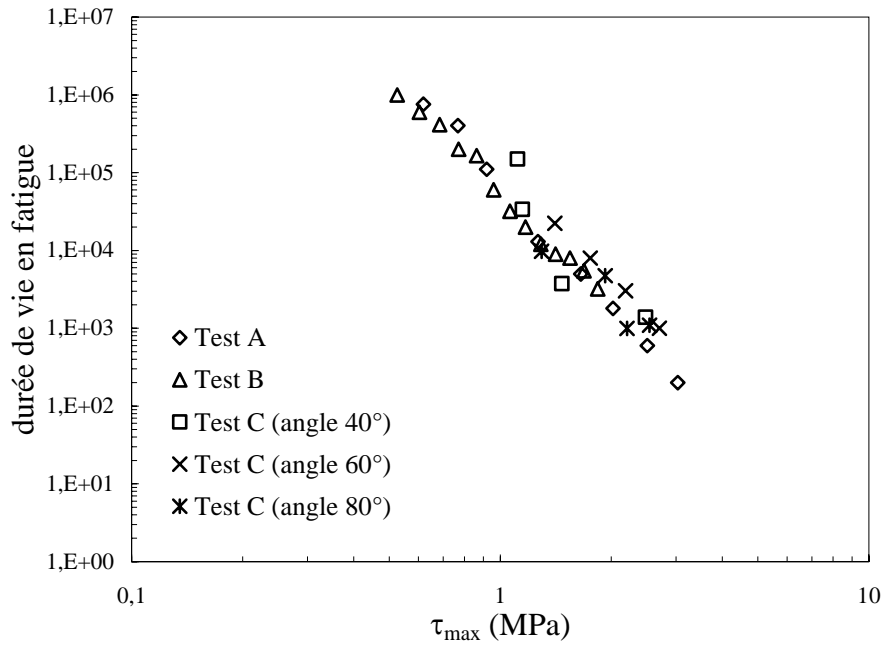
Figure 4.3.3. Chemin schématique de la variable τ dans l'espace contrainte (Brunac et al., 2009).

La quantité C est identique à la contrainte moyenne et la quantité R à l'amplitude de la contrainte. L'inversion de l'équation (4.3.1) nous permet d'obtenir :

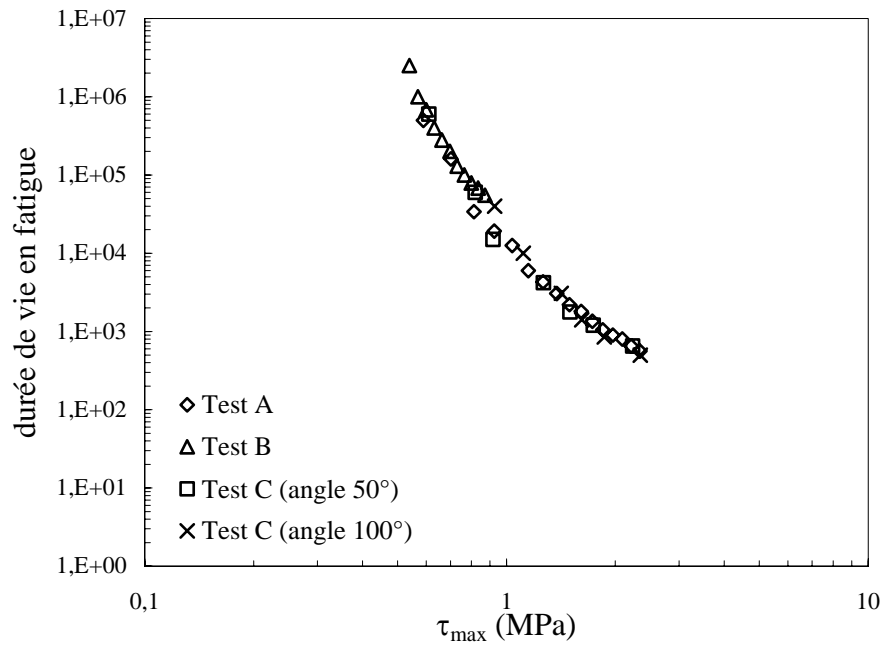
$$\tau_{\max} = C + R$$

$$\tau_{\min} = C - R$$
(4.3.3)

Ces expressions sont développées pour des chargements unidirectionnels seulement. Toutefois, pour les chargements arbitraires 3D, elles seront considérées comme des définitions des contraintes maximales et minimales (τ_{\max} , τ_{\min}) de certains chargements unidirectionnels « équivalents ».



(a)



(b)

Figure 4.3.4. Nombre de cycles à l'initiation en fonction de la contrainte de Dang Van maximale τ_{max} pour l'éprouvette : (a) AE2, (b) AE42.

La variable de contrainte choisie par Brunac et al. (2009) pour mieux décrire les chargements multiaxiaux des élastomères est définie par :

$$\begin{aligned}\boldsymbol{\tau} &= \mathbf{T}^+ \\ \mathbf{T}^+ &= \sum_{i=1}^3 \mathbf{T}_i^+ e_i \otimes e_i \\ \mathbf{T}^+ &= \sup(\mathbf{T}_i, 0)\end{aligned}\quad (4.3.4)$$

L'extension du modèle aux grandes transformations a également été proposée par Brunac et al. (2009) :

$$\begin{aligned}\mathbf{F} &= \mathbf{UR} = \mathbf{RV} \\ \boldsymbol{\tau} &= \mathbf{R}^{-1} \mathbf{T}^+ \mathbf{R}\end{aligned}\quad (4.3.5)$$

où \mathbf{R} est le tenseur de rotation orthogonal et, \mathbf{U} et \mathbf{V} des tenseurs symétriques de déformation pure. Brunac et al. (2009) ont comparé la pertinence de ce critère issue de l'approche de Dang Van en l'appliquant à des données issues de la littérature sur du NR, et nous l'avons appliqué ici sur notre SBR.

Ce critère a été appliqué à nos données expérimentales pour les deux géométries d'éprouvette considérées et les résultats présentés à la figure 4.3.4. Le critère en contrainte proposé par Brunac et al. (2009) semble pertinent pour le présent matériau puisqu'il est capable d'unifier des données issues d'essais en traction et torsion.

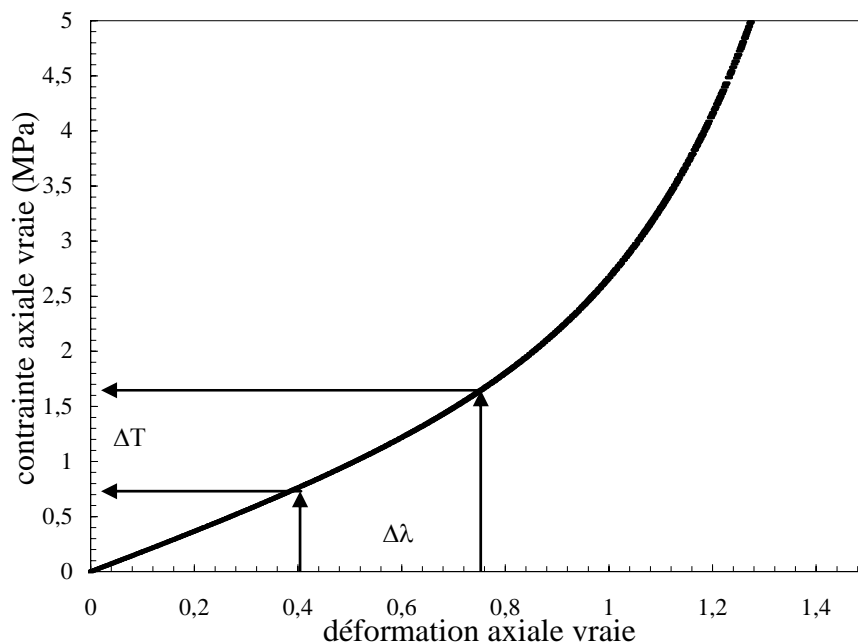


Figure 4.3.5. Comportement mécanique du SBR contrainte de Cauchy en fonction de la déformation.

Les précédents résultats montrent clairement que les critères en contraintes sont plus adaptés à nos essais que les critères en déformation. Une partie de l'explication pourrait venir de la

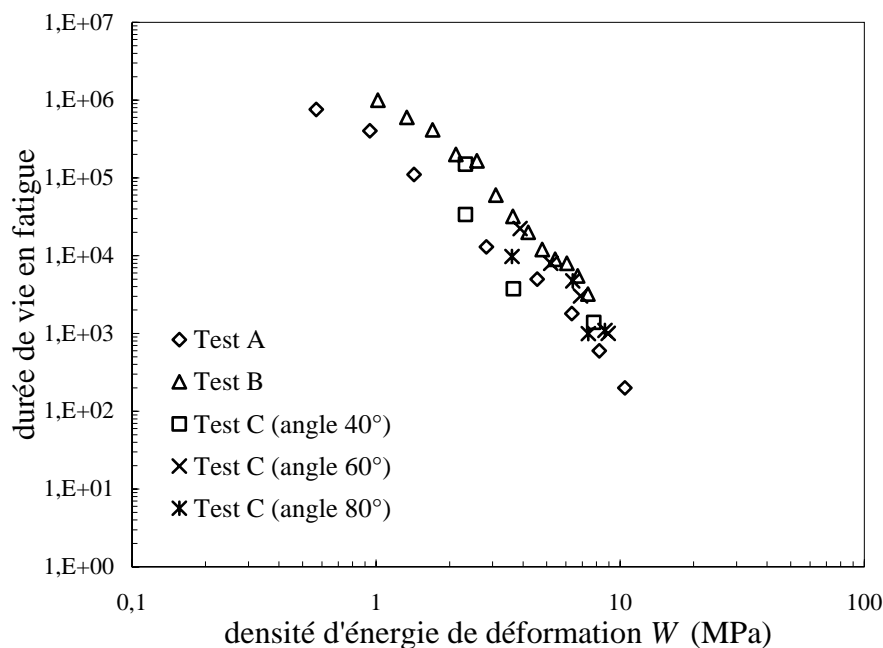
courbe de comportement contrainte-déformation. En effet, la figure 4.3.5 montre que pour des déformations allant jusqu'à 100%, la contrainte évolue moins rapidement que la déformation. Du fait de ces dernières observations, un critère énergétique combinant de fait déformation et contrainte pourrait également convenir. Dans la suite, on propose d'analyser les critères énergétiques existants.

3.3. Critères de rupture en énergie

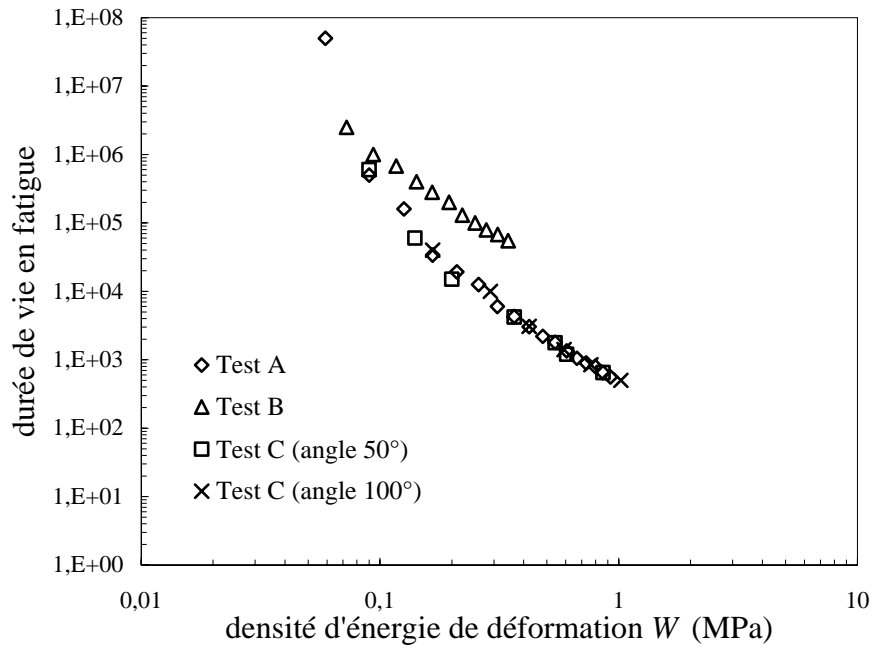
3.3.1. Energie de déformation

Nous avons vu dans le chapitre 1 que le comportement des élastomères peut être décrit à partir d'une densité d'énergie de déformation. Pour le cas de notre matériau la densité d'énergie de déformation d'Ogden de second ordre a été choisie. C'est Beatty (1964) qui fut le premier à utiliser un tel critère pour la prédiction de l'amorçage d'une fissure en fatigue.

Dans la figure 4.3.6 le nombre de cycles à rupture est tracé en fonction de la densité d'énergie de déformation calculée pour différents chemins de chargement et ce, pour les deux géométries d'éprouvette considérées. La figure montre que l'utilisation d'un tel critère ne permet absolument pas d'unifier les données expérimentales et par conséquent difficilement être considéré comme critère de fatigue, en tout cas pour le matériau de l'étude.



(a)



(b)

Figure 4.3.6. Nombre de cycles à l’initiation en fonction de l’énergie de déformation W pour l’éprouvette : (a) AE2, (b) AE42.

3.3.2. Energie de fissuration de Mars

On reprend l’expression finale de l’incrément de la densité d’énergie de fissuration développée dans le premier chapitre (paragraphe 3.2.4.2), dW_c , définie en grandes déformations et dans la configuration matérielle (non déformée) :

$$dW_c = \frac{\rho}{\rho_0} \frac{1}{\mathbf{R}^T \mathbf{C}^{-1} \mathbf{R}} \mathbf{R}^T \mathbf{S} d\mathbf{E} (\mathbf{F}^T \mathbf{F})^{-1} \mathbf{R} = \frac{\rho}{\rho_0} \frac{\mathbf{R}^T \mathbf{S} d\mathbf{E} \mathbf{C}^{-1} \mathbf{R}}{\mathbf{R}^T \mathbf{C}^{-1} \mathbf{R}} \quad (4.3.6)$$

où ρ/ρ_0 est le rapport de la masse volumique actuelle à la masse volumique initiale (pour un matériau incompressible sa valeur est prise égale à 1), \mathbf{R} est le vecteur unitaire dans la configuration non déformée défini (dans un problème plan) sous la forme suivante : $\mathbf{R} = (\cos \theta, \sin \theta, 0)$ où θ est l’angle entre le plan de fissuration virtuel et la normale à la première direction principale. Une comparaison entre l’angle de fissuration obtenue expérimentalement et par prédiction est donnée en annexe D.

Dans les directions principales, le tenseur gradient de déformation \mathbf{F} , pour les matériaux incompressibles, peut être écrit sous la forme suivante :

$$\mathbf{F} = \text{diag}(\lambda_1, B\lambda_1, B^{-1}\lambda_1^{-2}) \quad (4.3.7)$$

où $B = \lambda_2/\lambda_1$ est le rapport de biaxialité défini comme le rapport entre la deuxième et la première elongation principale. Les dérivées du rapport de biaxialité en fonction des elongations principales sont simplement données par :

$$\begin{aligned}\frac{\partial B}{\partial \lambda_1} &= -\frac{\lambda_2}{\lambda_1^2} = -\frac{B}{\lambda_1} \\ \frac{\partial B}{\partial \lambda_2} &= \frac{1}{\lambda_1} \\ \frac{\partial B}{\partial \lambda_3} &= -\frac{1}{\lambda_1^2 \lambda_3^2} = -\lambda_1^2 B^2\end{aligned}\quad (4.3.8)$$

En outre, toujours dans les directions principales, le tenseur des déformations de Cauchy-Green droit \mathbf{C} et le tenseur des déformations de Green-Lagrange \mathbf{E} peuvent être respectivement exprimés selon les formes suivantes :

$$\mathbf{C} = \mathbf{F}^T \mathbf{F} = \text{diag}(\lambda_1^2, B^2 \lambda_1^2, B^{-2} \lambda_1^{-4}) \quad (4.3.9)$$

et

$$\mathbf{E} = \frac{1}{2}(\mathbf{C} - \mathbf{I}) = \frac{1}{2} \text{diag}(\lambda_1^2 - 1, B^2 \lambda_1^2 - 1, B^{-2} \lambda_1^{-4} - 1) \quad (4.3.10)$$

On peut encore écrire que :

$$\mathbf{R}^T \mathbf{C}^{-1} \mathbf{R} = \frac{1}{\lambda_1^2} (\cos^2 \theta + B^{-2} \sin^2 \theta) \quad (4.3.11)$$

En écrivant \mathbf{S} , le second tenseur de contrainte de Piola-Kirchhoff, dans les directions principales, il vient :

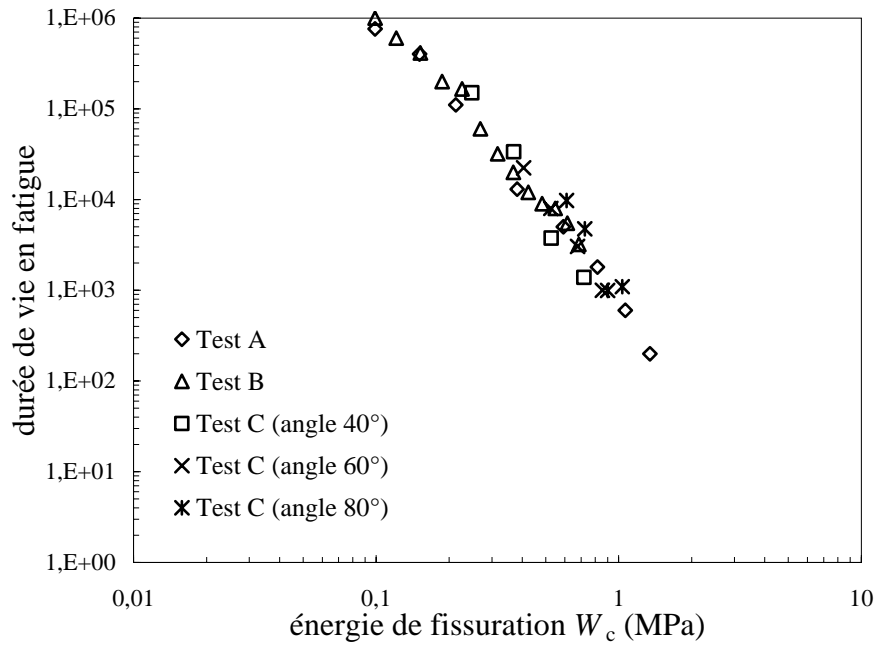
$$\mathbf{R}^T \mathbf{S} d\mathbf{E} \mathbf{C}^{-1} \mathbf{R} = \frac{1}{2} \frac{d(\lambda_1^2 - 1)}{\lambda_1^2} \cos^2 \theta S_{11} + \frac{1}{2} \frac{d(B^2 \lambda_1^2 - 1)}{B^2 \lambda_1^2} \sin^2 \theta S_{22} \quad (4.3.12)$$

En utilisant les équations (4.3.10) et (4.3.11), la formulation générale de la densité d'énergie de fissuration peut se simplifier. On obtient alors :

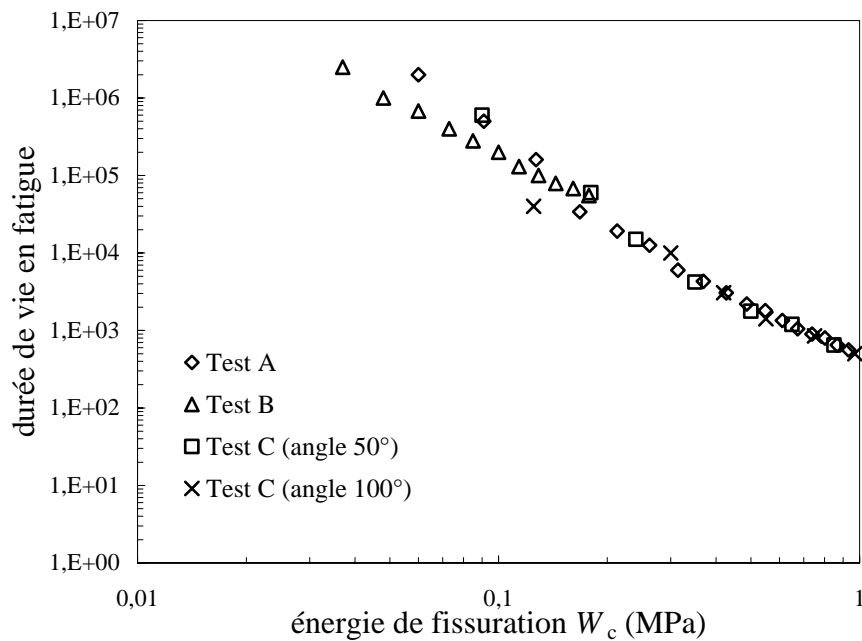
$$dW_c = \frac{1}{2} \frac{d(\lambda_1^2 - 1) \cos^2 \theta S_1 + \frac{d(B^2 \lambda_1^2 - 1)}{B^2} \sin^2 \theta S_2}{(\cos^2 \theta + B^{-2} \sin^2 \theta)} \quad (4.3.13)$$

L'angle d'orientation des fissures θ utilisé dans nos calculs est celui qui maximise le rapport W_c/W , W étant la densité d'énergie de déformation totale. Un algorithme permettant la détermination de la densité d'énergie de fissuration a été implanté dans le code éléments finis MSC.Marc. Dans l'algorithme de calculs, à chaque incrément, les déformations et contraintes de chaque nœud de chaque élément de la structure (ici les éprouvettes AE42 et AE2) sont

utilisées pour le calcul explicite de l'expression (4.3.13) intégrée numériquement par la méthode de trapèze.



(a)



(b)

Figure 4.3.7. Nombre de cycles à rupture en fonction de la densité d'énergie de fissuration W_c pour l'éprouvette : (a) AE2, (b) AE42.

Pour ce faire les éprouvettes AE42 et AE2 ont été modélisées par éléments finis. Le maillage et les conditions aux limites seront décrits dans le paragraphe suivant. La figure 4.3.7 démontre clairement que la densité d'énergie de fissuration W_c est un critère qui permet d'unifier nos données expérimentales.

3.3.3. Critère basé sur le tenseur d'Eshelby

En reprenant le calcul du tenseur d'Eshelby du paragraphe 3.2.4.3 du chapitre 1, on peut exprimer le tenseur d'Eshelby, pour un matériau homogène, hyperélastique, isotrope et incompressible. Le matériau hyperélastique est caractérisé par l'existence d'une densité d'énergie de déformation, W , dont la contrainte de Cauchy \mathbf{T} , dérive :

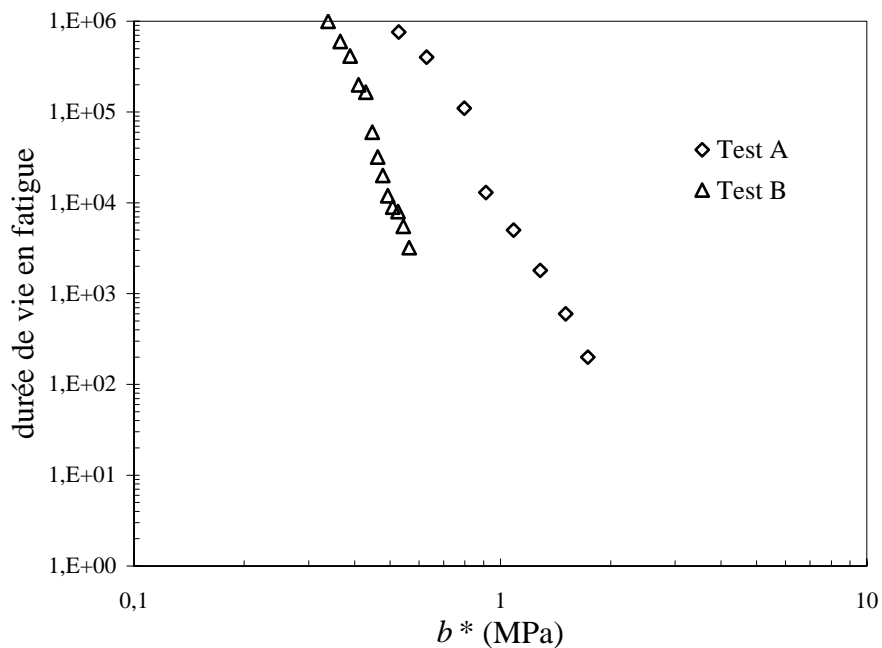
$$\mathbf{T} = -p\mathbf{I} + 2\mathbf{B}\frac{\partial W}{\partial \mathbf{B}} = p\mathbf{I} + 2\left(\frac{\partial W}{\partial I_1} + I_1\frac{\partial W}{\partial I_2}\right)\mathbf{B} - 2\frac{\partial W}{\partial I_2}\mathbf{B}^2 \quad (4.3.14)$$

où \mathbf{B} est le tenseur des dilatations de Cauchy-Green gauche. La contrainte de Cauchy et la contrainte de Piola-Kirchhoff sont liées par l'équation suivante :

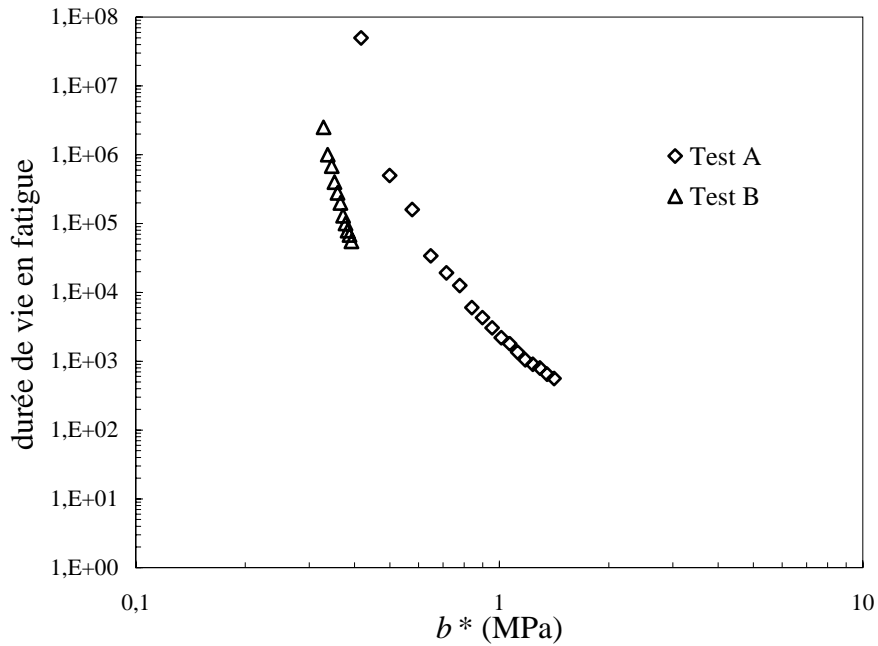
$$\mathbf{T} = J^{-1}\mathbf{F}\mathbf{S}\mathbf{F}^T \quad (4.3.15)$$

avec $J = 1$ pour un matériau incompressible. La contrainte configurationnelle s'écrit :

$$\mathbf{b} = \mathbf{W}\mathbf{I} - \mathbf{C}\mathbf{S} = (W + p)\mathbf{I} - 2\mathbf{C}\frac{\partial W}{\partial \mathbf{C}} = (W + p)\mathbf{I} - 2\left(\frac{\partial W}{\partial I_1} + I_1\frac{\partial W}{\partial I_2}\right)\mathbf{C} + 2\frac{\partial W}{\partial I_2}\mathbf{C}^2 \quad (4.3.16)$$



(a)



(b)

Figure 4.3.8. Nombre de cycles à rupture en fonction du critère d’Eshelby b^* pour l’éprouvette : (a) AE2, (b) AE42.

A partir de l’expression du tenseur de déformation dans la base principale $\mathbf{C} = \text{diag}(\lambda_1^2, \lambda_2^2, \lambda_3^2)$, de l’équation (4.3.13), et la coaxialité de \mathbf{C} et \mathbf{S} on peut définir les trois composantes principales du tenseur d’Eshelby sous la forme :

$$\begin{cases} \mathbf{b}_1 = W - S_1 \lambda_1^2 = W + p - 2\lambda_1^2 \frac{\partial W}{\partial \lambda_1^2} \\ \mathbf{b}_2 = W - S_2 \lambda_2^2 = W + p - 2\lambda_2^2 \frac{\partial W}{\partial \lambda_2^2} \\ \mathbf{b}_3 = W - S_3 \lambda_3^2 = W + p - 2\lambda_3^2 \frac{\partial W}{\partial \lambda_3^2} \end{cases} \quad (4.3.17)$$

Comme énoncé au paravent, le critère de nucléation de fissure proposé par Verron et Andriyana (2007) s’écrit :

$$\text{Critère} = b^* = \left| \min \left[(b_i)_{i=1,2,3}, 0 \right] \right| \quad (4.3.18)$$

Les vecteurs propres de \mathbf{b} sont ceux de \mathbf{S} et \mathbf{C} , et puisque S_i augmente avec λ_i , la valeur principale minimale de la contrainte configurationnelle est donnée par :

$$b_{\min} = W - S_{\max} \lambda_{\max}^2 \quad (4.3.19)$$

S_{\max} et λ_{\max} étant respectivement les valeurs principales maximales de \mathbf{S} et \mathbf{C} . Dans le cas où $b_{\min} < 0$, la valeur de la grandeur prédictive est donnée par $b^* = -b_{\min}$

Dans la figure 4.3.8 le nombre de cycles à rupture est tracé en fonction de la contrainte minimale d'Eshelby calculée pour différents chemins de chargement. La figure montre que l'utilisation du critère d'Eshelby tel que formulé par Verron et Andriyana (2007) est incapable d'unifier correctement nos données expérimentales, et ne pourra être considéré comme un critère valable pour le matériau de l'étude.

Durant l'analyse présentée précédemment, nous avons exploité différentes pistes avec pour objectif l'identification d'un critère de fatigue pour notre SBR. Nous pouvons conclure que le critère en élongation maximale ne permet pas d'unifier les résultats expérimentalement sous chargements multiaxiaux, tandis que des critères en contraintes le permettent. Il peut être conclu qu'un critère énergétique sera bien adapté pour prendre en compte l'effet de la déformation et de la contrainte simultanément. Suite à l'étude des critères énergétiques, on peut conclure que seule la densité d'énergie de fissuration permet d'unifier nos résultats multiaxiaux. A l'issue de cette analyse, nous proposons de développer un modèle de fatigue prédictif complet incluant explicitement dans sa formulation une loi de cumul d'endommagement. La présentation de ce nouveau modèle fait l'objet de la dernière partie de ce chapitre. La vérification de la pertinence de nouveau modèle sera réalisée sur notre base de données expérimentale complète.

4. Nouveau modèle basé sur la mécanique de l'endommagement continu pour la prédiction de la durée de vie en fatigue : formulation et résultats

La prédiction de la durée de vie d'une structure élastomère peut être abordée selon deux approches :

- La première consiste à coupler un critère de fatigue avec une loi de cumul de dommage.
- La seconde s'appuie sur la mécanique de l'endommagement continu.

Nous avons choisi de développer dans cette étude la seconde option en s'appuyant sur le concept de la contrainte effective proposée par Lemaitre et Chaboche (1978; 1994).

4.1. Formulation multiaxiale du concept de la mécanique de l'endommagement continu

L'élastomère est supposé comme isotrope, homogène, incompressible et hyperélastique. Le modèle développé dans le présent document est construit dans un cadre thermodynamique général pour la théorie hyperélastique. Afin de formuler le modèle, le second principe de la thermodynamique, exprimé par l'inégalité de Clausius-Duhem, peut être rappelé :

$$\mathfrak{D} = -\dot{\psi} + \mathbf{S} : \dot{\mathbf{E}} \geq 0 \quad (4.4.1)$$

où \mathfrak{D} est la dissipation interne, ψ est l'énergie libre de Helmholtz, \mathbf{S} est le second tenseur de contrainte de Piola-Kirchhoff, \mathbf{E} est le tenseur des déformations de Green-Lagrange, \mathbf{C} est le tenseur de déformation de Cauchy-Green droit et \mathbf{F} est le tenseur gradient de déformation.

En supposant que l'énergie libre de Helmholtz ψ est une fonction de \mathbf{F} , elle est également appelée fonction densité d'énergie de déformation W : $\psi(\mathbf{F}) = W(\mathbf{F})$. L'équation (4.4.1) peut être réécrite ainsi :

$$\left(\mathbf{S} - \frac{\partial W}{\partial \mathbf{E}} \right) : \dot{\mathbf{E}} \geq 0 \quad (4.4.2)$$

On rappelle que le second tenseur de contrainte de Piola-Kirchhoff \mathbf{S} peut être calculé par la relation suivante :

$$\mathbf{S} = \frac{\partial W}{\partial \mathbf{E}} = 2 \frac{\partial W}{\partial \mathbf{C}} \quad (4.4.3)$$

Ses composantes S_i dans la direction principale prennent la forme suivante :

$$S_i = \frac{1}{\lambda_i} \frac{\partial W}{\partial \lambda_i} \quad (4.4.4)$$

où λ_i sont les allongements principaux du tenseur gradient de déformation \mathbf{F} .

L'initiation, la croissance et la coalescence des microdéfauts conduisent à la dégradation des propriétés des matériaux. L'introduction d'une variable interne dans le modèle de comportement, définissant l'état d'endommagement et en suivant son évolution, permet de décrire le processus de dégradation des propriétés des matériaux. Le tenseur des contraintes effectives $\tilde{\mathbf{T}}$ introduit par Lemaitre et Chaboche (1994) est lié au tenseur de contrainte de Cauchy \mathbf{T} par la relation suivante :

$$\mathbf{T} = (1 - D) \tilde{\mathbf{T}} \quad (4.4.5)$$

où le terme D est un scalaire définissant l'évolution de l'endommagement isotrope. La variable de l'endommagement D est nulle dans l'état initial (matériau vierge) et égale à 1 à la rupture (lorsqu'une fissure macroscopique est initiée).

L'hypothèse de la déformation équivalente (Lemaitre et Chaboche, 1994) indique que le potentiel de l'énergie libre de Helmholtz (ici, la densité d'énergie de déformation) d'un matériau vierge, c'est-à-dire $W_0(\lambda_i) = W(\lambda_i, D=0)$, peut être utilisée pour exprimer le tenseur de contrainte effective pour un matériel endommagé. En supposant l'endommagement isotrope, la densité d'énergie de déformation actuelle W , peut s'exprimer en fonction de la densité actuelle W_0 à l'état vierge et de la variable d'endommagement D sous la forme suivante :

$$W(\lambda_i, D) = (1-D)W_0(\lambda_i) \quad (4.4.6)$$

L'équation (4.4.6) peut également être formulée en terme de contraintes principales de Piola-Kirchhoff par :

$$S_i = (1-D)\tilde{S}_i \quad (4.4.7)$$

où S_i sont les contraintes principales actuelles et \tilde{S}_i sont les contraintes principales effectives données par :

$$\tilde{S}_i = \frac{1}{\lambda_i} \frac{\partial W_0}{\partial \lambda_i} \quad (4.4.8)$$

Sous l'hypothèse d'un endommagement isotrope, l'évolution de l'endommagement est donnée par (Lemaitre et Chaboche, 1994) :

$$\dot{D} = -\frac{\partial \varphi^*}{\partial y} \quad (4.4.9)$$

où y est la force thermodynamique associée à l'endommagement et φ^* est le potentiel de dissipation, que l'on peut écrire, afin de conserver un caractère général, sous la forme d'une loi puissance :

$$\varphi^* = \frac{A}{a+1} \left(\frac{-y}{A} \right)^{a+1} \quad (4.4.10)$$

où a et A sont deux paramètres à identifier.

La force thermodynamique associée à l'endommagement y est définie par :

$$-y = \frac{\partial W}{\partial D} = \frac{\partial W}{\partial \lambda_i} \frac{\partial \lambda_i}{\partial D} \text{ avec } i = 1, 2, 3 \quad (4.4.11)$$

La différenciation de \tilde{S}_i dans l'équation (4.4.7) par rapport à la variable d'endommagement D , conduit à :

$$\frac{\partial \tilde{S}_i}{\partial D} = \frac{S_i}{(1-D)^2} = \frac{\partial \tilde{S}_i}{\partial \lambda_i} \frac{\partial \lambda_i}{\partial D} \quad (4.4.12)$$

En combinant les équations (4.4.8) et (4.4.12), on peut écrire que :

$$\frac{\partial \lambda_i}{\partial D} = \frac{\tilde{S}_i}{(1-D) \frac{\partial \tilde{S}_i}{\partial \lambda_i}} \quad (4.4.13)$$

Il reste donc à choisir une expression de densité d'énergie de déformation. On rappelle que nous avons choisi de représenter le comportement intrinsèque du SBR à partir de la formulation générale d'Ogden, qui s'exprime en fonction des élongations principales par (Ogden, 1972) :

$$W = W_{iso} + W_{vol} \quad (4.4.14)$$

$$W = \sum_{i=1}^n \frac{\mu_i}{\alpha_i} (\lambda_1^{\alpha_i} + \lambda_2^{\alpha_i} + \lambda_3^{\alpha_i} - 3) + \frac{9}{2} K (J^{1/3} - 1)^2$$

où W_{iso} et W_{vol} sont les deux composantes, l'une isochore et l'autre dilatationnelle, de la densité énergie de déformation. On rappelle que dans notre étude, on considère le matériau incompressible ce qui peut se justifier par le fait que le module de cisaillement est très faible devant le module de compressibilité. Les paramètres du modèle définis dans l'équation (4.4.14) sont reportés dans le tableau 4.2.1.

Comme la densité d'énergie de déformation est une fonction des élongations principales et de la variable d'endommagement D , la force thermodynamique y peut être écrite sous la forme suivante :

$$-y = \frac{\partial W}{\partial D} = \frac{\partial W}{\partial \lambda_1} \frac{\partial \lambda_1}{\partial D} + \frac{\partial W}{\partial \lambda_2} \frac{\partial \lambda_2}{\partial D} + \frac{\partial W}{\partial \lambda_3} \frac{\partial \lambda_3}{\partial D} \quad (4.4.15)$$

Que l'on peut également exprimer, en combinant les équations (4.4.14) et (4.4.15), comme suit :

$$-y = \frac{S_{eq}}{1-D} \quad (4.4.16)$$

S_{eq} est une quantité équivalente à une contrainte, donnée par :

$$S_{eq} = \sum_{i=1}^3 \frac{\tilde{S}_i \frac{\partial W}{\partial \lambda_i}}{\frac{\partial \tilde{S}_i}{\partial \lambda_i}} = \sum_{i=1}^3 \frac{\left(\sum_{j=1}^n \mu_j \lambda_i^{\alpha_j - 2} + p \lambda_i^{-2} \right) \left(\sum_{j=1}^n \mu_j \lambda_i^{\alpha_j - 1} + p \lambda_i^{-1} \right)}{\left(\sum_{j=1}^n \mu_j (\alpha_j - 2) \lambda_i^{\alpha_j - 3} + \frac{\partial p}{\partial \lambda_i} \lambda_i^{-2} - 2p \lambda_i^{-3} \right)} \quad (4.4.17)$$

où p est la pression hydrostatique qui est une quantité inconnue introduite dans la formulation du modèle puisque le matériau est supposé incompressible. Rappelons que dans le cas incompressible, ce terme est introduit dans les composantes de la contrainte. Pour déterminer l'expression de la pression hydrostatique, il est nécessaire d'utiliser les conditions aux limites.

La cinétique de l'endommagement est exprimée en utilisant les équations (4.4.9), (4.4.10) et (4.4.16) :

$$\dot{D} = \left(\frac{S_{eq}}{A(1-D)} \right)^a \quad (4.4.18)$$

En fatigue, l'endommagement s'accumule cycle par cycle et l'évolution de l'endommagement dépend de l'amplitude de la déformation. Le taux d'endommagement en fonction du temps \dot{D} peut être représenté en terme d'évolution de D par rapport au nombre de cycles. Ainsi, l'évolution de l'endommagement par fatigue avec le nombre de cycles peut être alors exprimée par :

$$\frac{\partial D}{\partial N} = \left(\frac{S_{eq}}{A(1-D)} \right)^a \quad (4.4.19)$$

Par définition, la variable d'endommagement D est égale à zéro au début du chargement cyclique, c'est-à-dire $D = D_0 = 0$ lorsque $N = N_0 = 0$, alors la valeur de l'endommagement à un cycle donné peut être déterminée par intégration de l'équation (4.4.19), ce qui conduit à :

$$\int_{D_0=0}^D (1-D)^a dD = \int_{N_0=0}^N \left(\frac{S_{eq}}{A} \right)^a dN \quad (4.4.20)$$

Par conséquent, à une amplitude donnée, l'endommagement D induit par les N cycles est donné par l'expression finale :

$$D = 1 - \left[1 - (1+a) \left(\frac{S_{eq}}{A} \right)^a N \right]^{\frac{1}{1+a}} \quad (4.4.21)$$

La durée de vie correspond à un état entièrement endommagé, c'est-à-dire lorsque la variable D atteint sa valeur maximale 1. Dans ce cas, si $D = D_f = 1$ alors $N = N_f$.

Le nombre de cycles à rupture peut être alors exprimé sous la forme suivante :

$$N_f = \frac{A^a}{1+a} S_{eq}^{-a} \quad (4.4.22)$$

L'identification des paramètres d'endommagement a et A du modèle est triviale puisque par linéarisation de l'équation (4.4.22) nous avons :

$$\log(N_f) = -a \log(S_{eq}) + \log\left(\frac{A^a}{1+a}\right) \quad (4.4.23)$$

A titre d'exemple, l'évolution de la variable d'endommagement D en fonction de la durée de vie normalisée N/N_f est représentée sur la figure 4.4.1 après identification des paramètres a et A dans le cas du SBR.

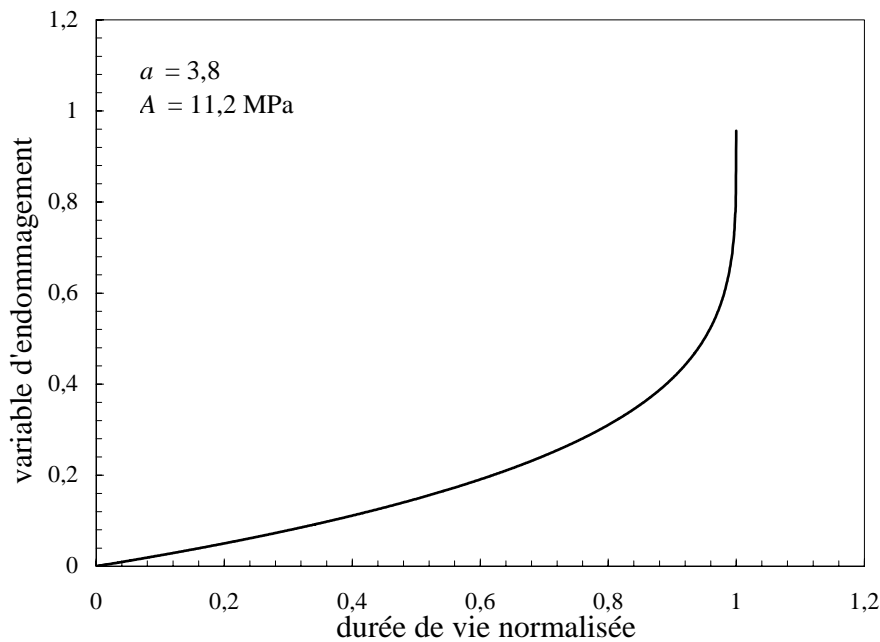


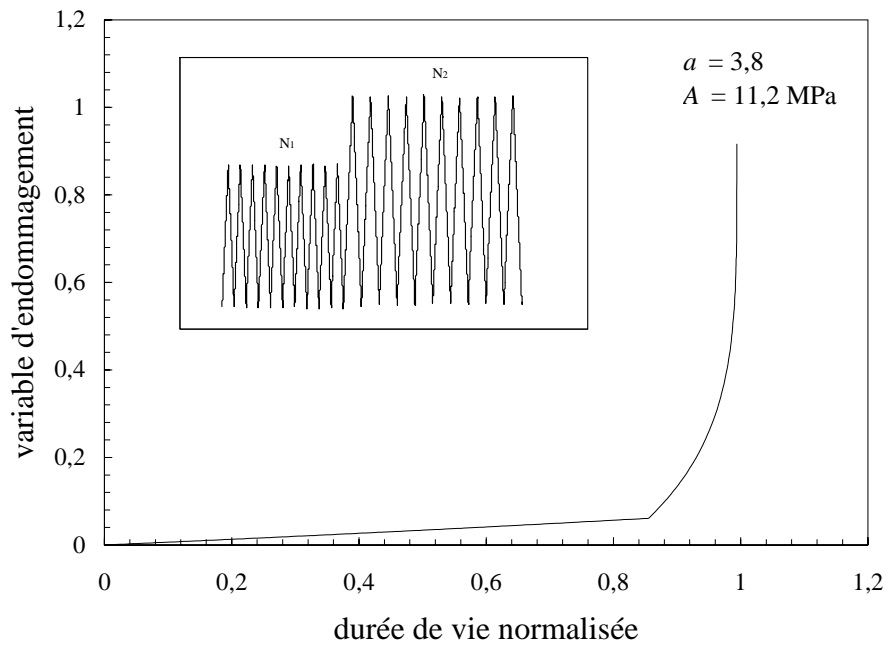
Figure 4.4.1. Evolution de la variable d'endommagement D en fonction de la durée de vie N/N_f .

On constate clairement que l'endommagement est non linéaire, ce qui exclut, par exemple, une loi de cumul de type Miner.

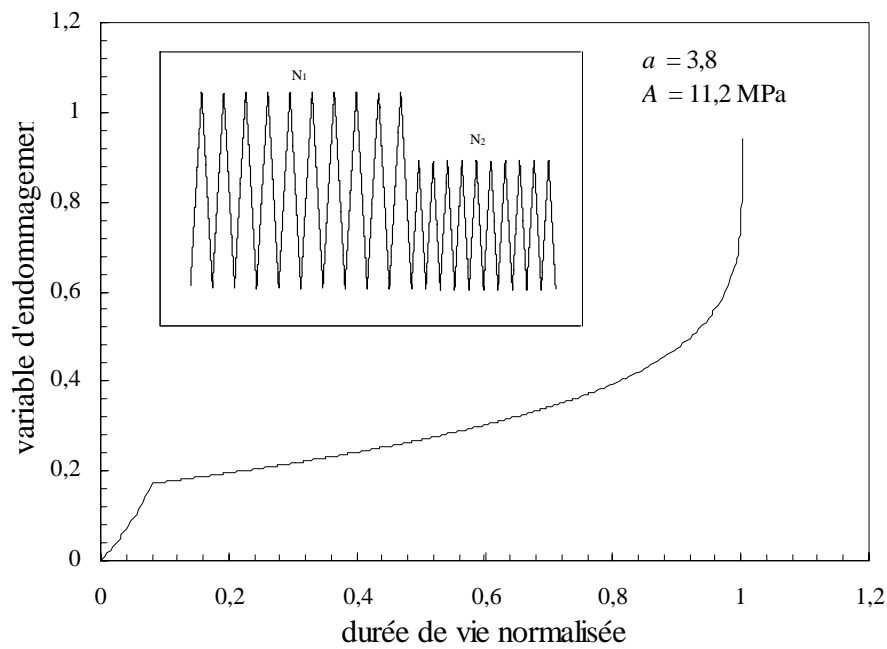
Dans des conditions de chargement à amplitude variable (par blocs), la variable d'endommagement D_i à une séquence donnée i peut être exprimée en utilisant l'équation (4.4.21) écrite de la manière suivante :

$$D_i = 1 - \left[(1 - D_{i-1})^{1+a} - (1+a) \left(\frac{S_{eq}}{A} \right)^a N_i \right]^{\frac{1}{1+a}} \quad (4.4.24)$$

où D_{i-1} représente l'endommagement obtenu pour N_{i-1} cycles dans le bloc $i-1$.



(a)



(b)

Figure 4.4.2. Evolution de la variable d'endommagement D en fonction de la durée de vie N/N_f pour deux blocs de chargement : (a) bas-haut (b) haut-bas.

Pour les n blocs successifs à différentes amplitudes de chargements, la durée de vie en fatigue $N_f = N_n$ peut être calculée en utilisant une sommation :

$$\int_{D_0=0}^{D_f=1} (1-D)^a dD = \sum_{i=0}^{n-1} \int_{N_i}^{N_{i+1}} \left(\frac{S_{eq(i+1)}}{A} \right)^a dN \quad (4.4.25)$$

La figure 4.4.2 montre l'évolution non linéaire de l'endommagement en fonction du nombre de cycles pour un chargement à amplitude variable. L'influence de l'ordre dans les niveaux entre blocs a clairement un effet sur l'évolution de l'endommagement. Une accélération abrupte est observée dans les deux cas.

4.2. Comparaison entre le modèle et les résultats expérimentaux

Dans ce paragraphe, nous proposons de vérifier la validité du critère décrit ci-dessus en comparant les valeurs prédites à nos résultats expérimentaux. Les deux paramètres de dommages a et A sont identifiés en utilisant la méthode des moindres carrés par linéarisation de l'équation (4.4.22). Les essais de fatigue en traction sont utilisés comme référence pour déterminer ces deux paramètres. Une telle identification donne $a = 2.68$ et $A = 13.12$ MPa pour la géométrie AE42. La durée de vie est alors tracée sur la figure 4.4.3 en fonction de la « contrainte équivalente » définie par l'équation (4.4.17).

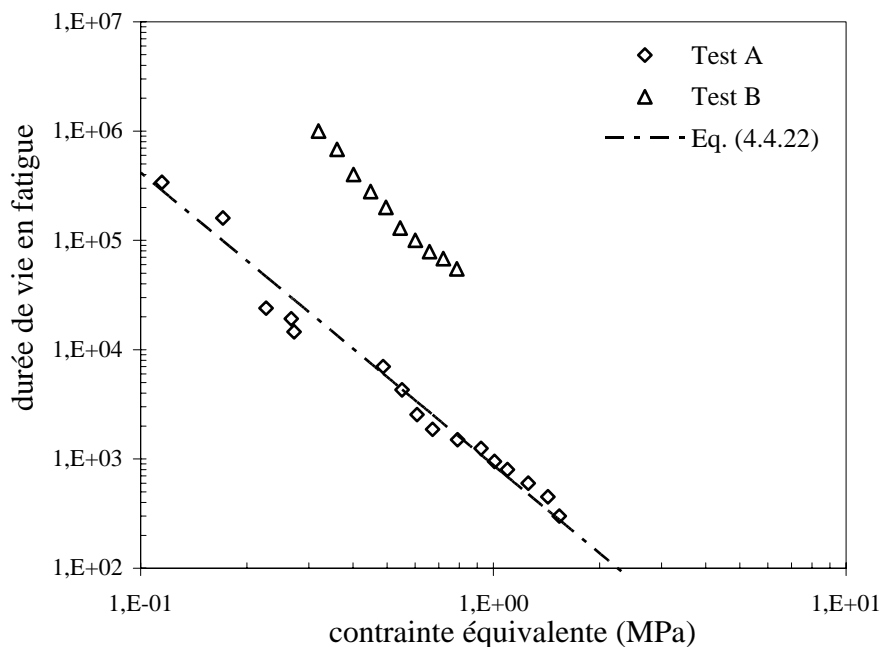


Figure 4.4.3. Durée de vie en fatigue du SBR en fonction de la contrainte équivalente calculée en utilisant l'équation (4.4.17).

On observe clairement que la densité d'énergie de déformation couplée au modèle d'endommagement continu ne peut être utilisée comme un indicateur d'endommagement par fatigue du SBR étudié. En effet, un tel paramètre ne permet pas d'unifier les données expérimentales obtenues pour des chemins de chargement en traction A et en torsion B. C'est un résultat qui confirme l'observation faite dans la section précédente (paragraphe 3.3.1).

En général, il est admis que l'endommagement dû à la contrainte principale maximale (ou l'étirement principal maximum) est prédominant dans le processus de fatigue (ce qui est confirmé expérimentalement). En conservant le formalisme développé précédemment mais en isolant uniquement la contribution de la composante principale maximale de l'élongation, la force thermodynamique réduite associée à cette composante y_{red} peut s'exprimer à partir de l'équation (4.4.15). Il s'ensuit que :

$$-y = \frac{\partial W}{\partial D} = \frac{\partial W}{\partial \lambda_1} \frac{\partial \lambda_1}{\partial D} \quad (4.4.26)$$

Une expression modifiée de la contrainte équivalente, dérivée de l'équation (4.4.17), peut être ainsi obtenue en utilisant cette hypothèse et donc en remplaçant y par y_{red} . Cette contrainte équivalente corrigée s'écrit alors sous la forme suivante :

$$S_{eq}^{corr.} = \sum_{i=1}^3 \frac{\tilde{S}_i \frac{\partial W}{\partial \lambda_1}}{\frac{\partial \tilde{S}_1}{\partial \lambda_1}} = \frac{\left(\sum_{j=1}^n \mu_j \lambda_1^{\alpha_j - 2} + p \lambda_1^{-2} \right) \left(\sum_{j=1}^n \mu_j \lambda_1^{\alpha_j - 1} + p \lambda_1^{-1} \right)}{\left(\sum_{j=1}^n \mu_j (\alpha_j - 2) \lambda_1^{\alpha_j - 3} + \frac{\partial p}{\partial \lambda_1} \lambda_1^{-2} - 2p \lambda_1^{-3} \right)} \quad (4.4.27)$$

Le suffixe “*corr.*” dans la contrainte équivalente rappelle que l'expression est basée sur une approximation de la force thermodynamique.

Les paramètres a et A du modèle étant identifiés selon la procédure décrite précédemment, la figure 4.4.4 montre clairement que la modification proposée dans l'expression de la contrainte équivalente conduit à une amélioration significative du modèle. En effet, les paramètres étant identifiés en traction, la figure montre clairement la capacité du modèle à prédire les résultats expérimentaux obtenus en torsion.

L'amélioration significative obtenue indique que toutes les composantes du tenseur des contraintes ne participent pas de la même manière dans les mécanismes induisant le dommage par fatigue. C'est pourquoi, afin d'approfondir cette démarche que nous avons initiée, il nous a semblé intéressant de revisiter l'approche proposée par Mars (2002), qui, dans ses fondements, postule de fait qu'une portion seulement de la densité d'énergie de déformation participe au processus d'endommagement par fatigue : la densité d'énergie de fissuration W_c .

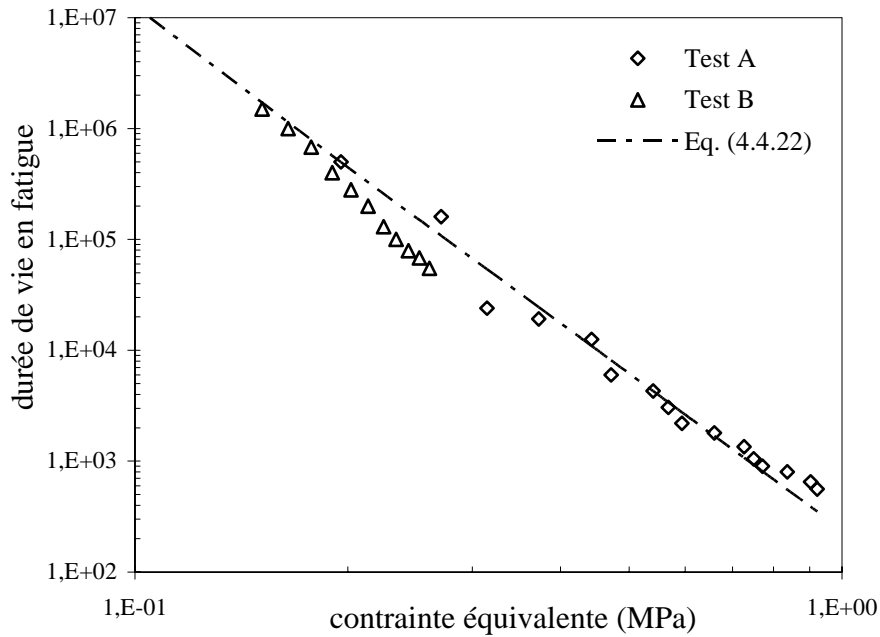


Figure 4.4.4. Durée de vie en fatigue du SBR en fonction de la contrainte équivalente calculée en utilisant l'équation (4.4.27).

4.3. Modèle d'endommagement couplé à la densité d'énergie de fissuration

L'idée consiste finalement à considérer que l'endommagement par fatigue ne résulte que de cette part effective de la densité d'énergie de déformation, et que par conséquent, le développement effectué dans la section précédente peut être réutilisé en remplaçant W par la densité d'énergie de fissuration W_c . Ainsi, la force thermodynamique associée à la variable d'endommagement D dérive bien de ce pseudo-potentiel et l'équation (4.4.11) s'écrit alors :

$$-y = \frac{\partial W_c}{\partial D} = \frac{\partial W_c}{\partial \lambda_i} \frac{\partial \lambda_i}{\partial D} \text{ avec } i = 1, 2, 3 \quad (4.4.28)$$

4.3.1. Equations de base du concept de la densité d'énergie de fissuration

L'incrément de la densité d'énergie de fissuration dans le cadre des déformations infinitésimales, a été reformulé pour les déformations finies par Mars (2001; 2002). Une erreur

concernant le vecteur normal dans la configuration non déformée a été corrigée par Zine (2006a) et l'équation (4.3.6) correspond à la formulation de Zine et al. (2006 a; 2006b).

L'incrément de la densité d'énergie de fissuration peut aussi être reformulée, sous une forme de dérivées partielles. En effet, on peut écrire que :

$$dW_c = \frac{\partial W_c}{\partial \lambda_1} d\lambda_1 + \frac{\partial W_c}{\partial \lambda_2} d\lambda_2 + \frac{\partial W_c}{\partial \lambda_3} d\lambda_3 \quad (4.4.29)$$

En utilisant l'équation (4.3.13), les différentes dérivées partielles de l'équation (4.4.29) peuvent être réécrites sous la forme suivante :

$$\begin{aligned} \frac{\partial W_c}{\partial \lambda_1} &= \frac{1}{2} \frac{\frac{d(\lambda_1^2 - 1)}{d\lambda_1} S_{11} \cos^2 \theta + \frac{d(B^2 \lambda_1^2 - 1)}{d\lambda_1} S_{22} \sin^2 \theta}{(\cos^2 \theta + B^{-2} \sin^2 \theta)} = \frac{\lambda_1 S_1 \cos^2 \theta}{\cos^2 \theta + B^{-2} \sin^2 \theta} \\ \frac{\partial W_c}{\partial \lambda_2} &= \frac{1}{2} \frac{\frac{d(\lambda_1^2 - 1)}{d\lambda_2} S_{11} \cos^2 \theta + \frac{d(B^2 \lambda_1^2 - 1)}{d\lambda_2} S_{22} \sin^2 \theta}{(\cos^2 \theta + B^{-2} \sin^2 \theta)} = \frac{B \lambda_1 S_2 \sin^2 \theta}{\cos^2 \theta + B^{-2} \sin^2 \theta} \\ \frac{\partial W_c}{\partial \lambda_3} &= \frac{1}{2} \frac{\frac{d(\lambda_1^2 - 1)}{d\lambda_3} S_{11} \cos^2 \theta + \frac{d(B^2 \lambda_1^2 - 1)}{d\lambda_3} S_{22} \sin^2 \theta}{(\cos^2 \theta + B^{-2} \sin^2 \theta)} = \frac{-B^3 \lambda_1^4 S_2 \sin^2 \theta}{\cos^2 \theta + B^{-2} \sin^2 \theta} \end{aligned} \quad (4.4.30)$$

Contrairement à l'énergie de déformation, l'énergie de fissuration permet une prédiction du plan de fissuration. L'annexe D présente les capacités prédictives du critère dans le cas de nos matériaux. On se propose dans la suite de tenter un couplage entre densité d'énergie de fissuration et modèle d'endommagement continu, afin de vérifier si la prise en compte uniquement de cette part de l'énergie de déformation est plus pertinente que le formalisme incluant toute l'énergie présenté au paragraphe précédent.

4.3.2. Couplage entre mécanique de l'endommagement continu et densité d'énergie de fissuration

En utilisant le même cadre que celui utilisé dans la section 4.1 et en remplaçant W par W_c un nouveau couplage peut être introduit. Il convient de noter que la densité d'énergie de fissuration est une fonction des étirements principaux à savoir $W_c = W_c(\lambda_i, D)$. Par conséquent, la force thermodynamique associée à l'endommagement y peut être exprimée comme :

$$-y = \frac{\partial W_c}{\partial D} = \frac{\partial W_c}{\partial \lambda_1} \frac{\partial \lambda_1}{\partial D} + \frac{\partial W_c}{\partial \lambda_2} \frac{\partial \lambda_2}{\partial D} + \frac{\partial W_c}{\partial \lambda_3} \frac{\partial \lambda_3}{\partial D} \quad (4.4.31)$$

La contrainte effective introduite dans l'équation (4.4.16) s'exprime alors sous la forme suivante :

$$S_{eq} = \frac{1}{(\cos^2 \theta + B^{-2} \sin^2 \theta)} \left(\frac{S_1^2 \lambda_1 \cos^2 \theta}{\partial S_1 / \partial \lambda_1} + \frac{S_2^2 B \lambda_1 \sin^2 \theta}{\partial S_2 / \partial \lambda_2} + \frac{-S_3 S_2 B^3 \lambda_1^4 \sin^2 \theta}{\partial S_3 / \partial \lambda_3} \right) \quad (4.4.32)$$

Notez que le nombre de cycles à rupture conserve la même forme que dans la section 4.1 et est encore donné par l'équation (4.4.22).

4.4. Calculs par éléments finis

Le modèle développé a été programmé en Fortran et implanté dans le code d'éléments finis MSC.Marc via une subroutine pour simuler des structures en caoutchouc soumises à des chargements multiaxiaux.

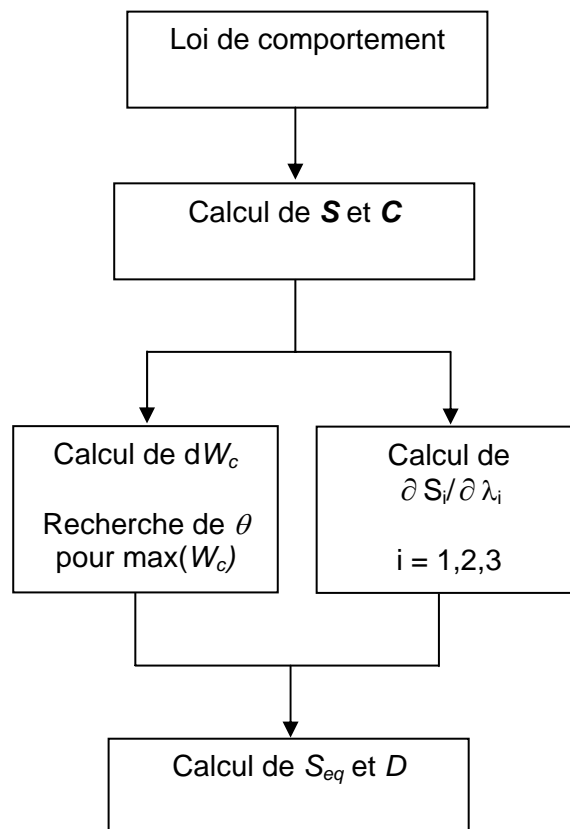


Figure 4.4.5. Algorithme de la subroutine pour le calcul de la contrainte équivalente S_{eq} et de l'endommagement D .

Dans l'algorithme de calculs, à chaque incrément, les déformations et contraintes de chaque nœud de chaque élément de la structure sont utilisées pour le calcul explicite de l'expression de la contrainte équivalente (4.4.32). Au préalable l'angle de la fissure virtuelle est calculé à partir de l'algorithme utilisant le formalisme de Mars. Un résumé de l'algorithme utilisé est présenté schématiquement à la figure 4.4.5.

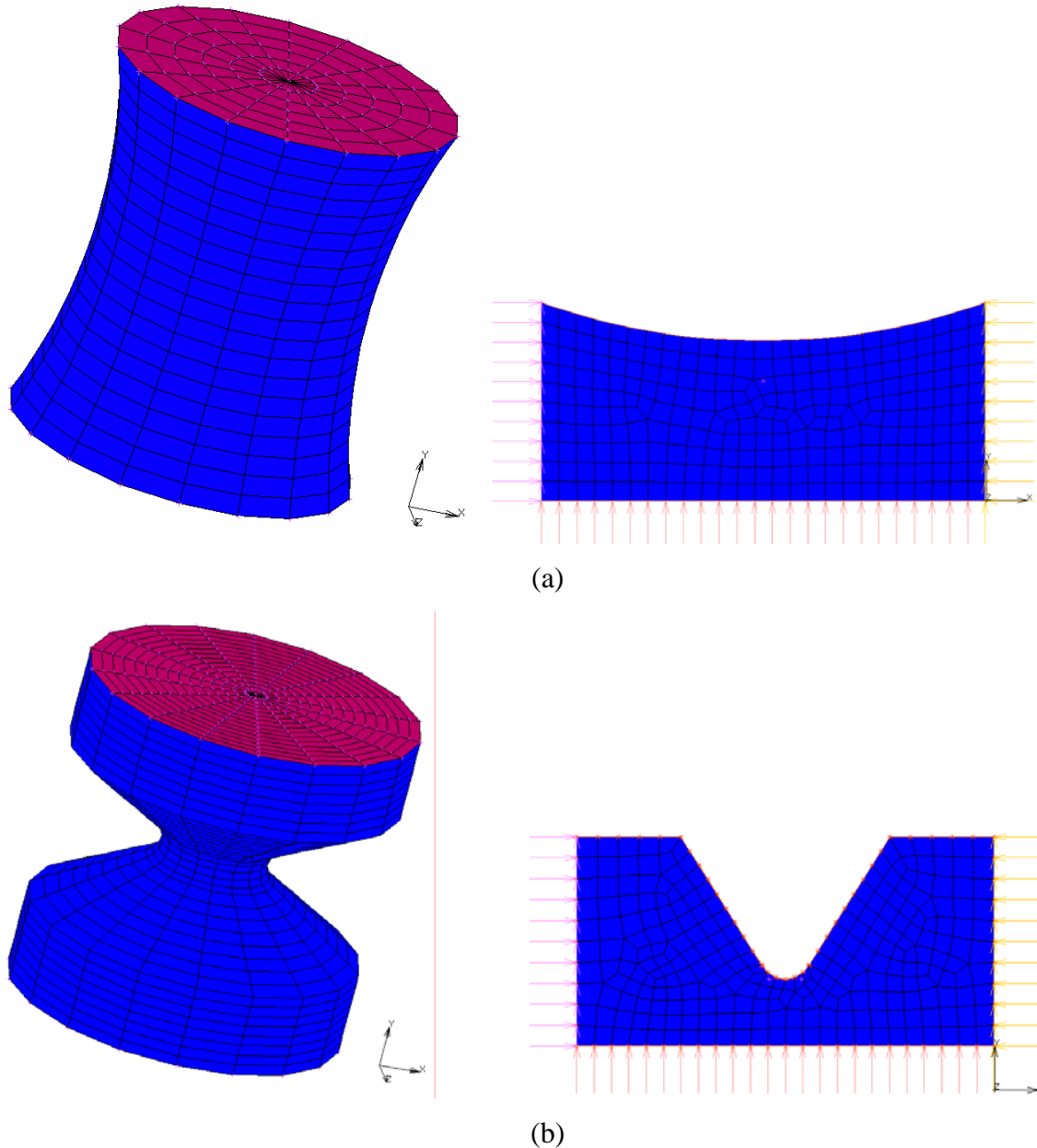


Figure 4.4.6. Maillage et conditions aux limites pour l'éprouvette : (a) AE42, (b) AE2.

Les éprouvettes utilisées dans cette étude présentent une symétrie de révolution permettant éventuellement d'envisager une modélisation 2D axisymétrique. Dans notre travail, les calculs par éléments finis ont été effectués aussi bien sur des modèles 2D ou 3D et nous avons

bien vérifié que les résultats obtenus sont identiques pour les deux modèles. Les modèles éléments finis utilisés pour les calculs sont montrés dans la figure 4.4.6.

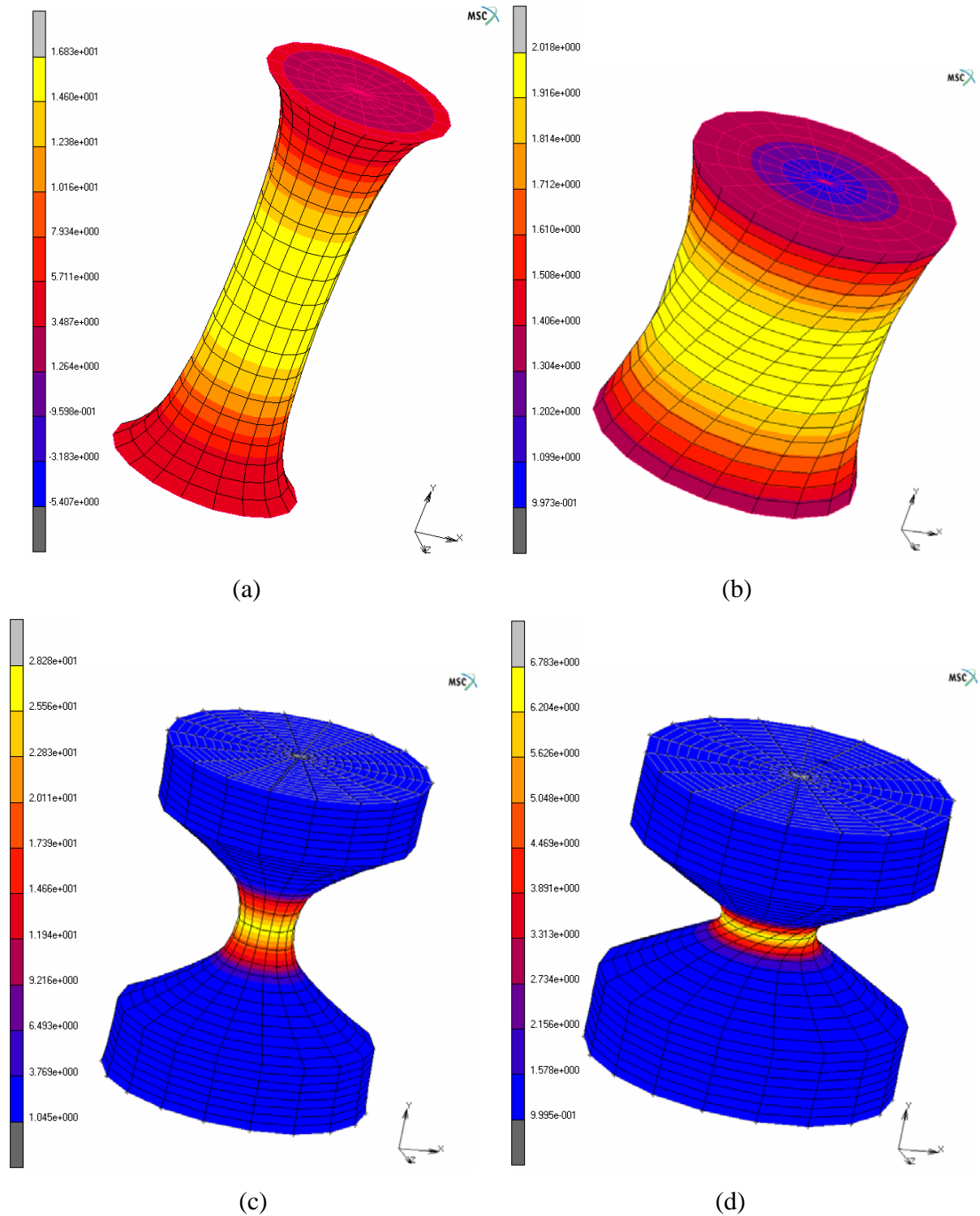


Figure 4.4.7. Répartition des isovaleurs de la contrainte équivalente S_{eq} en traction et en torsion pour : l'éprouvette AE42 sous (a) un chargement de traction (déplacement de 28 mm) et (b) un chargement de torsion (angle de 60°), et l'éprouvette AE2 sous (c) un chargement de traction (déplacement de 10 mm) et (d) un chargement de torsion (angle de 60°).

Concernant les modèles 3D, deux surfaces rigides, sur lesquelles le chargement est appliqué, ont été créées sur chacune des extrémités des éprouvettes et collées au corps déformable. Cette méthode permet d'appliquer de manière plus efficace le chargement en torsion. Pour le modèle 2D, l'axe d'axisymétrie est l'axe x (l'axe horizontale), le chargement étant appliqué sur les nœuds de chaque extrémité. Des éléments quadrilatère à huit nœuds (3D) et à quatre nœuds (2D) de type Herrmann ont été utilisés pour mailler les deux structures, dont le nombre a été optimisé de telle manière à les minimiser tout en s'assurant que la réponse macro expérimentale est bien reproduite.

La contrainte effective est extraite au centre de l'échantillon là où elle est maximale. La figure 4.4.7 montre la répartition de la contrainte effective pour deux modes de chargement pour les deux types d'éprouvettes considérés. On observe que celle-ci est maximale dans la plus petite section et ce, quelque soit le type de chargement.

4.5. Résultats et discussions

La figure 4.4.8 montre l'évolution de la durée de vie en fonction de la nouvelle contrainte équivalente définie par l'équation (4.4.32). Les paramètres d'endommagement a et A de l'équation (4.4.22) sont identifiés de la même manière que celle décrite dans la section 4.1 en utilisant les essais de fatigue en traction. Après identification, les valeurs des paramètres obtenues sont $a = 4,15$ et $A = 6,22$ MPa. La figure met en évidence le caractère prédictif de notre approche puisque les valeurs obtenues pour la torsion (test B) sont en bon accord avec les valeurs prédites. Notons que pour les essais de torsion, une incertitude plus importante sur les valeurs expérimentales du nombre de cycles jusqu'à la rupture, puisqu'elles reposent sur la détection visuelle d'une microfissure de 1 mm. Il convient de noter que, pour certains échantillons testés, la longueur conventionnelle de 1 mm a été dépassée. Dans ces conditions, une correction est apportée en comparant les réponses en termes d'évolution de la force appliquée. Une autre source de dispersion pourrait être due à l'auto-échauffement généralement observé lorsque l'on étudie la fatigue des caoutchoucs. Cet aspect, rappelons-le, a été complètement négligé dans cette étude. Il apparaît également sur la figure que, dans un diagramme bi-logarithmique, l'évolution décrite par l'équation (4.4.22) est linéaire, alors que les données expérimentales suivent une évolution plutôt non linéaire. De plus, le modèle proposé repose également sur l'idée que tout chargement, aussi minime soit il, conduit

inélucltablement à la ruine par fatigue. Or, en fatigue, la limite d'endurance permet d'introduire la notion de durée de vie illimitée.

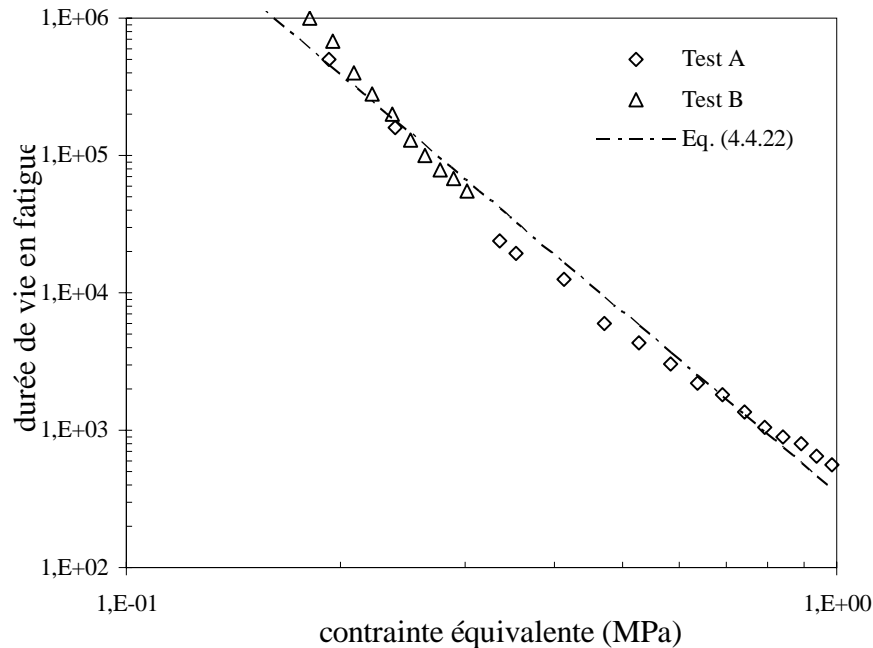


Figure 4.4.8. Évolution de la durée de vie en fonction de la contrainte équivalente issue de l'équation (4.4.32) pour l'éprouvette AE42.

C'est pourquoi nous proposons de prendre en compte cet aspect en introduisant une valeur seuil de contrainte effective en deçà de laquelle il ne peut y avoir d'endommagement. Cette valeur seuil est indirectement reliée à la limite d'endurance. Il est alors nécessaire de modifier l'expression du potentiel de dissipation afin d'intégrer cette notion de seuil. Cette modification est introduite par l'ajout d'une force thermodynamique seuil y_{th} dans le potentiel de dissipation φ^* donné par l'équation (4.4.10). Le terme y_{th} est écrit de la même manière que la force thermodynamique associé à l'endommagement y . Une nouvelle formulation du potentiel de dissipation φ^* est alors proposée :

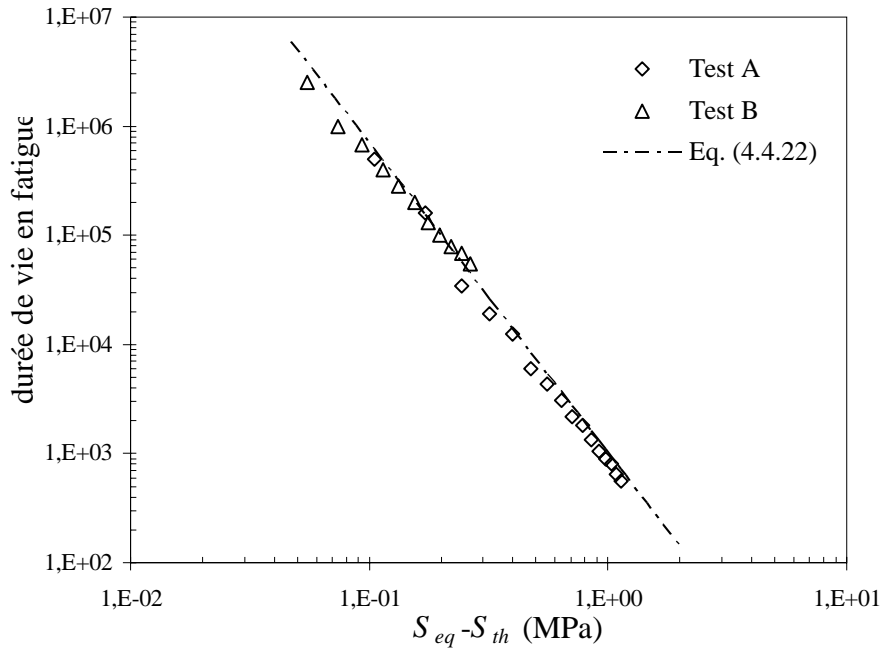
$$\varphi^* = \frac{A}{a+1} \left(\frac{-y + y_{th}}{A} \right)^{a+1} \quad (4.4.33)$$

Ce qui conduit à une nouvelle expression de la durée de vie sous la forme suivante :

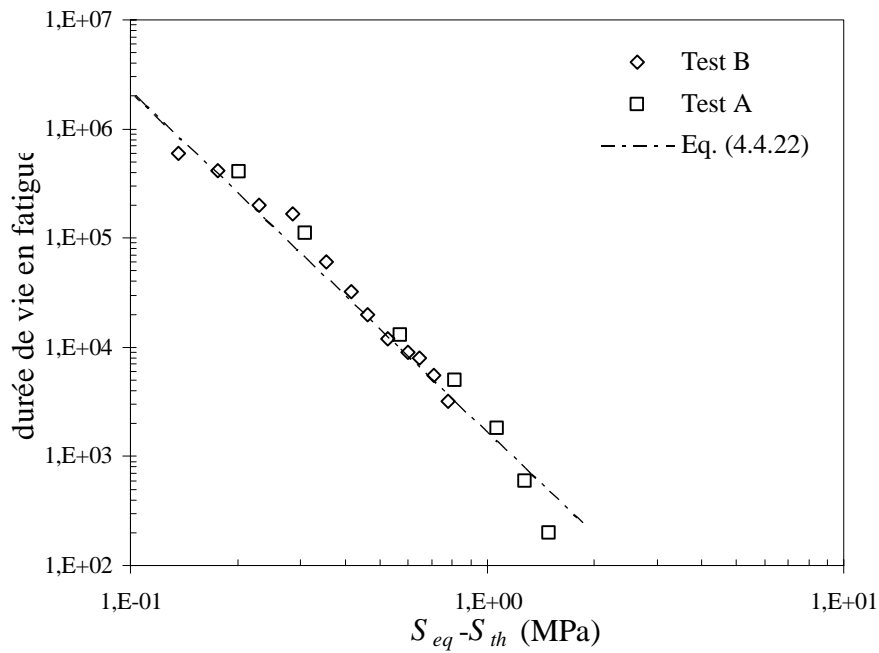
$$N_f = \frac{A^a}{1+a} (S_{eq} - S_{th})^{-a} \quad (4.4.34)$$

où S_{eq} est la contrainte équivalente donnée par l'équation (4.4.32), S_{th} est un seuil correspondant à la valeur de la contrainte équivalente en dessous de laquelle la durée de vie

est théoriquement illimitée, a et A comme déjà mentionné sont des paramètres d'endommagement identifiés à partir des essais de fatigue en traction.



(a)



(b)

Figure 4.4.9. Evolution de la durée de vie en fatigue du SBR en fonction de $S_{eq} - S_{th}$ pour l'éprouvette : (a) AE42, (b) AE2.

Dans ce travail, S_{th} a été estimé expérimentalement à partir d'un essai de fatigue de traction uniaxiale. Pour une elongation $\lambda_1 = 1,18$ pour l'AE42 et $\lambda_1 = 1,25$ pour l'AE2, aucune nucléation de fissure n'a été détectée jusque 5.10^6 cycles. Cette valeur d'étirement a été choisie comme valeur seuil ce qui permet ainsi d'estimer S_{th} . Une fois le seuil estimé, il est facile d'identifier les paramètres a et A du modèle par régression linéaire ($a = 2,84$ et $A = 17,15$ MPa pour l'AE42 et $a = 3,12$ et $A = 17,06$ MPa pour l'AE2).

L'évolution de la durée de vie est tracée en fonction de $S_{eq} - S_{th}$ dans la figure 4.4.9. Cette figure montre clairement que l'introduction d'un seuil permet de linéariser l'évolution des données expérimentales et par conséquent permet également d'améliorer le caractère prédictif du modèle.

Nous avons superposé les résultats obtenus pour les deux types d'éprouvettes à la figure 4.4.10. Si le modèle développé parvient à unifier les données expérimentales pour chacune des géométries prise individuellement, les données pour l'ensemble des géométries sont loin d'être unifiées, même si elles restent relativement proches.

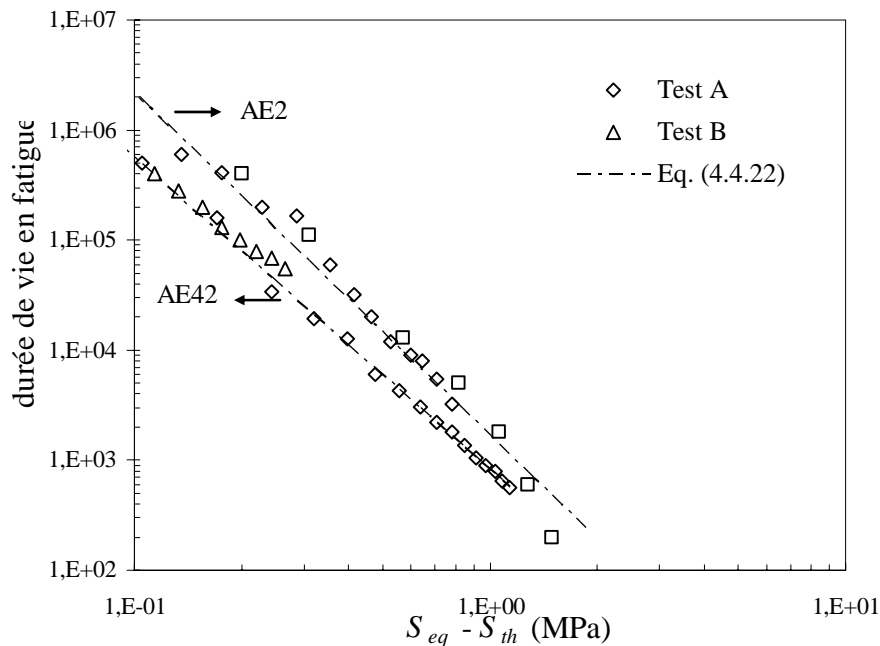


Figure 4.4.10. Comparaison de l'évolution de la durée de vie en fatigue du SBR en fonction de $S_{eq} - S_{th}$ pour les éprouvettes AE42 et AE2.

Une explication à cette divergence peut être liée à la différence d'auto-échauffement entre les deux géométries d'éprouvette. Au cours d'un essai et pour un taux de déformation local équivalent, les deux éprouvettes n'atteignent pas la même température stabilisée en raison de

la différence considérable de volume de matière sollicitée. On pourra ajouter que la capacité dissipative est plus élevée pour l'éprouvette AE2 du fait que seulement la partie centrale de l'éprouvette est sollicitée et le reste de l'éprouvette sert à dissiper la chaleur.

La figure 4.4.10 montre que les différences de durée de vie en fatigue des éprouvettes AE2 et AE42 sont plus élevées pour les faibles déplacements. Ces observations expliquent la différence entre les limites d'endurance entre les deux types d'éprouvettes. Ce phénomène peut être expliqué par l'élévation très rapide de la température pour les grands déplacements et par le fait que la rupture soit atteinte avant la stabilisation de la température.

Pour vérifier ces hypothèses, une étude expérimentale menée à l'aide d'une caméra infrarouge a été entreprise et les résultats présentés à la figure 4.4.11. Afin de faire varier la température stabilisée au centre de l'échantillon, plusieurs fréquences (3, 5, 7 et 9 Hz) ont été considérées. Son effet sur la durée de vie est montré sur cette figure, la durée de vie diminuant avec l'augmentation de la température stabilisée.

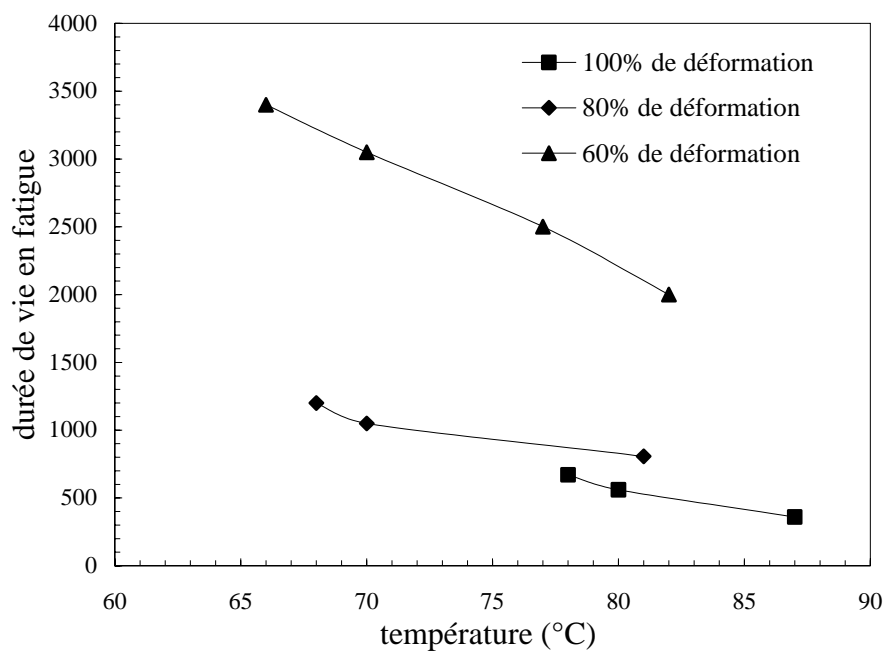


Figure 4.4.11. Effet de la température sur la durée de vie.

Ces observations appuient notre analyse sur la différence des courbes, représentant le nombre de cycle à rupture en fonction de la contrainte équivalente, puisque pour un même niveau de contrainte équivalente la durée de vie pour l'éprouvette AE2 est plus élevée que celle de l'éprouvette AE42. L'effet de la température sur la durée de vie des élastomères n'a pas été étudié dans ce travail. Il convient de préciser qu'il sera important d'intégrer l'effet de la

température sur la durée de vie dans nos équations avant de faire une prédiction de la durée de vie sur des structures à partir d'essais sur des éprouvettes normalisées.

4.6. Extension du modèle avec prise en compte de la « valeur moyenne » du chargement

Dans ce qui précède, nous avons uniquement pris en compte l'effet de l'élongation maximale. Or, il s'avère, qu'une influence notable de la valeur moyenne est souvent observée lorsque l'on étudie la fatigue des élastomères (Mars, 2001). La figure 4.4.12a montre clairement cette dépendance puisqu'une augmentation non linéaire de la durée de vie en fonction de la valeur minimale du chargement est observée. En effet, dans ce cas, nous avons maintenu la valeur maximale constante et fait varier le chargement minimum. Cette dépendance est également illustrée sur la figure 4.4.12b qui représente des résultats obtenus durant des essais à amplitude constante. Nous proposons donc d'enrichir le modèle précédemment décrit pour prendre en compte ces effets. Cela nécessite de corriger l'expression du potentiel de dissipation φ^* .

Pour prendre en compte l'effet non linéaire du déplacement minimum appliqué, comme le montre la figure 4.4.12, il est important de proposer une fonction correctrice dans le potentiel de dissipation φ^* . Cette fonction correctrice doit varier non linéairement avec le déplacement minimum pour reproduire les observations expérimentales. Le développement global suit le même schéma proposé dans le paragraphe 3.1 (le développement détaillé est mis à disposition du lecteur dans l'annexe C). L'expression générale du potentiel de dissipation φ^* est exprimée comme suit :

$$\varphi^* = \frac{A}{a+1} \left(\frac{-y_{\max} + y_{th} + f(R, \lambda_{\text{moy}})}{A} \right)^{a+1} \quad (4.4.35)$$

où a et A sont deux paramètres d'endommagement, y_{\max} est la force thermodynamique associée à l'endommagement calculée avec λ_{\max} , y_{th} est la force thermodynamique associée à l'endommagement seuil et $f(R, \lambda_{\text{moy}}) = cR^b y_{\text{moy}}$ est une fonction qui dépend du rapport $R = \lambda_{\min} / \lambda_{\max}$ (avec λ_{\max} l'élongation maximale de chargement et λ_{\min} l'élongation minimale de chargement) et de la force thermodynamique moyenne associée à l'endommagement

calculée avec $y_{moy} = (y_{max} + y_{min})/2$. Les termes b et c sont des paramètres matériaux identifiés avec des taux R différents.

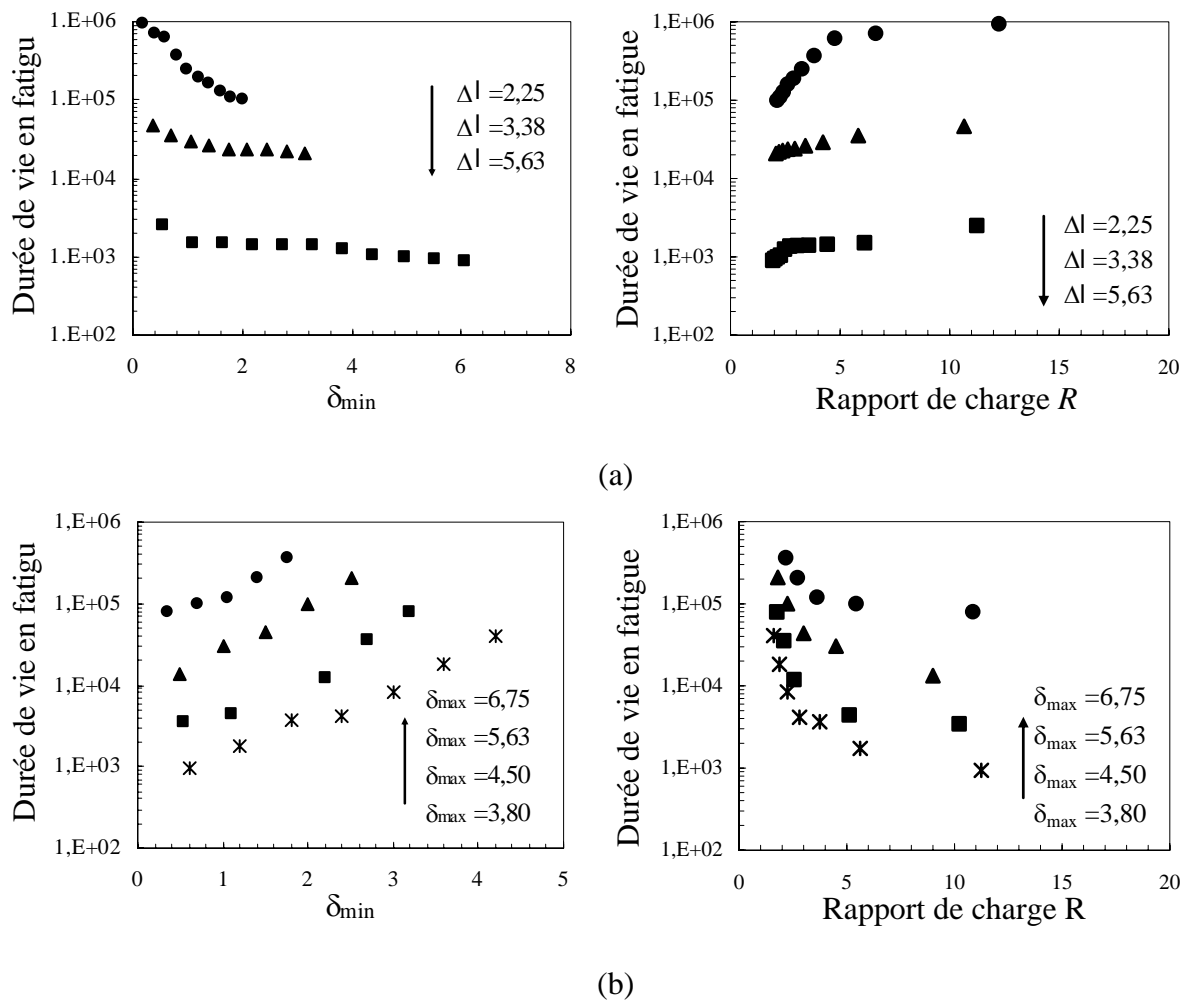
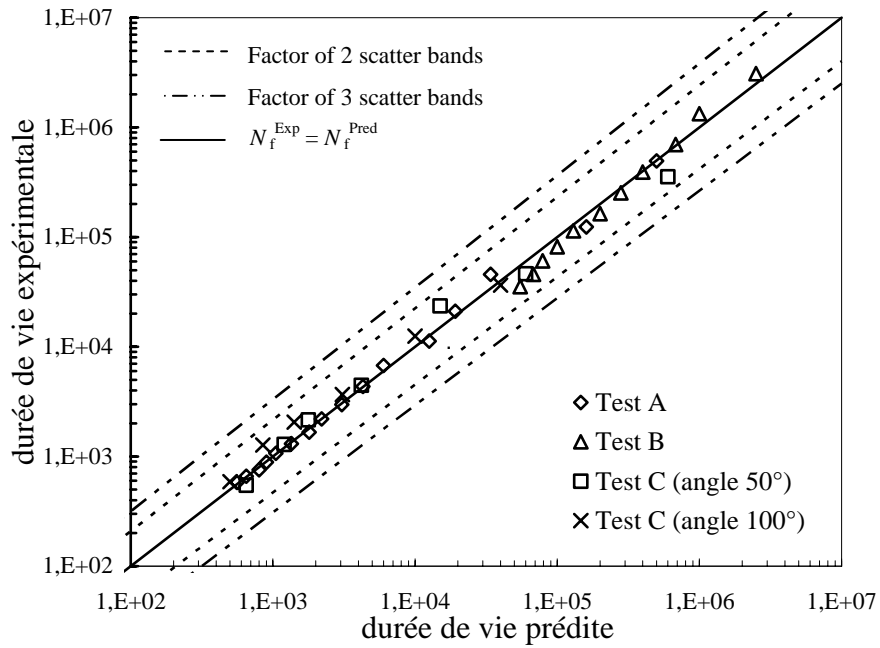


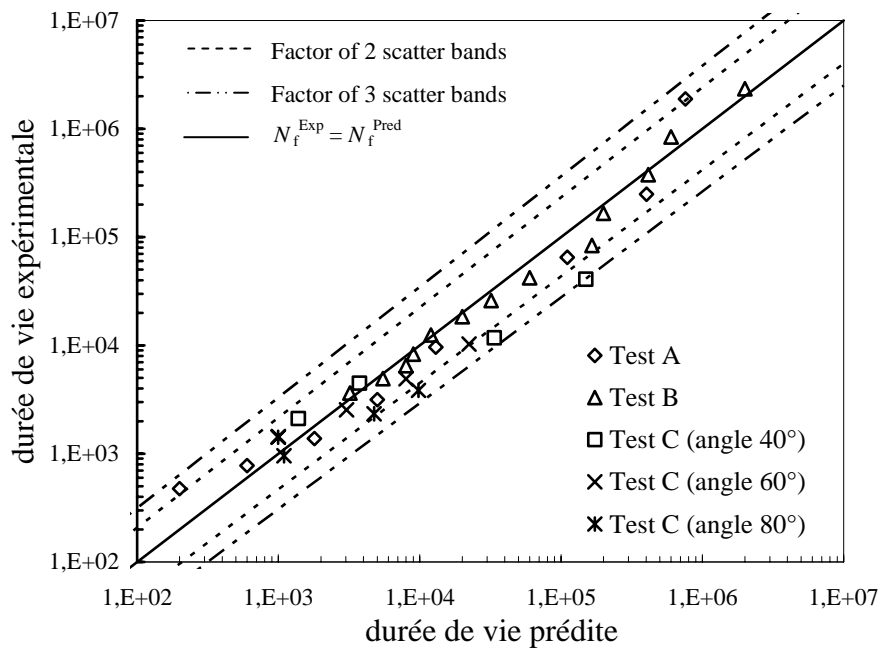
Figure 4.4.12. Durée de vie en fatigue du SBR en fonction du déplacement minimal pour des essais de traction : (a) amplitude constante, (b) déplacement maximal constant.

L'évolution de la variable d'endommagement D en fonction de la durée de vie par fatigue normalisée N/N_f est la même que celle montrée sur la figure 4.4.1. La durée de vie correspondant à l'endommagement atteignant sa valeur maximale 1, $D = D_f = 1$ et $N = N_f$ peut être exprimée sous la forme suivante :

$$N_f = \frac{A^a}{1+a} (S_{eqmax} - S_{th} - cR^b S_{eqmoy})^{-a} (1 - cR^b)^{-1} \tag{4.4.36}$$



(a)



(b)

Figure 4.4.13. Comparaison entre les durées de vie en fatigue prédites et les résultats expérimentaux (voir les tableaux 4.2.2 et 4.2.4 pour la signification des codes des tests) pour l'éprouvette : (a) AE42, (b) AE2.

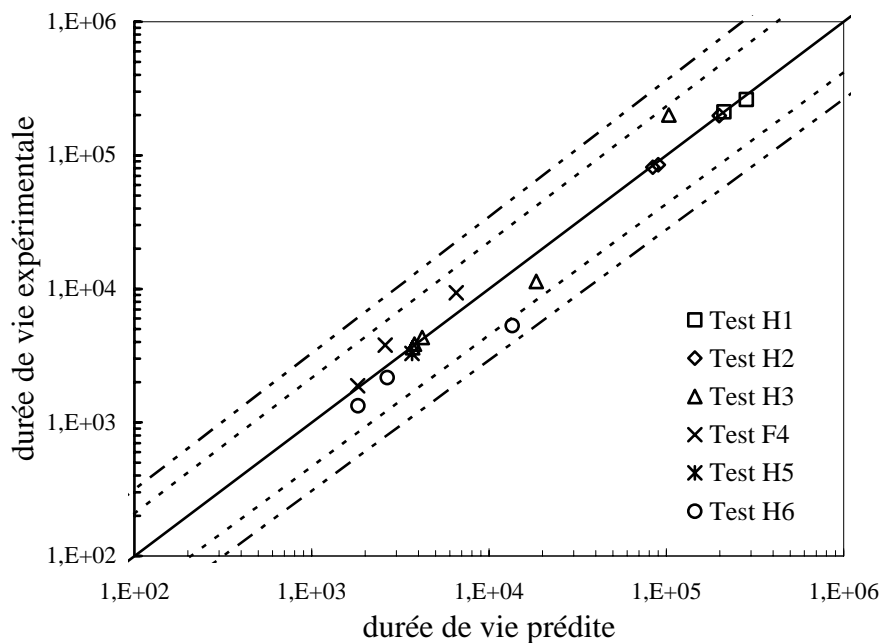
L'identification des paramètres d'endommagement a et A du modèle d'endommagement continu pour la prédiction de la durée de vie en fatigue est possible en utilisant l'équation

(4.4.36) linéarisée pour des chargements à $R = 0$, les paramètres b et c avec cette même équation pour des chargements à $R \neq 0$.

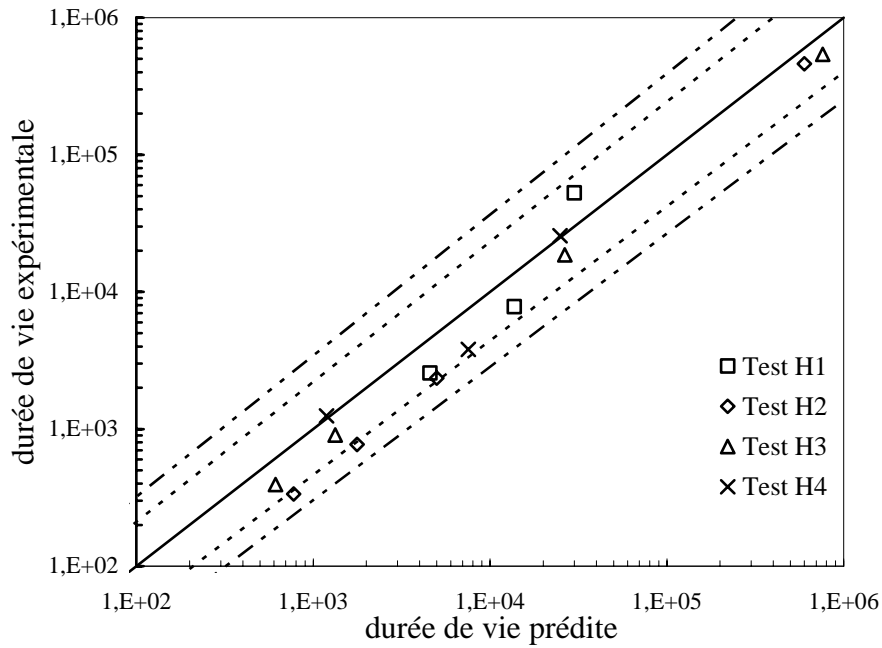
$$\log(N_f) = -a \log(S_{eq_{max}} - S_{th} - R^b S_{eq_{moy}}) + \log\left(\frac{A^a}{1+a}\right) - \log(1 - cR^b) \quad (4.4.37)$$

En utilisant ces valeurs identifiées, la figure 4.4.13 présente une comparaison entre les prédictions du modèle proposé et les données expérimentales de la durée de vie en fatigue sous des conditions de chargement d'amplitude constante correspondant aux essais A, B et C. Les données sont tracées dans un diagramme avec la durée de vie en fatigue expérimentale en ordonné et la durée de vie par fatigue prédite en abscisse. Les données sont disposées autour de la ligne médiane prouvant la validité de notre modèle.

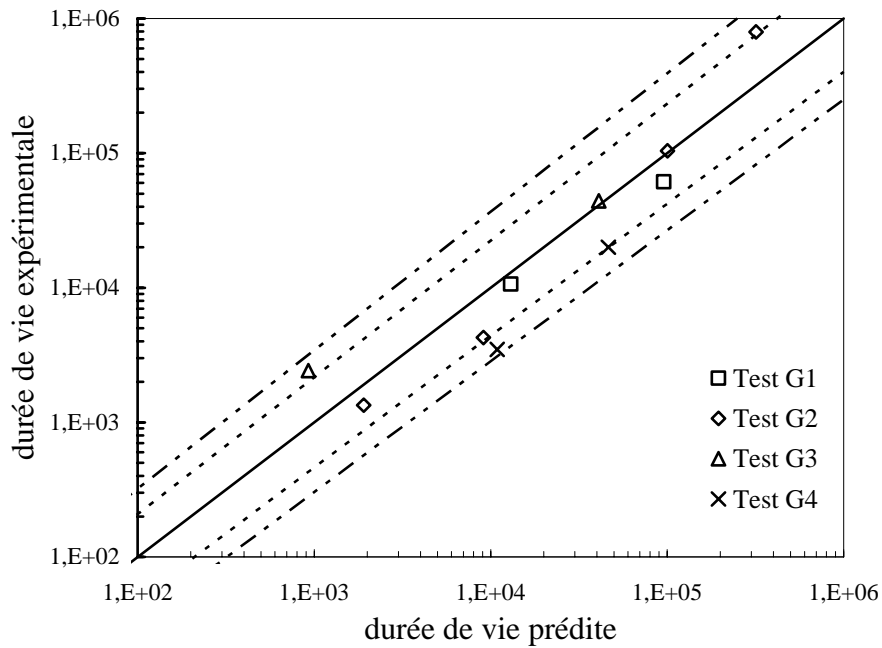
En outre, afin de vérifier encore plus loin sa capacité de prédiction, le critère a également été comparé à des données expérimentales plus discriminantes issues de conditions de chargement G et H, respectivement, en torsion et en traction pour les deux géométries d'éprouvettes. Afin de tenir compte de la non linéarité de l'endommagement, des chargements haut-bas (HL) et des chargements bas-haut (LH) ont été appliqués. Il est intéressant de remarquer que les configurations LH conduisent à des durées de vie en fatigue plus élevées que celles en HL. Les résultats sont présentés sur la figure 4.4.14. Une fois encore, on peut constater un assez bon accord entre les valeurs prédites et expérimentales.



(a)

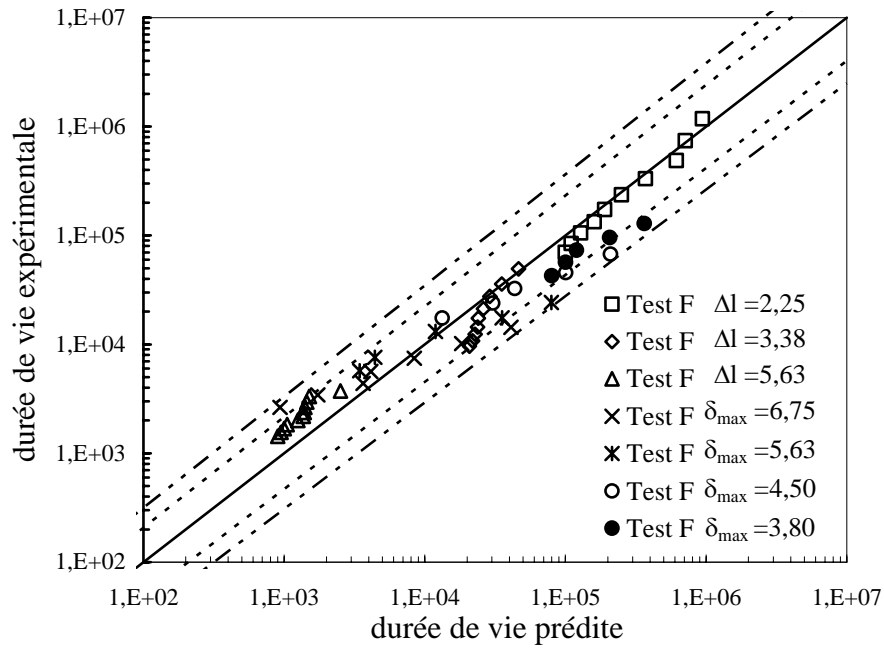


(b)

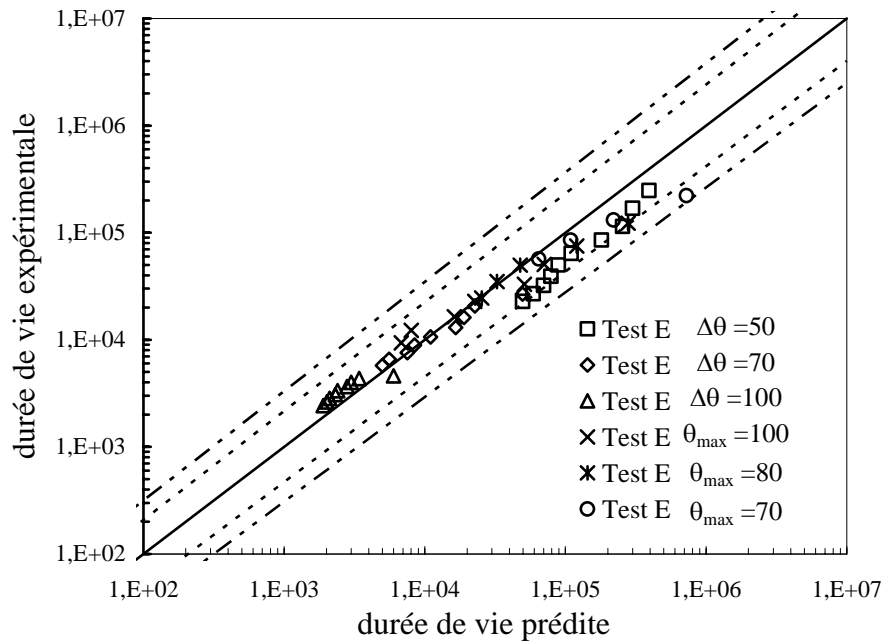


(c)

Figure 4.4.14. Comparaison entre les durées de vie en fatigue prédites et les résultats expérimentaux pour les essais de fatigue à amplitudes variables (voir les tableaux 4.2.3 et 4.2.5 pour la signification des codes des tests) pour : (a) l'éprouvette AE42 sous un chargement de traction uniaxiale, (b) l'éprouvette AE2 sous un chargement de traction uniaxiale, (c) l'éprouvette AE2 sous un chargement en torsion.



(a)



(b)

Figure 4.4.15. Comparaison entre les résultats de la prédiction et les résultats expérimentaux de la durée de vie en fatigue incluant les effets du rapport R (voir le tableau 4.2.6 pour la signification des codes des tests) pour l'éprouvette AE2 : (a) traction, (b) torsion.

Le critère a été comparé à des données expérimentales issues de conditions de chargements E et F, respectivement, en torsion et en traction pour les éprouvettes AE2. Afin de tenir compte

de l'endommagement non linéaire induit par un chargement avec un déplacement minimum $\delta \neq 0$, les paramètres b et c ont été identifiés sur le chemin de chargement F ($b=0,5$ et $c=0,6$) et la prédiction vérifiée sur le chemin de chargement E. La figure 4.4.15 montre les capacités prédictives du modèle. On peut constater un assez bon accord entre les valeurs prédites et expérimentales, disposées autour d'une ligne médiane.

5. Remarques et conclusions partielles

Dans le présent chapitre, un nouveau modèle de prédiction de la durée de vie en fatigue des élastomères dans des conditions de chargements multiaxiaux a été proposé. Le modèle est basé sur le cadre de la mécanique de l'endommagement continu (Lemaitre et Chaboche, 1994) et la densité d'énergie de fissuration (Mars, 2001; 2002). Inhérent à sa construction mathématique, l'outil développé à partir du couplage entre un modèle d'endommagement continu et la densité d'énergie de fissuration est à la fois un critère et un modèle d'endommagement cumulatif. La capacité prédictive du modèle a été vérifiée sur des essais de fatigue réalisés sur le SBR sous des conditions de chargement à amplitudes constantes et variables et pour différents rapports R . Il a été constaté que le modèle reproduit de manière satisfaisante la durée de vie en fatigue du matériau étudié pour des chemins de chargement à $R = 0$. La capacité prédictive du modèle a été améliorée par l'introduction d'une valeur seuil de la contrainte équivalente correspondant à la limite d'endurance en dessous de laquelle la durée de vie est considérée comme illimitée. Pour prendre en compte l'effet du rapport R une fonction a été introduite dans le potentiel de dissipation et les résultats de prédiction du modèle ont été comparés à la durée de vie en fatigue, un bon accord a été trouvé.

En plus des constantes matériaux (usuelles) de la loi de comportement, cinq paramètres d'endommagement supplémentaires sont nécessaires pour prédire la durée de vie en fatigue des caoutchoucs. Les paramètres a et A sont déterminés par une simple méthode de régression linéaire sur les essais de fatigue en traction et le paramètre S_{th} est estimé expérimentalement sous la même condition de chargement. Les deux autres paramètres b et c sont identifiés par ajustement sur les résultats des essais de fatigue en traction avec des rapports R variables. Cela rend ce modèle très attrayant, facile à mettre en œuvre dans un code de calcul par éléments finis pour la conception de structures plus complexes.

Chapitre 4. Prédiction de la durée de vie en fatigue multiaxiale des polymères

Afin d'améliorer la modélisation, il pourrait être pertinent pour de futurs travaux de prendre en compte les effets visqueux, responsable de l'auto-échauffement en utilisant par exemple le formalisme présenté dans le chapitre précédent. La dépendance à la température de la loi constitutive pourrait être aussi une contrainte qui nécessite d'être prise en compte. Par ailleurs, d'autres types de chargement comme la compression mériteraient d'être étudiés avec le formalisme présenté ici. Des résultats préliminaires sur ce chargement particulier sont présentés en annexe E.

Conclusions et perspectives

Le présent travail s'inscrit dans le cadre de l'étude du comportement des matériaux polymères sous des chargements monotones et cycliques et la prédiction de leur durée de vie en fatigue.

Le comportement viscoélastique-viscoplastique des matériaux polymères a été étudié ces dernières années, le plus souvent sous des chargements monotones. Cependant, un nombre limité de modèles de comportement se base sur la structure macromoléculaire des polymères pour décrire leur comportement, la majorité des modèles étant phénoménologiques et de fait applicables pour des cas particuliers de chemins de chargement. C'est la raison pour laquelle notre étude s'est particulièrement portée sur l'approche physique, ayant l'avantage de s'appuyer sur des éléments de la microstructure pour décrire le comportement macroscopique.

La prédiction de la durée de vie en fatigue des matériaux polymères a fait l'objet de nombreuses études récemment sur des élastomères chargés naturels ou synthétiques. Une étude bibliographique attentive nous permet de conclure que la plupart des études sur la fatigue des matériaux polymères ont proposé des critères de fatigue sans pouvoir prendre en compte un quelconque cumul d'endommagement. Pourtant, les pièces industrielles, notamment celles de l'automobile et de l'aéronautique, sont soumises à des sollicitations cycliques à des niveaux de chargements variables, nécessitant une loi de cumul (non linéaire) pour prédire leur durée de vie en fatigue. C'est pourquoi nos efforts se sont également portés sur la proposition d'un modèle de prédiction de la durée de vie en fatigue des polymères, plus particulièrement des élastomères.

Dans une première partie de ce travail (chapitres 2), le comportement mécanique en grandes déformations de polymères a été étudié. Nous avons mis en particulier en évidence leur dépendance au temps et à la déformation sous des chargements uniaxiaux, cycliques et en fatigue jusqu'à la rupture. Les matériaux de l'étude étaient du PE à différents taux de cristallinité. Le comportement en grandes déformations du PE a été mesuré avec un contrôle local de la vitesse de déformation vraie à l'aide d'un système d'extensométrie sans contact et les résultats ont été analysés en termes de cristallinité et de chargements appliqués. Une étude quantitative de la morphologie cristalline a été réalisée à travers des analyses en RX, DMA et DSC. Des observations AFM ont permis d'observer qualitativement l'influence de la cristallinité sur la morphologie des différents PE. Enfin, l'effet de la cristallinité sur le comportement mécanique a pu être dégagé. Le PE se comporte comme un système composite à deux phases : comme un élastomère à de faibles fractions de la phase cristalline pour passer à une réponse typique d'un thermoplastique aux plus hautes fractions. Afin de reproduire ce comportement un modèle à deux phases a été proposé. La

Conclusions et perspectives

construction mathématique du modèle suppose que la résistance à la déformation dans le polymère semi-cristallin est la somme d'une partie réseau et une partie intermoléculaire supposée elle-même être un couplage entre une résistance cristalline et amorphe. Les capacités prédictives du modèle ont pu être clairement démontrées. Afin de prendre en compte dans le modèle hyperélastique-viscoplastique, la non linéarité en décharge également en petites déformations, la composante viscoélastique a été introduite dans le modèle. Un bon accord a été trouvé en comparant les résultats de nos simulations à des observations expérimentales obtenues sur un PEHD. Bien qu'appliqué à des matériaux de type PE, la formulation développée est suffisamment générale pour être appliquée à d'autres polymères semi-cristallins sous des essais de type charge-décharge.

Le comportement en fatigue d'un polymère au comportement élastomérique de type SBR chargé de noir de carbone a été étudié dans le chapitre 3. Une série d'essais cycliques à vitesse de déformation constante jusqu'à rupture et pour différents niveaux de déformation a été effectuée dans le but de suivre le comportement mécanique endommagé du SBR. Les résultats expérimentaux ont montré que la réponse mécanique du SBR est non seulement fortement non linéaire, mais se caractérise aussi par une dissipation d'énergie et la détérioration des propriétés mécaniques sous chargements cycliques. Il a été aussi observé que sous des essais charge-décharge, l'évolution de la contrainte maximale normalisée, ne dépend que du taux d'endommagement supporté par l'échantillon. Trois zones d'endommagement différentes ont pu être identifiées et associées à une évolution de la microstructure au cours de la fatigue. Un modèle d'altération du réseau macromoléculaire a été proposé afin de capturer l'évolution du comportement sous chargement cyclique du SBR. Les capacités prédictives du modèle ont été clairement démontrées. En plus des trois paramètres de la loi de comportement visco-hyperélastique du matériau vierge, la prédiction de la réponse constitutive des matériaux élastomères endommagés en fatigue nécessite seulement cinq paramètres d'endommagement supplémentaires.

Bien que très prometteuse cette approche ne permet pas de prédire la durée de vie en fatigue, puisque le nombre de cycles à rupture est une donnée d'entrée. Afin de palier à ce cela nous nous sommes proposés d'étudier un critère de durée de vie en fatigue du SBR. Deux géométries d'éprouvettes axisymétriques ont été utilisées de manière à localiser l'initiation des fissures dans la plus petite section. Des chemins de chargements à amplitudes constantes et variables en traction, torsion et traction-torsion combinée ont été réalisés sur le SBR. Un modèle basé sur le cadre de la mécanique de l'endommagement continu de Lemaitre et Chaboche (1994) et la densité d'énergie de fissuration de Mars (2001; 2002) a été proposé. De part sa construction, le modèle proposé est à

Conclusions et perspectives

la fois un critère et un modèle d'endommagement cumulatif. Nous avons montré que le modèle reproduit de manière satisfaisante la durée de vie en fatigue du matériau sous des conditions de chargements à amplitudes constantes et variables et pour différents rapports de chargement R . Six paramètres d'endommagement, en plus des constantes pour la réponse constitutive, sont nécessaires pour prédire la durée de vie par fatigue des caoutchoucs. Deux paramètres sont déterminés par une simple méthode de régression linéaire sur les essais de fatigue en traction, le troisième est estimé expérimentalement sous la même condition de chargement et les trois autres paramètres sont identifiés par ajustement sur les résultats des essais de fatigue en traction avec un rapport R variable.

Les travaux sur chacun des aspects précédents menés au cours de ces trois dernières années soulèvent évidemment un certain nombre de questions.

A court terme, l'étude du comportement des PE sous chargement en fatigue pourra être menée et analysée avec le formalisme développé dans ce travail. Toutefois, l'influence de la taille et la distribution des cristallites sur le comportement mécanique des matériaux semi-cristallins n'ont pas été examinée avec le modèle développé puisque aucune longueur caractéristique n'a été introduite. Bien que, les phases aient été supposées isotropes, les simulations du modèle reproduit correctement les observations expérimentales. Cependant, il est maintenant bien établi que la phase cristalline est intrinsèquement anisotrope. Il faut ajouter aussi que l'anisotropie induite par la déformation due à la modification morphologique ne peut être ignorée. À cet égard, une formulation de type composite plus complexe doit être utilisée pour proposer, en relation avec le comportement mécanique macroscopique en grandes déformations, une description plus réaliste de la microstructure initiale et de son évolution. Ces points particuliers constituent des perspectives intéressantes qui devront être étudiées à plus ou moins long terme.

La théorie présentée dans ce manuscrit est limitée aux processus isotherme. La dépendance à la température du comportement mériterait cependant d'être prise en compte. Dans le but d'améliorer l'étude sur la fatigue des élastomères, il pourrait être important de prendre en compte les effets visqueux, responsable de l'auto-échauffement.

Annexe A. Cadre thermodynamique des modèles

Les bases thermodynamiques des différents modèles présentés dans ce document sont décrites brièvement dans cette annexe.

On appelle, dans la cinématique des transformations finies, le passage $\mathbf{x} = \boldsymbol{\varphi}(\mathbf{X}, t) : B_0 \rightarrow \mathbb{R}^3$ d'un point matériel labellisé \mathbf{X} dans la configuration de référence B_0 à sa position actuelle \mathbf{x} dans la configuration déformée B . On désigne le gradient de déformation par :

$$\mathbf{F} = \nabla \boldsymbol{\varphi}(\mathbf{X}, t) \quad (\text{A.1})$$

où $J = \det \mathbf{F} > 0$ est le Jacobien. La dérivée temporelle du gradient de déformation est :

$$\dot{\mathbf{F}} = \mathbf{L}\mathbf{F} \quad (\text{A.2})$$

où $\mathbf{L} = \nabla \mathbf{v}$ est le gradient de la vitesse spatiale $\mathbf{v} = \dot{\boldsymbol{\varphi}}\boldsymbol{\varphi}^{-1}$.

Pour un processus isotherme, le second principe de la thermodynamique restreint le modèle proposé par l'inégalité dite de Clausius-Duhem :

$$\dot{\mathcal{D}} = -\dot{\Psi} + \mathbf{S} : \frac{1}{2} \dot{\mathbf{C}} = -\dot{\Psi} + \mathbf{T} : \mathbf{D} \geq 0 \quad (\text{A.3})$$

où \mathcal{D} et Ψ sont respectivement les fonctions de dissipation et l'énergie libre de Helmholtz par unité de volume de référence. Le second terme représente la puissance de la contrainte exprimée en termes du second tenseur des contraintes de Piola-Kirchhoff \mathbf{S} et la dérivée temporelle du tenseur de Cauchy-Green droit $\mathbf{C} = \mathbf{F}^T \mathbf{F}$ (multiplié par un facteur de 0,5) dans la description lagrangienne, ou en termes du tenseur taux de déformation symétrique eulérien $\mathbf{D} = (\mathbf{L} + \mathbf{L}^T)/2$ (avec $\mathbf{L} = \dot{\mathbf{F}}\mathbf{F}^{-1}$) et le tenseur des contraintes de Cauchy \mathbf{T} dans la description eulérienne.

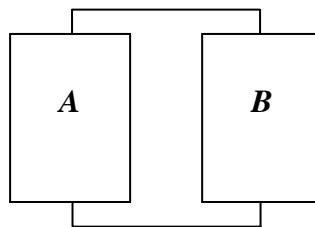


Figure A.1. Cas général d'un modèle constitué de deux branches A et B .

Si on suppose le cas général d'un processus de déformation décomposé en deux branches A et B en parallèles (figure A.1), on peut considérer une répartition additive de la fonction énergie libre de Helmholtz Ψ en deux contributions :

Annexe A

$$\Psi = \Psi_A + \Psi_B \quad (\text{A.4})$$

où Ψ_A et Ψ_B désignent les énergies libres, respectivement, pour les branches A et B .

De la même manière, la contrainte totale de Cauchy \mathbf{T} dans le matériau est la somme des contraintes de Cauchy \mathbf{T}_A et \mathbf{T}_B :

$$\mathbf{T} = \mathbf{T}_A + \mathbf{T}_B \quad (\text{A.5})$$

De plus, le gradient de déformation de chaque partie, \mathbf{F}_A et \mathbf{F}_B , est égal au gradient de déformation totale \mathbf{F} :

$$\mathbf{F} = \mathbf{F}_A = \mathbf{F}_B \quad (\text{A.6})$$

En utilisant les équations (A.3) et (A.4), l'inégalité de Clausius-Duhem devient :

$$\dot{\mathcal{D}} = -(\dot{\Psi}_A + \dot{\Psi}_B) + (\mathbf{T}_A + \mathbf{T}_B) : \mathbf{D} \geq 0 \quad (\text{A.7})$$

Les deux branches du modèle constitutif sont censées être indépendantes. Une forte contrainte peut être donc imposée au modèle proposé en supposant que les deux parties satisfont séparément l'inégalité de Clausius-Duhem. Par conséquent, nous pouvons décrire l'inégalité de dissipation dans le formalisme ci-dessous :

$$\begin{aligned} \dot{\mathcal{D}}_A &= -\dot{\Psi}_A + \mathbf{T}_A : \mathbf{D}_A \geq 0 \\ \dot{\mathcal{D}}_B &= -\dot{\Psi}_B + \mathbf{T}_B : \mathbf{D}_B \geq 0 \end{aligned} \quad (\text{A.8})$$

où la fonction de dissipation $\dot{\mathcal{D}}$ est additivement divisée en deux parties :

$$\dot{\mathcal{D}} = \dot{\mathcal{D}}_A + \dot{\mathcal{D}}_B \geq 0 \quad (\text{A.9})$$

Le cadre est très général et s'applique sur tous les modèles présentés dans ce travail.

Annexe B. Modèle d'Ahzi et al. (2003) et identification

B.1. Modèle d'Ahzi et al. (2003)

Le tenseur taux de déformation inélastiques \mathbf{D}_A^{p-i} de chaque phase est exprimé comme suit :

$$\mathbf{D}_A^{p-i} = \dot{\gamma}_A^{p-i} \frac{\mathbf{T}'_A{}^{-i}}{\sqrt{2}\tau_A^i} \quad (\text{B.1})$$

où τ_A^i est la contrainte de cisaillement effective définie par :

$$\tau_A^i = \left(\frac{\mathbf{T}'_A{}^{-i} \cdot \mathbf{T}'_A{}^{-i}}{2} \right)^{1/2} \quad (\text{B.2})$$

La vitesse de déformation de cisaillement inélastique $\dot{\gamma}_A^{p-i}$, pour les phases amorphe et cristalline, est donnée par l'expression de type Arrhenius proposée par Argon (1973) et modifiée récemment par Boyce et al. (2000) :

$$\dot{\gamma}_A^{p-i} = \dot{\gamma}_{0,A}^i \exp \left[-\frac{\Delta G_A^i (1 - \tau_A^i / s^i)}{k\theta} \right] \quad (\text{B.3})$$

où k est la constante de Boltzmann, θ est la température absolue, $\dot{\gamma}_{0,A}^i$ est le facteur pré-exponentiel proportionnel à la fréquence d'essai, ΔG_A^i est l'énergie d'activation qui doit être surmontée pour que l'écoulement dans la phase i commence et s^i est la résistance au cisaillement. La loi de puissance suivante a été proposée par Ahzi et al. (2003) pour introduire une évolution avec écrouissage :

$$\dot{s}^i = \frac{s^i}{n^i} \left(\frac{s_y^i}{s^i} \right)^{n^i} \dot{\gamma}_A^{p-i} \quad (\text{B.4})$$

où n^i est le coefficient de durcissement et s_y^i est la résistance au cisaillement initial.

B.2. Procédure d'identification

Les données des contraintes d'écoulement expérimentales ont été utilisées pour déterminer simultanément la valeur globale de l'énergie d'activation ΔG_A et celle de la résistance au

Annexe B

cisaillement initial s_y . En fixant le facteur pré-exponentiel $\dot{\gamma}_{0,A}$, l'identification des paramètres ΔG_A et s_y a été réalisée par la méthode des moindres carrés en utilisant la relation suivante :

$$\tau_{y,A} = \frac{s_y k \theta}{\Delta G_A} \ln \left(\frac{\dot{\gamma}_A^p}{\dot{\gamma}_{0,A}} \right) + s_y \quad (\text{B.5})$$

dans laquelle $\dot{\gamma}_A^p$ et $\tau_{y,A}$ ont été estimés, respectivement, comme $\sqrt{3}\dot{\varepsilon}$ et $\sigma_y/\sqrt{3}$, $\dot{\varepsilon}$ étant la vitesse de déformation et σ_y la contrainte d'écoulement mesurée expérimentalement.

La valeur initiale s_y^c de la résistance au cisaillement cristallin est supposée être proportionnelle à celle de la phase amorphe s_y^a :

$$s_y^c = \kappa_{c1} s_y^a \quad (\text{B.6})$$

La valeur initiale s_y^a de la résistance au cisaillement amorphe est donnée par une simple règle de mélange :

$$s_y^a = \frac{s_y}{(\chi_c (\kappa_{c1} - 1) + 1)} \quad (\text{B.7})$$

Les facteurs pré-exponentiels, $\dot{\gamma}_{0,A}^a$ et $\dot{\gamma}_{0,A}^c$, et les énergies d'activation, ΔG_A^a et ΔG_A^c , sont supposés identiques pour les deux phases, à savoir $\dot{\gamma}_{0,A}^a = \dot{\gamma}_{0,A}^c = \dot{\gamma}_{0,A}$ et $\Delta G_A^a = \Delta G_A^c = \Delta G_A$.

Le coefficient de durcissement global n est déterminé à partir des équations (B.3) et (B.4) réarrangées de la façon suivante :

$$\ln(\tau_A) = \frac{1}{n} \ln(\dot{\gamma}_A^p) + \ln(f(\dot{\gamma}_A^p) s_y) \quad (\text{B.8})$$

où

$$f(\dot{\gamma}_A^p) = \frac{k \theta}{\Delta G} \ln \left(\frac{\dot{\gamma}_A^p}{\dot{\gamma}_{0,A}} \right) + 1 \quad (\text{B.9})$$

n étant calculé à partir de la pente des courbes $\tau_A - \dot{\gamma}_A^p$ (tracées en ln - ln). La valeur retenue est la moyenne des valeurs obtenues à des vitesses de déformations différentes.

Les coefficients de durcissement, n^c et n^a , des phases cristalline et amorphe sont donnés par :

$$n^c = \frac{n}{(\chi_c (\kappa_{c2} - 1) + 1)} \quad (\text{B.10})$$

$$n^a = \kappa_{c2} n^c \quad (\text{B.11})$$

κ_{c1} dans (B.6) et κ_{c2} dans (B.11) sont des coefficients de proportionnalité.

Annexe C. Couplage générale entre la mécanique de l'endommagement continu et la densité d'énergie de fissuration pour la prédiction de la durée de vie en fatigue

L'élastomère est supposé comme isotrope, homogène, incompressible et hyperélastique. Le modèle développé dans le présent document est fondé sur un cadre thermodynamique général pour la théorie hyperélastique. Afin de formuler le modèle, le second principe de la thermodynamique, exprimé par l'inégalité de Clausius-Duhem, peut être rappelé :

$$\mathfrak{D} = -\dot{\psi} + \mathbf{S} : \dot{\mathbf{E}} \geq 0 \quad (\text{C.1})$$

où \mathfrak{D} est la dissipation interne, ψ est l'énergie libre de Helmholtz, \mathbf{S} est le second tenseur de contrainte de Piola-Kirchhoff, $\mathbf{E} = (\mathbf{C} - \mathbf{I})/2$ est le tenseur des déformations de Green-Lagrange, $\mathbf{C} = \mathbf{F}^T \mathbf{F}$ est le tenseur de déformation de Cauchy-Green droit et \mathbf{F} est le tenseur gradient de déformation.

En supposant que l'énergie libre de Helmholtz ψ est une fonction de \mathbf{F} , elle est également appelée la fonction de la densité d'énergie de déformation $W : \psi(\mathbf{F}) = W(\mathbf{F})$. L'équation (C.1) peut être réécrite ainsi :

$$\left(\mathbf{S} - \frac{\partial W}{\partial \mathbf{E}} \right) : \dot{\mathbf{E}} \geq 0 \quad (\text{C.2})$$

Le second tenseur de contrainte de Piola-Kirchhoff \mathbf{S} peut être calculé comme suit :

$$\mathbf{S} = \frac{\partial W}{\partial \mathbf{E}} = 2 \frac{\partial W}{\partial \mathbf{C}} \quad (\text{C.3})$$

Ses composantes S_i dans la direction principale prennent la forme suivante :

$$S_i = \frac{1}{\lambda_i} \frac{\partial W}{\partial \lambda_i} \quad (\text{C.4})$$

où λ_i sont les élongations principales du tenseur gradient de déformation \mathbf{F} .

L'initiation, la croissance et la coalescence des micro-défauts conduisent à la dégradation des propriétés des matériaux. L'introduction d'une variable interne dans le modèle de comportement, en définissant l'état d'endommagement localement et en enregistrant son accumulation, permet de capturer le processus de dégradation des propriétés des matériaux. Le tenseur des contraintes

Annexe C

effectif $\tilde{\mathbf{T}}$ est lié au tenseur de contrainte de Cauchy \mathbf{T} en utilisant le concept de la contrainte effective introduite par Lemaitre et Chaboche (1994) :

$$\mathbf{T} = (1 - D)\tilde{\mathbf{T}} \quad (\text{C.5})$$

où D est un scalaire définissant l'évolution de l'endommagement isotrope. La variable d'endommagement D est nul dans l'état initial (matériau vierge) et égale à 1 pour la rupture (lorsqu'une fissure macroscopique est initiée).

L'hypothèse de la déformation d'équivalence (Lemaitre et Chaboche, 1994) indique que le potentiel de l'énergie libre de Helmholtz (la densité d'énergie de déformation dans notre étude) d'un matériau vierge peut être utilisé pour formuler le tenseur de contrainte effectif pour un matériel endommagé, c'est-à-dire $W_0(\lambda_i) = W(\lambda_i, D = 0)$. Il est intéressant de remarquer que la densité d'énergie de déformation actuelle W , en tenant compte des effets de l'endommagement, peut être écrite comme une fonction de la densité d'énergie de déformation W_0 à l'état vierge sous la forme suivante :

$$W(\lambda_i, D) = (1 - D)W_0(\lambda_i) \quad (\text{C.6})$$

L'équation (C.5) peut également être formulée en terme de contraintes principales du second tenseur de Piola-Kirchhoff :

$$\begin{aligned} S_i &= (1 - D)\tilde{S}_i \\ \tilde{S}_i &= \frac{1}{\lambda_i} \frac{\partial W_0}{\partial \lambda_i} \end{aligned} \quad (\text{C.7})$$

où S_i sont les contraintes principales actuelles et \tilde{S}_i sont les contraintes principales effectives.

Dans l'hypothèse d'un endommagement isotrope, l'équation constitutive pour l'évolution de l'endommagement est donnée par (Lemaitre et Chaboche, 1994) :

$$\dot{D} = -\frac{\partial \varphi^*}{\partial y} \quad (\text{C.8})$$

où y est la force thermodynamique associée à l'endommagement et φ^* est le potentiel de dissipation qui peut prendre la forme suivante :

$$\varphi^* = \frac{A}{a+1} \left(\frac{-y_{\max} + y_{th} + cR^b y_{moy}}{A} \right)^{a+1} \quad (\text{C.9})$$

où a , A sont deux paramètres d'endommagement, y_{\max} est la force thermodynamique associée à l'endommagement calculée avec $\lambda_{moy} = (\lambda_{\max} + \lambda_{\min})/2$, y_{th} est la force thermodynamique

Annexe C

associée à l'endommagement seuil et $f(R, \lambda_{\min}) = cR^b y_{moy}$ est une fonction qui dépend du rapport $R = \lambda_{\min} / \lambda_{\max}$ et de l'étirement minimum λ_{\min} . Les termes b et c sont des paramètres matériaux identifiés avec un taux de R différents.

La force thermodynamique associée à l'endommagement y est définie par :

$$-y = \frac{\partial W}{\partial D} = \frac{\partial W}{\partial \lambda_i} \frac{\partial \lambda_i}{\partial D} \quad i = 1, 2, 3 \quad (C.10)$$

La différenciation de \tilde{S}_i dans l'équation (C.7) par rapport à la variable d'endommagement D , conduit à :

$$\frac{\partial \tilde{S}_i}{\partial D} = \frac{S_i}{(1-D)^2} = \frac{\partial \tilde{S}_i}{\partial \lambda_i} \frac{\partial \lambda_i}{\partial D} \quad (C.11)$$

Les équations (C.7) et (C.10) conduit à :

$$\frac{\partial \lambda_i}{\partial D} = \frac{\tilde{S}_i}{(1-D) \frac{\partial \tilde{S}_i}{\partial \lambda_i}} \quad (C.12)$$

En utilisant le même cadre que celui utilisé dans la section 4.1 du chapitre 4 et en remplaçant W par W_c un nouvel indicateur pourrait donc être construits. Il convient de noter que la densité d'énergie de fissuration est une fonction des étirements principaux à savoir $W_c = W_c(\lambda_i, D)$.

La densité d'énergie de fissuration W_c est formulée dans la forme des dérivées partielles par :

$$dW_c = \frac{\partial W_c}{\partial \lambda_1} d\lambda_1 + \frac{\partial W_c}{\partial \lambda_2} d\lambda_2 + \frac{\partial W_c}{\partial \lambda_3} d\lambda_3 \quad (C.13)$$

où :

$$\begin{aligned} \frac{\partial W_c}{\partial \lambda_1} &= \frac{\lambda_1 S_1 \cos^2 \theta}{\cos^2 \theta + B^{-2} \sin^2 \theta} \\ \frac{\partial W_c}{\partial \lambda_2} &= \frac{B \lambda_1 S_2 \sin^2 \theta}{\cos^2 \theta + B^{-2} \sin^2 \theta} \\ \frac{\partial W_c}{\partial \lambda_3} &= \frac{-B^3 \lambda_1^4 S_2 \sin^2 \theta}{\cos^2 \theta + B^{-2} \sin^2 \theta} \end{aligned} \quad (C.14)$$

où θ est l'angle de propagation de la fissure, la valeur maximisant le rapport W_c/W .

Comme la densité d'énergie de fissuration est une fonction des elongations principales et de la variable d'endommagement : $W_c = W_c(\lambda_i, D)$, la force thermodynamique y peut être écrite sous la forme suivante :

Annexe C

$$-y = \frac{\partial W_c}{\partial D} = \frac{\partial W_c}{\partial \lambda_1} \frac{\partial \lambda_1}{\partial D} + \frac{\partial W_c}{\partial \lambda_2} \frac{\partial \lambda_2}{\partial D} + \frac{\partial W_c}{\partial \lambda_3} \frac{\partial \lambda_3}{\partial D} \quad (\text{C.15})$$

En utilisant les équations (C.13) et (C.14), la force thermodynamique associée à l'endommagement y est définie par :

$$-y = \frac{S_{eq}}{1-D} \quad (\text{C.16})$$

S_{eq} est une quantité équivalente à une contrainte, donnée par :

$$S_{eq} = \frac{1}{(\cos^2 \theta + B^{-2} \sin^2 \theta)} \left(\frac{S_1^2 \lambda_1 \cos^2 \theta}{\partial S_1 / \partial \lambda_1} + \frac{S_2^2 B \lambda_1 \sin^2 \theta}{\partial S_2 / \partial \lambda_2} + \frac{-S_3 S_2 B^3 \lambda_1^4 \sin^2 \theta}{\partial S_3 / \partial \lambda_3} \right) \quad (\text{C.17})$$

La force thermodynamique associée à l'endommagement seuil introduite dans le potentiel de dissipation φ^* de l'équation (C.9) est écrit de la même manière que la force thermodynamique associée à l'endommagement y .

Alors la valeur seuil de la contrainte équivalente S_{th} correspondant à la limite d'endurance pour le matériau est introduite. S_{th} est un seuil correspondant à la valeur de la contrainte équivalente en dessous de laquelle la durée de vie est théoriquement illimitée.

La cinétique de l'endommagement est exprimée en utilisant les équations (C.9), (C.10) et (C.17) :

$$\dot{D} = \left(\frac{S_{\max} - S_{th} - cR^b S_{moy}}{A(1-D)} \right)^a (1 - cR^b) \quad (\text{C.18})$$

Sous une condition de chargement cyclique, l'endommagement s'accumule avec le nombre de cycles et l'évolution de l'endommagement dépend de l'amplitude de la déformation. Le taux d'endommagement en fonction du temps \dot{D} peut être représenté en terme de l'évolution de D par rapport au nombre de cycles. Sur la base de cette considération l'évolution de l'endommagement par fatigue avec le nombre de cycles est alors exprimée par :

$$\frac{\partial D}{\partial N} = \left(\frac{S_{\max} - S_{th} - cR^b S_{moy}}{A(1-D)} \right)^a (1 - cR^b) \quad (\text{C.19})$$

Par définition, la variable d'endommagement D est égale à zéro au début du chargement cyclique, c'est-à-dire lorsque $D = D_0 = 0$ lorsque $N = N_0 = 0$, alors la valeur de l'endommagement à tout cycle peut être déterminée par intégration de l'équation (C.19), ce qui donne :

$$\int_{D_0=0}^D (1-D)^a dD = \int_{N_0=0}^N \left(\frac{S_{\max} - S_{th} - cR^b S_{moy}}{A(1-D)} \right)^a (1 - cR^b) dN \quad (\text{C.20})$$

Annexe C

Par conséquent, l'endommagement induits D due aux N cycles est donné par :

$$D = 1 - \left[1 - (1+a) \left(\frac{S_{\max} - S_{th} - cR^b S_{moy}}{A(1-D)} \right)^a (1 - cR^b) N \right]^{\frac{1}{1+a}} \quad (C.21)$$

La durée de vie correspondant à l'endommagement atteignant sa valeur maximale 1, $D = D_f = 1$ et $N = N_f$ peut être exprimée sous la forme suivante :

$$N_f = \frac{A^a}{1+a} (S_{\max} - S_{th} - cR^b S_{moy})^{-a} (1 - cR^b)^{-1} \quad (C.22)$$

L'identification des paramètres d'endommagement a et A du modèle peut être réalisée par simple linéarisation de l'équation (C.22) :

$$\log(N_f) = -a \log(S_{\max} - S_{th} - cR^b S_{moy}) + \log\left(\frac{A^a}{1+a}\right) - \log(1 - cR^b) \quad (C.23)$$

Dans le cas des conditions de chargement à amplitude variable, la variable d'endommagement D_i à une séquence donnée i peut être exprimée en utilisant l'équation (C.19) écrite de la manière suivante :

$$D_i = 1 - \left[(1 - D_{i-1})^{1+a} - (1+a) \left(\frac{S_{\max} - S_{th} - cR^b S_{moy}}{A} \right)^a (1 - cR^b) N_i \right]^{\frac{1}{1+a}} \quad (C.24)$$

Pour les n blocs à différentes amplitudes de chargements successifs, la durée de vie en fatigue $N_f = N_n$ peut être extraite à partir de l'équation générale suivante :

$$\int_{D_0=0}^{D_f=1} (1-D)^a dD = \sum_{i=0}^{n-1} \int_{N_i}^{N_{i+1}} \left(\frac{S_{\max} - S_{th} - cR^B S_{moy}}{A} \right)^a (1 - cR^B) dN \quad (C.25)$$

Annexe D. Prédiction de l'angle de fissuration

Après rupture par fatigue des éprouvettes AE2 des mesures de l'angle de fissuration ont été effectuées à l'aide d'un projecteur de profil de type DynaScan PH400E. La figure D.1 présente une comparaison entre les valeurs trouvées expérimentalement et les valeurs prédites à partir du critère de Mars. La figure montre un accord satisfaisant avec une marge d'erreur inférieure à 50%. Les divergences constatées peuvent être expliquées en partie par l'outil de mesure. En effet, la mesure de l'angle d'initiation sur une éprouvette rompue peut être difficile en raison de la propagation de la fissure et de la rupture pouvant fausser les mesures faites par projection de l'ombre du faciès de rupture.

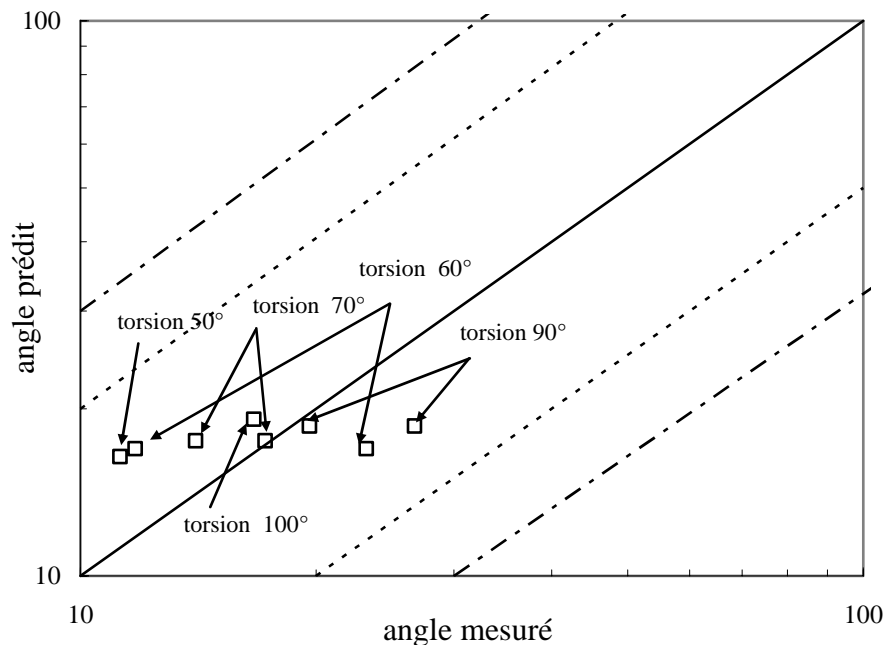
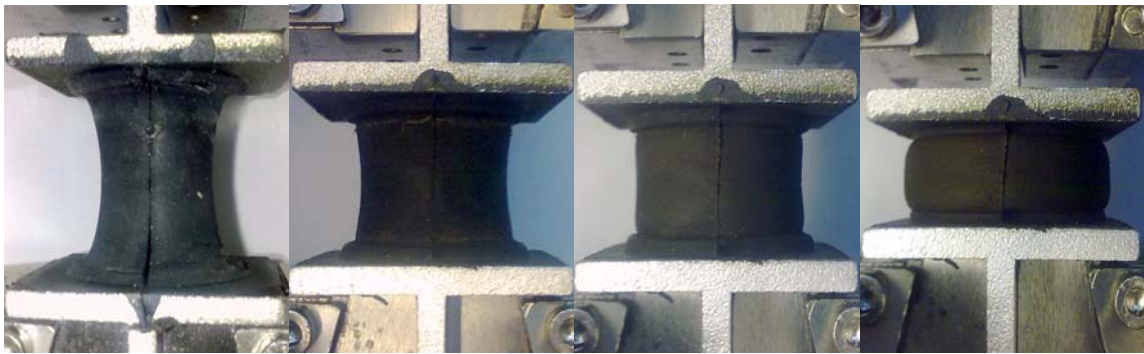


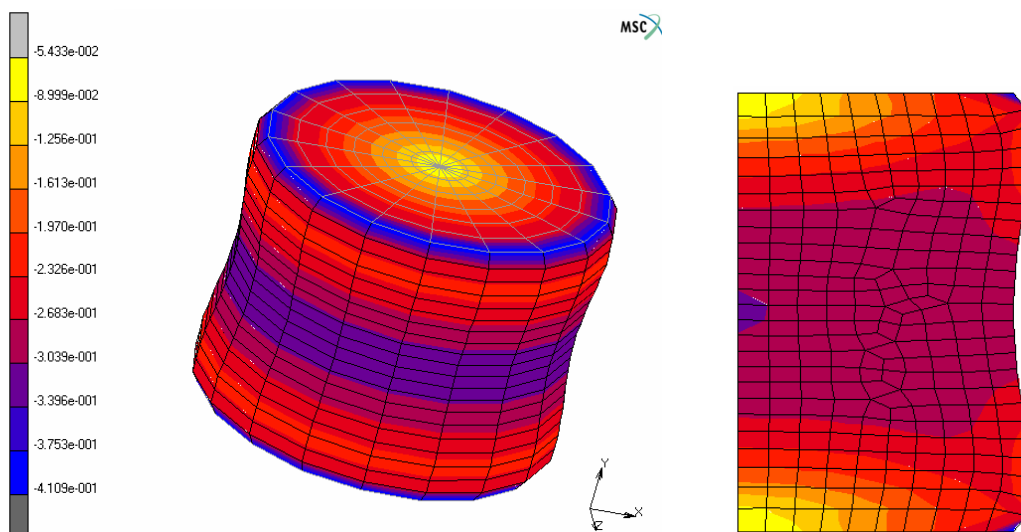
Figure D.1. Comparaison entre l'angle mesuré et l'angle prédit à partir du critère de la densité d'énergie de fissuration.

Annexe E. Analyse des résultats d'essais de fatigue en compression sur le SBR

Dans cette annexe est donnée une brève analyse sur une campagne d'essais de fatigue en compression sur le SBR. Nous n'avons recensé aucune étude traitant de ce problème dans la littérature. L'étude en compression nécessite des éprouvettes correctement dimensionnées ne subissant pas de flambage et permettant une étude sur un large spectre de déformation. La géométrie des éprouvettes AE42 évite le flambage sous un chargement statique et dynamique en compression. L'étude de la durée de vie en fatigue des éprouvettes subissant un chargement en compression nécessite une étude des modes de déformation de l'éprouvette. La figure E.1 montre des images des éprouvettes AE42 subissant un chargement de compression en parallèle avec des simulations numériques de la déformation de ces éprouvettes sous le même type de chargement.



(a)



Annexe E

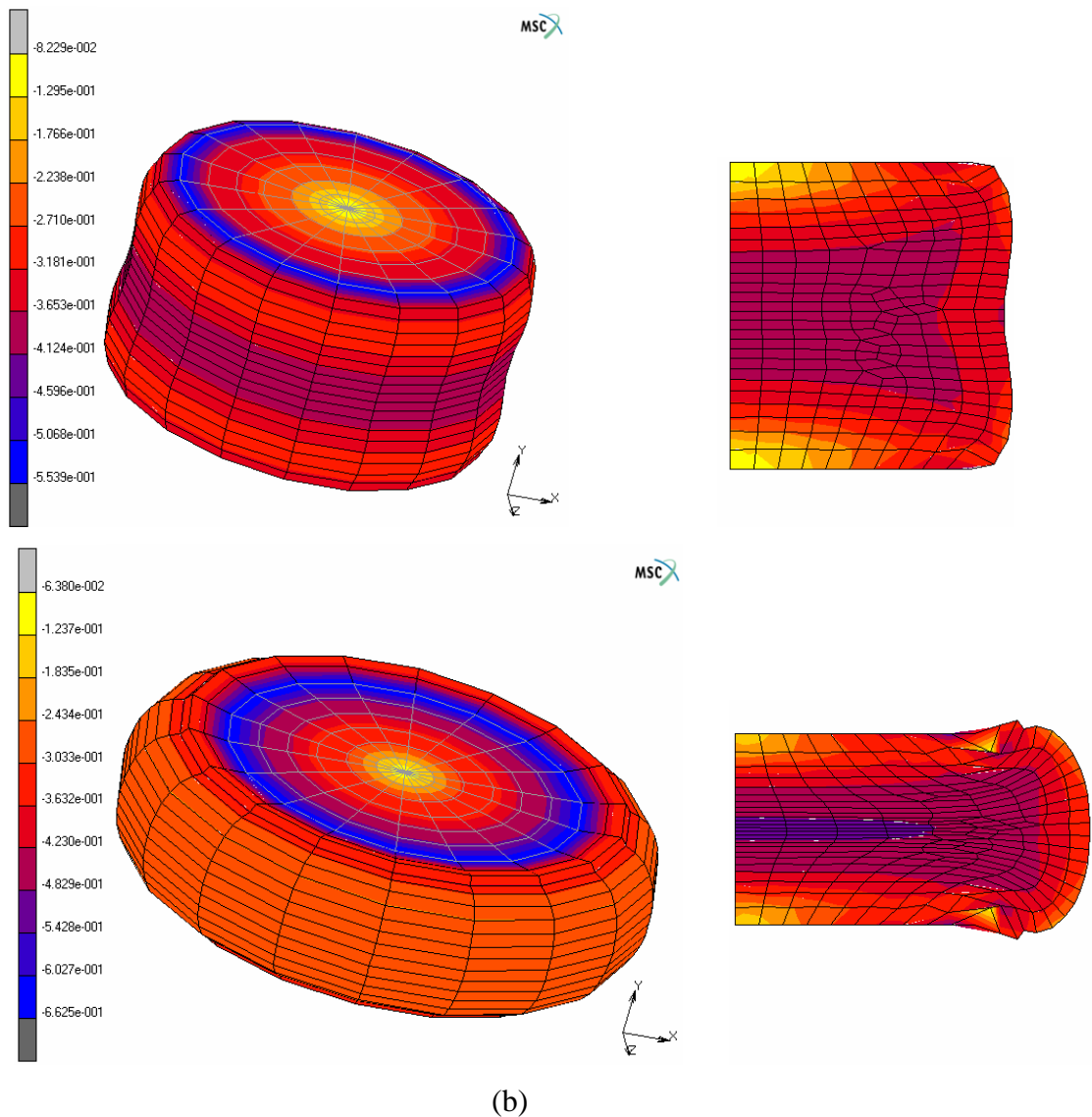
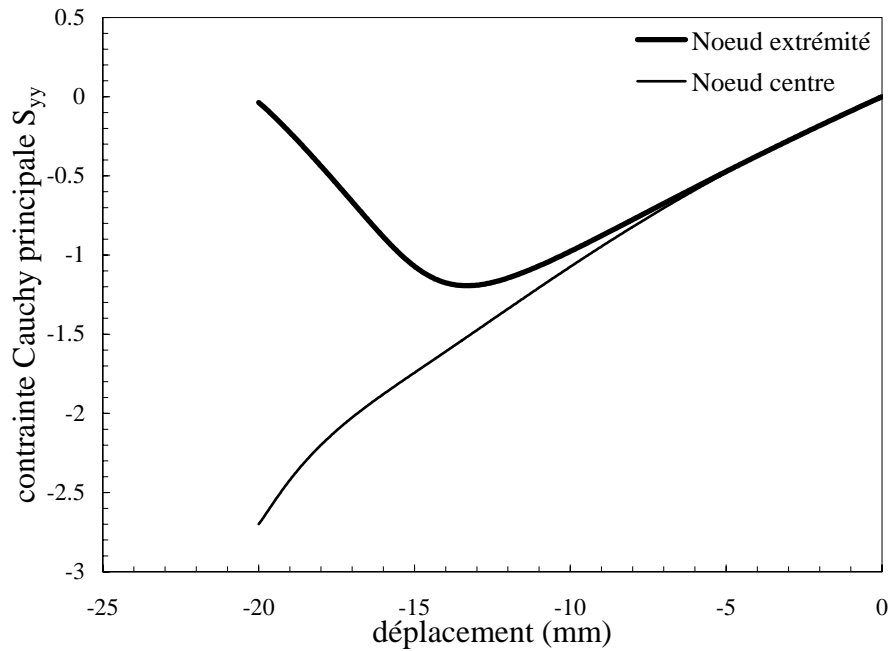
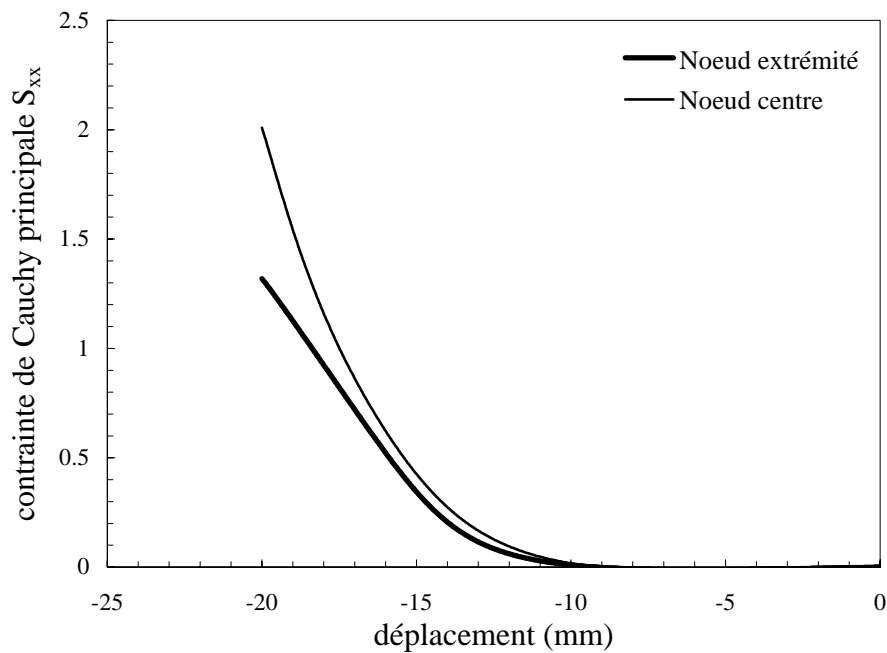


Figure E.1. Suivi de la déformation de l'éprouvette en compression à différents niveaux de déplacement - 8mm, - 12mm, et - 18mm (a) expérience, (b) simulation par éléments finis.

Les simulations numériques de la figure E.1 montrent la déformée des éprouvettes en compression et le champ de la déformation de Green-Lagrange dans la direction du chargement E_{yy} . Il est clairement montré que le champ de déformation et donc le champ des contraintes sont maximaux dans la section du milieu de l'éprouvette, la plus grande section en compression. Les simulations en axisymétriques confirment l'observation précédente et nous permet de conclure que la déformation est maximale au centre de la plus grande section en compression.



(a)



(b)

Figure E.2. Comparaison des résultats de la simulation des contraintes de Cauchy principales entre le nœud du centre et le nœud de l'extrémité : (a) composante S_{yy} et (b) composante S_{xx} .

La figure E.2 montre une comparaison de la contrainte principale de Cauchy dans la direction du chargement S_{yy} à deux nœuds différents de la plus grande section en compression : le milieu de cette section et l'extrémité de la section. Il est clairement montré que la contrainte

Annexe E

de Cauchy est maximale pour le nœud du centre de l'éprouvette. En effet, la contrainte principale de Cauchy est la même pour les deux nœuds jusqu'à un niveau de déplacement égal à - 8mm, l'éprouvette est en compression pure, dépassé ce niveau de déplacement les contraintes de Cauchy à ces deux nœuds divergent, due à une évolution en forme de barillet de l'éprouvette. Le phénomène du gonflement fait que la surface de l'éprouvette est dans un état d'équibiaxialité. Sous des chargements de fatigue en compression les fissures s'initiaient au centre de l'éprouvette et se propagent à l'extérieur dans une direction parallèle à celle du chargement comme le montre la figure 4.2.5c.

Références

- Abraham, F., Alshuth, T., Jerrams, S., 2005. The effect of minimum stress and stress amplitude on the fatigue life of non strain crystallising elastomers. *Materials Design* 26, 239-245.
- Ahzi, S., Makradi, A., Gregory, R.V., Edie, D.D., 2003. Modeling of deformation behavior and strain-induced crystallization in poly(ethylene terephthalate) above the glass transition temperature. *Mechanics of Materials* 35, 1139-1148.
- Aït Hocine, N., Naït-Abdelaziz, M., Mesmacque, G., 1998. Experimental and numerical investigation on single specimen methods of determination of J in rubber materials. *International Journal of Fracture* 94, 321-338.
- Ames, N.M., Srivastava, V., Chester, S.A., Anand, L., 2009. A thermo-mechanically coupled theory for large deformations of amorphous polymers. Part II: Applications. *International Journal of Plasticity* 25, 1495-1539.
- Anand, L., 1979. On the Hencky approximate strain energy function for moderate deformations. *Journal of Applied Mechanics* 46, 78.
- Anand, L., Gurtin, M.E., 2003. A theory of amorphous solids undergoing large deformations, with application to polymeric glasses. *International Journal of Solids and Structures* 40, 1465-1487.
- Anand, L., Ames, N.M., 2006. On modeling the micro-indentation response of an amorphous polymer. *International Journal of Plasticity* 22, 1123-1170.
- Anand, L., Ames, N.M., Srivastava, V., Chester, S.A., 2009. A thermo-mechanically coupled theory for large deformations of amorphous polymers. Part I: Formulation. *International Journal of Plasticity* 25, 1474-1494.
- André N., Cailletaud G., Piques R., 1999. Haigh diagram for fatigue crack initiation prediction of natural rubber components. *Kaut Gummi Kunst* 52, 120-123.
- Argon, A.S., 1973. A theory for the low temperature plastic deformation of glassy polymers. *Philosophical Magazine* 28, 839-865.
- Arruda, E.M., Boyce, M.C., 1993. A three-dimensional constitutive model for the large stretch behavior of rubber elastic materials. *Journal of the Mechanics and Physics of Solids* 41, 389-412.
- Arruda, E.M., Boyce, M.C., Jayachandran, R., 1995. Effects of strain rate, temperature and thermomechanical coupling on the finite strain deformation of glassy polymers. *Mechanics of Materials* 19, 193-212.
- Ayoub, G., Zaïri, F., Naït-Abdelaziz, M., Gloaguen, J.M., 2010. Modelling large deformation behaviour under loading-unloading of semicrystalline polymers: Application to a high density polyethylene, *International Journal of Plasticity* 26, 329-347.
- Bathias, C., Houel, P., Berete, Y.N., Legorju, K., 1998. Damage characterization of elastomeric composites using X-Ray attenuation. In: Reifsnider KL, Dillard DA, Cardon AH (Eds.), *Fatigue and Fracture: Progress in Durability Analysis of Composite Systems*. Balkema, Rotterdam, 103-10.
- Belbachir, S., Zaïri, F., Ayoub, G., Maschke, U., Naït-Abdelaziz, M., Gloaguen, J.M., Benguediab, M., Lefebvre, J.M., 2010. Modelling of photodegradation effect on elastic-viscoplastic behaviour of amorphous polylactic acid films. *Journal of the Mechanics and Physics of Solids* 58, 241-255.
- Ben Hadj Hamouda, H., Laiarinandrasana, L., Piques, R., 2007. Viscoplastic behaviour of a medium density polyethylene (MDPE): Constitutive equations based on double nonlinear deformation model. *International Journal of Plasticity* 23, 1307-1327.
- Bergstrom, J.S., Boyce, M.C., 1998. Constitutive modeling of the large strain time-dependent behavior of elastomers. *Journal of the Mechanical and Physics of Solids* 46, 931-954.
- Bergstrom, J.S., Boyce, M.C., 2000. Large strain time-dependent behavior of filled elastomers. *Mechanics of Materials* 32, 627-644.

Références

- Beatty, J.R., 1964. Fatigue of rubber, rubber chemistry and technology 37, 1341-1364.
- Beatty, M.F., Krishnaswamy, S., 2000. A theory of stress-softening in incompressible isotropic materials. *Journal of the Mechanics and Physics of Solids* 48, 1931-1965.
- Bensason, S., Minick, J., Moet, A., Chum, S., Hiltner, A., Baer, E., 1996. Classification of homogeneous ethylene-octene copolymers based on comonomer content. *Journal of Polymer Science Part B: Polymer Physics* 34, 1301-1315.
- Blanchard, A.F., Parkinson, D., 1952. Breakage of carbon-rubber networks by applied stress. *Industrial Engineering Chemistry* 44, 799-812.
- Bodner, S.R., Partom, Y., 1975. Constitutive equations for elastic-viscoplastic strain-hardening materials. *Journal of Applied Mechanics* 42, 385-389.
- Boyce, M.C., Parks, D.M., Argon, A.S., 1988. Large inelastic deformation of glassy polymers. Part I: rate dependent constitutive model. *Mechanics of Materials* 7, 15-33.
- Boyce, M.C., Socrate, S., Llana, P.G., 2000. Constitutive model for the finite deformation stress-strain behavior of poly(ethylene terephthalate) above the glass transition. *Polymer* 41, 2183-2201.
- Bouasse, H., Carrière, Z., 1903. Courbes de traction du caoutchouc vulcanise. *Ann. Fac. Sciences de Toulouse* 5, 257-283.
- Bueche, F., 1960. Molecular basis for the Mullins effect. *Journal of Applied Polymer Science* 4, 107-114.
- Bueche, F., 1961. Mullins effect and rubber-filler interaction. *Journal of Applied Polymer Science* 5, 271-281.
- Brunac, J. B., Gérardin, O., Leblond, J.B., 2009. On the heuristic extension of Haigh's diagram for the fatigue of elastomers to arbitrary loadings. *International Journal of Fatigue* 31, 859-867.
- Cadwell, S.M., Merrill, R.A., Sloman, C.M., Yost, F.L., 1940. Dynamic fatigue life of rubber. *Industrial and Engineering Chemistry, Analytical Edition* 12, 19-23.
- Chaboche, J.L., 1974. A differential law for nonlinear cumulative fatigue damage. *Materials and Building Research. Paris Institut Technique du bâtiment et des Travaux Publics, Annales de l'UTBTP, HS N°39* 39, 117-124.
- Chadwick, P., 1975. Applications of an energy-momentum tensor in non-linear elastostatics. *Journal of Elasticity* 5, 249-258.
- Chagnon, G., Verron, E., Gornet, L., Marckmann, G., Charrier, P., 2004. On the relevance of continuum damage mechanics as applied to the Mullins effect in elastomers. *Journal of the Mechanics and Physics of Solids* 52, 1627-1650.
- Chagnon, G., Verron, E., Marckmann, G., Gornet, L., 2006. Development of new constitutive equations for the Mullins effect in rubber using the network alteration theory. *International Journal of Solids and Structures* 43, 6817-6831.
- Choy, C.L., Leung, W.P., 1985. Elastic moduli of ultradrawn polyethylene. *Journal of Polymer Science. Part B: Polymer Physics* 23, 1759-1780.
- Clément F., 1999. Etude des mécanismes de renforcement dans les réseaux polydiméthylsiloxane chargés avec de la silice. Thèse de doctorat, Université Paris VI, France.
- Cohen, A., 1991. A Padé approximant to the inverse Langevin function. *Rheologica Acta* 30, 270-273.
- de Gennes, P.G., 1971. Reptation of a polymer chain in the presence of fixed obstacles. *Journal of Chemical Physics* 55, 572-579.
- Colak, O.U., 2005. Modeling deformation behavior of polymers with viscoplasticity theory based on overstress, *International Journal of Plasticity* 21, 145-160.
- Colak, O.U., Dusunceli, N., 2006. Modeling viscoelastic and viscoplastic behavior of high density polyethylene (HDPE). *Journal of Engineering Materials and Technology* 128, 572-578.

Références

- Dahoun, A., Canova, G. R., Molinari, A., Philippe, M. J., G'sell, C., 1991. The modelling of large strain textures and stress-strain relations of polyethylene. *Textures and Microstructures* 14-18, 347-354.
- Diani, J., Gilormini, P., 2005. Combining the logarithmic strain and the full-network model for a better understanding of the hyperelastic behaviour of rubber-like materials. *Journal of the Mechanics and Physics of Solids* 53, 2579-2596.
- Diani, J., Fayolle, B., Gilormini, P., 2009. A review on the Mullins effect. *European Polymer Journal* 3, 601-612.
- Doi, M., Edwards, S.F., 1986. *The theory of polymer dynamics*. Oxford University Press, Oxford.
- Dorfmann, A., Muhr, A., 1999. *Constitutive Models for Rubber*, A.A. Balkema, Rotterdam.
- Drozdov, A.D., Gupta, R.K., 2003. Constitutive equations of finite viscoplasticity of Semicrystalline polymers. *International Journal of Solids and Structures* 40, 6217-6243.
- Drozdov, A.D., Christiansen, J.C., 2008. Cyclic elastoplasticity of solid polymers. *Computational Materials Science* 42, 27-35.
- Drozdov, A.D., Clyens, S., Christiansen, J., 2009. Essential work of fracture and viscoplastic response of a carbon black-filled thermoplastic elastomer. *Engineering Fracture Mechanics* 76, 1977-1995.
- Drozdov, A.D., 2009. Mullins' effect in thermoplastic elastomers: Experiments and modeling. *Mechanics Research Communications* 36, 437-443.
- Dusunceli, N., Colak, O.U., 2006. High density polyethylene (HDPE): experiments and modeling. *Mechanics of Time Dependent Materials* 10, 331-345.
- Dusunceli, N., Colak, O.U., 2008. Modelling effects of degree of crystallinity on mechanical behavior of semicrystalline polymers. *International Journal of Plasticity* 24, 1224-1242.
- Eyring, H., 1936. Viscosity, plasticity, and diffusion as examples of absolute reaction rates. *Journal of Chemical Physics* 4, 283-291.
- Eshelby, J.D., 1951. The force on an elastic singularity. *Proceedings of the Royal Society A* 244, 87-112.
- Fielding, J.H., 1943. Flex life and crystallization of synthetic rubber. *Industrial and Engineering Chemistry* 35, 1259-1261.
- Flory, P.J., Rehner, J., 1943. Statistical mechanics of cross-linked polymer networks. *Journal of Chemistry and Physics* 11, 512-520.
- Flory, P.J., 1944. Network structure and the elastic properties of vulcanized rubber. *Chemical Reviews* 35, 51-75
- Flory, P.J., 1953. Rubber elasticity. *Principles of polymers chemistry*, 432-493.
- Fukahori, Y., 2005. New progress in the theory and model of carbon black reinforcement of elastomers. *Journal of Applied Polymer Science* 95, 60-67.
- Gent, A.N., Thomas, A.G., 1958. Forms of the stored (strain) energy function for vulcanized rubber. *Journal of Polymer Science* 28, 625-628.
- Gent, A.N., Lindley, P.B., Thomas, A.G., 1965. Cut growth and fatigue of rubbers. I. The relationship between cut growth and fatigue. *Journal of Applied Polymer Science* 8, 455-466.
- Ghorbel, E., 2008. A viscoplastic constitutive model for polymeric materials. *International Journal of Plasticity* 24, 2032-2058.
- Govindjee, S., Simo, J.C., 1991. A micro-mechanically based continuum damage model for carbon black-filled rubbers incorporating Mullins' effect. *Journal of the Mechanics and Physics of Solids* 39, 87-112.
- Green, M.S., Tobolsky, A.V., 1946. A new approach to the theory of relaxing polymeric media. *Journal of Chemical Physics* 14, 80-92.
- Griffith, A., 1920. The phenomena of rupture and flow in solids. *Philosophical Transactions of the Royal Society* 21, 163-198.

Références

- G'sell, C., Jonas, J.J., 1981. Yield and transient effects during the plastic deformation of solid polymers. *Journal of Material Science* 16, 1956.
- G'sell, C., Dahoun, A., Favier, V., Hiver, J.M., Philippe, M.J., Canova, G.R., 1997. Microstructure transformation and stress-strain behavior of isotactic polypropylene under large plastic deformation. *Polymer Engineering and Science* 37, 1702-1711.
- G'sell, C., Hiver, J.M., Dahoun, A., 2002. Experimental characterization of deformation damage in solid polymers under tension, and its interrelation with necking. *International Journal of Solids and Structures* 39, 3857-3872.
- Hanson, D.E., Hawley, M., Houlton, R., Chitanvis, K., Rae, P., Orlor, E.B., 2005. Stress softening experiments in silica-filled polydimethylsiloxane provide insight into a mechanism for the Mullins effect. *Polymer* 46, 10989-10995.
- Hasanpour, S., Ziaei-Rad, S., Mahzoon, M., 2009. A large deformation framework for compressible viscoelastic materials: Constitutive equations and finite element implementation. *International Journal of Plasticity* 25, 1154-1176.
- Harbour, R.J., Fatemi, A., Mars, W.V., 2007. Fatigue life analysis and predictions for NR and SBR under variable amplitude and multiaxial loading conditions. *International Journal of Fatigue* 30, 1231-1247.
- Harwood, J.A.C., Mullins, L., Payne, A.R., 1967. Stress softening in rubbers – A review. *Journal of the IRI* 1, 17-27.
- Haudin, J.M., 1995. Structure morphologique des polymères semi-cristallins, dans: Introduction à la mécanique des polymères, édition C. G'Sell et J.M. Haudin, Institut National Polytechnique de Lorraine, 97-115.
- Hausch, H.H., Heymans, N., Plummer, C.J., Decroly, P., 2001. Matériaux polymères propriétés mécanique et physique principe et mise en œuvre. Presse polytechnique et universitaire romandes.
- Haward, R.N., Thackray, G., 1968. The use of a mathematical model to describe isothermal stress-strain curves in glassy thermoplastics. *Proceedings of the Royal Society of London* 302, 453-472.
- Hess, W., Burgess, K., 1963. Reagglomeration as cause of tread groove cracking. *Rubber Chemistry and Technology* 36, 754-776.
- Heuillet, P., Dugautier, L., 1997. Modélisation du comportement hyperélastique des élastomères compacts. *Génie Mécanique des Caoutchoucs et des Elastomères Thermoplastiques*.
- Hoffman, J.D., Williams, G., Passaglia, E., 1966. Analysis of the α , β and γ relaxations in polychlorotrifluoroethylene and polyethylene: dielectric and mechanical properties. *Journal of Polymer Science Part C: Polymer Symposia* 14, 173-235.
- Houwink, R., 1956. Slipping of molecules during the deformation of reinforced rubber. *Rubber Chemistry and Technology* 29, 888-893.
- James, H.M., Guth E., 1943. Theory of the elastic properties of rubber. *Journal of Chemistry and Physics* 10, 455-481.
- Jernigan, R.L., Flory, P.J., 1969. Distribution functions for chain molecules. *Journal of Chemical Physics* 50, 4185-4200.
- Johnson, M.A., Beatty, M.F., 1993. The Mullins effect in uniaxial extension and its influence on the transverse vibration of a rubber string. *Continuum Mechanics and Thermodynamic* 5, 83-115.
- Kachanov L.M., 1986. Introduction to continuum damage mechanics. Martinus Nijhoff, the Netherlands.
- Kausch, H.H., Heymans, N., Plummer, C.J.G., Decroly, P. 2001. Matériaux polymères : propriétés mécaniques et physiques. Presses Polytechniques et Universitaires Romandes.
- Khan, A., Zhang, H., 2001. Finite deformation of a polymer: experiments and modeling. *International Journal of Plasticity* 17, 1167-1188.

Références

- Khan, A.S., Lopez-Pamies, O., Kazmi, R., 2006. Thermo-mechanical large deformation response and constitutive modeling of viscoelastic polymers over a wide range of strain rates and temperatures. *International Journal of Plasticity* 22, 581-601.
- Khan, F., Krempl, E., 2006. Amorphous and semicrystalline solid polymers: Experimental and modeling studies of their inelastic deformation behaviors. *Journal of Engineering Materials and Technology* 128, 64-72.
- Kim, T.W., Jeong, H.Y., Choe, J.H., Kim, Y.H., 2005. Prediction of the fatigue life of tires using CED and VCCT. *Key Engineering Materials* 297, 102-107.
- Kienzler, R., Herrmann, G., 1997. On the properties of the Eshelby tensor. *Acta Mechanica*. 125, 73-91.
- Klenke, D., Beste, A., 1987. Ensurance of the fatigue life of metal-rubber components. *Kaut Gummi Kunst* 40, 1067-1071.
- Kraus, G., Childers, C.W., Rollman, K.W., 1966. Stress softening in carbon black reinforced vulcanizates. Strain rate and temperature effects. *Journal of Applied Polymer Science* 10, 229-240.
- Krempl, E., McMahon, J.J., Yao, D., 1984. Viscoplasticity based on overstress with a differential growth law for the equilibrium stress. *Mechanics of Materials* 5, 35-48.
- Krempl, E., Ho, K., 2000. An overstress model for solid polymer deformation behavior applied to Nylon 66. *ASTM STP* 1357, 118-137.
- Kuhn, W., Grun, F., 1942. Beziehungen zwischen elastischen konstanten und dehnungsdoppelbrechung hochelastischer stoffe. *Kolloid-Zeitschrift* 101, 248-271.
- Lake, G.J., Lindley, P.B., 1965. The mechanical fatigue limit for rubber. *Journal of Applied Polymer Science* 9, 1233-1251.
- Laiarinandrasana, L., Besson, J., Lafarge, M., Hochstetter, G., 2009. Temperature dependent mechanical behaviour of PVDF: Experiments and numerical modelling. *International Journal of Plasticity* 25, 1301-1324.
- Le Cam, J.B., Huneau, B., Verron, E., Gornet, L., 2004. Mechanism of fatigue crack growth in carbon black filled natural rubber. *Macromolecules* 37, 5011-5017.
- Lee, E.H., 1969. Elastic-plastic deformation at finite strains. *Journal of Applied Mechanics*, 36, 1-6.
- Lee, M.P., Moet, A., 1993. Analysis of fatigue crack propagation in NR/BR rubber blend. *Rubber Chemical Technology* 66, 304-316.
- Lee, B.J., Parks, D.M., Ahzi, S., 1993a. Micromechanical modeling of large plastic deformation and texture evolution in semi-crystalline polymers. *Journal of the Mechanics and Physics of Solids* 41, 1651-1687.
- Lee, B.J., Argon, A.S., Parks, D.M., Ahzi, S., Bartczak, Z., 1993b. Simulation of large strain plastic deformation and texture evolution in high density polyethylene. *Polymer* 34, 3555-3575.
- Lemaitre, J., Chaboche, J.L., 1978. Aspect phénoménologique de la rupture par endommagement. *Journal Mécanique Appliquée* 2, 317-365.
- Lemaitre, J., Chaboche, J. L. 1988. *Mécanique des Matériaux Solides*. Dunod, 2, Paris.
- Lemaitre, J., Chaboche, J.L., 1994. *Mechanics of Solid Materials*. Cambridge University Press, Cambridge.
- Lu, C., 1991. Etude du comportement mécanique et des mécanismes d'endommagement des élastomères en fatigue et en fissuration par fatigue. Thèse de doctorat, Conservatoire National des Arts et Métiers, Paris, France.
- Lubliner, J., 1985. A model of rubber viscoelasticity. *Mechanics Research Communications* 12, 93-99.
- Makradi, A., Ahzi, S., Gregory, R.V., Edie, D.D., 2005. A two-phase self-consistent model for the deformation and phase transformation behavior of polymers above the glass transition temperature: application to PET. *International Journal of Plasticity* 21, 741-758.

Références

- Marckmann, G., Verron, E., Gornet, L. Chagnon, G., Charrier, P., Fort, P., 2002. A theory of network alteration for the Mullins effect. *Journal of the Mechanics and Physics of Solids* 50, 2011-2028.
- Martinovs, A., Gonca, V., 2006. Method of forecasting of mechanical properties and durations of service life of details from rubber. 5th International DAAAM Baltic Conference.
- Mars, W.V., 2001. Multiaxial fatigue of rubber. PhD Thesis, University of Toledo, USA.
- Mars, W.V., Fatemi, A., 2004. Observations of the constitutive response and characterization of filled natural rubber under monotonic and cyclic multiaxial stress states. *Journal of Engineering Materials and Technology* 126, 19-28.
- Mars, W.V., 2005. Cracking energy density as a predictor of fatigue life under multiaxial conditions. *Rubber Chemistry and Technology* 75, 1-17.
- Mars, W.V., Fatemi, A., 2002. A literature survey on fatigue analysis approaches for rubber. *International Journal of Fatigue* 24, 949-61.
- Martinon, P., 1998. Caractéristiques des élastomères. *Techniques de l'ingénieur, Traité des Constantes Physico-Chimiques*. K2, Doc. K 380, 1-11.
- Maugin, G.A., 1995. *Material Inhomogeneities in Elasticity*. Chapman and Hall, London.
- Miner, M.A., 1945. Cumulative damage in fatigue. *Journal of Applied Mechanics* 6, 159-164.
- Miehe, C., 1995. Discontinuous and continuous damage evolution in Ogden-type large strain elastic materials. *European Journal of Mechanics A/Solids* 14, 697-720.
- Mooney, M., 1940. A theory of large elastic deformation. *Journal of Applied Physics* 11, 582-592.
- Mullins, L., 1948. Effect of stretching on the properties of rubber. *Rubber Chemistry and Technology* 21, 281-300.
- Mullins, L., 1957. Softening of rubber by deformation, *Rubber Chemistry and Technology* 30, 551-571.
- Mullins, L., Tobin, N.R., 1957. Theoretical model for the elastic behavior of filler-reinforced vulcanized rubbers. *Rubber Chemistry and Technology* 30, 551-571.
- Nikolov, S., Doghri, I., 2000. A micro/macro constitutive model for the small-deformation behavior of polyethylene. *Polymer* 41, 1883-1891.
- Nikolov, S., Doghri, I., Pierard, O., Zealouk, L., Goldberg, A., 2002. Multi-scale constitutive modeling for the small deformations of semi-crystalline polymers. *Journal of the Mechanics and Physics of Solids* 50, 2275-2302.
- Ogden, R.W., 1972. Large deformation isotropic elasticity I- On the correlation of theory and experiment for incompressible rubber-like solids. *Proceedings of the Royal Society A* 326, 565-584.
- Petit, G., Barquins, M., 2008. *Matériaux caoutchouteux : Morphologies, formulations, adhérence, glissance et usure*. Presse Polytechnique et Universitaire Romandes.
- Payne, A.P., 1960. A note on the existence of a yield point in the dynamic modulus of loaded vulcanizates. *Journal of Applied Polymer Science* 3, 127-127.
- Peacock, A.J., *Handbook of Polyethylene: Structure, Properties and Applications*. New York : Marcel Dekker, 2001.
- Popelar, C.F., Popelar, C.H., Kenner, V.H., 1990. Viscoelastic material characterization and modeling for polyethylene. *Polymer Engineering and Science* 30, 577-586.
- Popli, R., Mandelkern, L., 1987. Influence of structural and morphological factors on the mechanical properties of the polyethylenes. *Journal of Polymer Science Part B: Polymer Physics* 25, 441-483.
- Qi, H.J., Boyce, M.C., 2004. Constitutive model for stretch-induced softening of the stress-stretch behavior of elastomeric materials. *Journal of the Mechanics and Physics of Solids* 52, 2487-2205.
- Ramier, J., 2004. *Comportement mécanique d'élastomères chargés, influence de l'adhésion charge-polymère, influence de la morphologie*. Thèse de doctorat, Lyon, France.

Références

- Regrain, C., Laiarinandrasana, L., Toillon, S., Saï, K., 2009. Multi-mechanism models for semi-crystalline polymer: Constitutive relations and finite element implementation. *International Journal of Plasticity* 25, 1253-1279.
- Reese, S., Govindjee, S., 1998. A theory of finite viscoelasticity and numerical aspects. *International Journal of Solids and Structures* 35, 3455-3482.
- Rice, J.R., 1968. A path independent integral and the approximate analysis of strain concentration by notches and cracks. *Journal of Applied Mechanics* 35, 379-86.
- Richeton, J., Ahzi, S., Vecchio, K.S., Jiang, F.C., Makradi, A., 2007. Modeling and validation of the large deformation inelastic response of amorphous polymers over a wide range of temperatures and strain rates. *International Journal of Solids and Structures* 44, 7938-7954.
- Rinaldi, R., 2006. Loi physique de comportement des polymères amorphes et intégration dans un code éléments finis. Thèse de doctorat, l'institut national des sciences appliquées de Lyon, France.
- Rivlin, R.S., 1948. Large elastic deformations of isotropic materials IV. Further developments of the general theory. *Philosophical Transactions of the Royal Society of London A241*, 379-397.
- Rivlin, R.S., Thomas, A.G., 1953. Rupture of rubber I. Characteristic energy for tearing. *Journal of Polymer Science* 10, 291-318.
- Ro, H.S., 1989. Modeling and interpretation of fatigue failure initiation in rubber related to pneumatic tires. PhD Thesis, Purdue University, USA.
- Roach, J.F., 1982. Crack growth in elastomers under biaxial stresses. PhD Thesis, University of Akron, USA.
- Rabotnov, Y.N., 1969. Creep problems in structural members. North-Holland, Amsterdam.
- Roberts, B.J., Benzies, J.B., 1977. The relationship between uniaxial and equibiaxial fatigue in gum and carbon black filled vulcanizates. *Proceedings of Rubbercon'77* 2, 1-13.
- Saintier, N., André, N., Cailletaud G., Piques R., 2006. Crack nucleation and propagation under multiaxial fatigue in natural rubber. *International Journal of Fatigue* 28, 61-72.
- Schapery, R.A., 1983. Correspondence principles and a generalized J integral for large deformation and fracture analysis of viscoelastic media. Texas A&M University Report MM 4665-83-7, College Station, Tex.
- Septanika, E.G., Ernst, L.J., 1998. Application of the network alteration theory for modeling the time-dependent constitutive behaviour of rubbers. Part I. General theory. *Mechanics of Materials* 30, 253-263.
- Sidoroff, F., 1974. Un modèle viscoélastique non linéaire avec configuration intermédiaire. *Journal de Mécanique* 13, 679-713.
- Simo, J.C., 1987. On a fully three-dimensional finite-strain viscoelastic damage model: formulation and computational aspects. *Computer Methods in Applied Mechanics and Engineering* 60, 153-173.
- Smith R., and Black A., 1963. Service-induced diffusion and nodule formation in rubber stocks. *Rubber Chemistry and Technology* 37, 338-347.
- Soares, J.B.P., Kim, J.D., Rempel, G.L., 1997. Analysis and control of the molecular weight and chemical composition distributions of polyolefins made with metallocene and ziegler-natta catalysts. *Industrial and Engineering Chemistry Research* 36, 1144-1150.
- Soares, J.B.P., 2001. Mathematical modelling of the microstructure of polyolefins made by coordination polymerization: a review. *Chemical Engineering Science* 56, 4131-4153.
- Stringfellow, R.G., Parks, D.M., Olson, G.B., 1992. A constitutive model for transformation plasticity accompanying strain-induced martensitic transformations in metastable austenitic steels. *Acta Metallurgica et Materialia* 40, 1703-1716.
- Sun, C., Gent, A., Marteny, P., 2000. Effect of fatigue step loading sequence on residual strength. *Tire Science and Technology* 28, 196-208.

Références

- Tomita, Y., 2000. Constitutive modelling of deformation behavior of glassy polymers and applications. *International Journal of Mechanical Science* 42, 1455-1469.
- Treloar, L.R.G., 1973. The elasticity and related properties of rubbers. *Reports on Progress in Physics* 36, 755.
- Treloar, L.R.G., 1975. *The physics of rubber elasticity*. 3rd edition, Oxford University Press.
- Thomas, A.G., 1958. Rupture of rubber. V. Cut growth in natural rubber vulcanizates. *Journal of Polymer Science* 31, 467-80.
- Verron, E., Andriyana, A., 2007. Definition of a new predictor for multiaxial fatigue crack nucleation in rubber. *Journal of the Mechanics and Physics of Solids* 44, 2079-2092.
- van Dommelen, J.A.W., Parks, D.M., Boyce, M.C., Brekelmans, W.A.M., Baaijens, F.P.T., 2003. Micromechanical modeling of the elasto-viscoplastic behavior of semi-crystalline polymers. *Journal of the Mechanics and Physics of Solids* 51, 519-541.
- Wang B, Lu H, Kim GH. 2002. A damage model for the fatigue life of elastomeric materials. *Mechanics of Materials* 34, 475-483.
- Ward, I.M., 1985. *Mechanical Properties of Solid Polymers*. Wiley, New York.
- Wineman, A.S., Huntley, H.E., 1994. Numerical simulation of the effect of damaged induced softening on the inflation of a circular rubber membrane. *International Journal of Solids and Structures* 31, 3295-3313.
- Wu, P.D., van der Giessen, E., 1993. On improved network models for rubber elasticity and their application to orientation hardening in glassy polymers, *Journal of the Mechanical and physics of solids* 41, 427- 456.
- Wu, P.D., van der Giessen, E., 1995. On neck propagation in amorphous glassy polymers under plane strain tension. *International Journal of Plasticity* 11, 211-235.
- Wunderlich, B., 1980. *Macromolecular Physics. Crystal Melting*, vol. 3. Academic Press, New York.
- Yeoh, O.H., 1990. Characterization of the elastic properties of carbon-black-filled rubber vulcanizates. *Rubber Chemistry and Technology* 63, 792-805
- Zaïri, F., Woznica, K., Naït-Abdelaziz, M., 2005a. Phenomenological nonlinear modelling of glassy polymers. *Comptes Rendus Mecanique* 333, 359-364.
- Zaïri, F., Naït-Abdelaziz, M., Woznica, K., Gloaguen, J.M., 2005b. Constitutive equations for the viscoplastic-damage behaviour of a rubber-modified polymer. *European Journal of Mechanics A/Solids* 24, 169-182.
- Zaïri, F., Naït-Abdelaziz, M., Woznica, K., Gloaguen, J.M., 2007. Elasto-viscoplastic constitutive equations for the description of glassy polymers behavior at constant strain rate. *Journal of Engineering Materials and Technology* 129, 29-35.
- Zaïri, F., Naït-Abdelaziz, M., Gloaguen, J.M., Lefebvre, J.M., 2008. Modelling of the elasto-viscoplastic damage behaviour of glassy polymers. *International Journal of Plasticity* 24, 945-965.
- Zhang, C., Moore, I.D., 1997. Nonlinear mechanical response of high density polyethylene. Part II: Uniaxial constitutive modeling. *Polymer Engineering and Science* 37, 413-420.
- Zine, A., 2006a. *Fatigue multiaxiale des élastomères: vers un critère de dimensionnement unifié*, PhD Thesis, University of Lille, France.
- Zine, A., Benseddiq, N., Naït-Abdelaziz, M., Aït Hocine, N., Bouami, D., 2006b. Prediction of rubber fatigue life under multiaxial loading. *Fatigue Fracture of Engineering Materials and Structures* 29, 267-278.

Résumé

Deux types de polymères représentatifs sont étudiés dans cette thèse : un thermoplastique semi-cristallin (le polyéthylène) et un élastomère (le styrène-butadiène SBR).

Pour décrire le comportement mécanique en grandes déformations du polyéthylène, un modèle hyperélastique-viscoplastique à base physique, intégrant de manière explicite l'influence de la cristallinité, a été développé. Ce modèle permet de reproduire aussi bien le comportement mécanique des thermoplastiques (viscoplastique-hyperélastique) que celui plus spécifique des élastomères (visco-hyperélastique). La modélisation du comportement sous chargement cyclique du polyéthylène est ensuite réalisée en incorporant au développement précédent une composante viscoélastique non linéaire.

Afin de décrire le processus d'endommagement sous chargement cyclique multiaxial du SBR, deux approches complémentaires ont été suivies. La première, basée sur une théorie d'altération du réseau macromoléculaire, permet de décrire l'adoucissement cyclique jusqu'à rupture. La confrontation du modèle proposé à des résultats expérimentaux obtenus en chargement uniaxial a mis en évidence la pertinence d'une telle approche. La seconde, basée sur la mécanique de l'endommagement continu, a pour vocation de prédire la durée de vie des élastomères en fatigue multiaxiale sous chargements complexes. Dans cette approche, on dérive la variable d'endommagement à partir de l'énergie de fissuration. Après identification des paramètres d'endommagement sur des essais uniaxiaux, les capacités prédictives du modèle proposé sont mis en évidence sur de essais multiaxiaux, combinant traction et torsion.

Abstract

Two representative polymers are studied in this thesis: a semi-crystalline thermoplastic (polyethylene) and an elastomer (styrene-butadiene rubber SBR).

A physically-based hyperelastic-viscoplastic model integrating the crystallinity effects is proposed to describe the mechanical behavior under large deformation of polyethylene. The capabilities of the proposed model to reproduce the mechanical behavior of typical thermoplastic (viscoplastic-hyperelastic) to the mechanical behavior more typical of elastomers (visco-hyperelastic) are demonstrated. The proposed model is modified by incorporating a non-linear viscous component to capture the mechanical behavior of polyethylene under cyclic loading.

To describe the damage process under multiaxial cyclic loading of SBR, two complementary approaches have been used. The first one, based on the network alteration theory, allows describing the stress-softening until failure. The comparison between the proposed model and experimental results obtained under uniaxial cyclic loading highlighted the relevance of such an approach. The second one, based on the continuum damage mechanics theory, aims to predict the multiaxial fatigue life under complex loadings of rubber-like materials. In this approach, the damage variable is derived from the cracking energy density. After identifying the damage parameters using uniaxial fatigue data, the predictive capabilities of the proposed model are highlighted under multiaxial loadings, combining tension and torsion tests.