

N° d'ordre : 3932

UNIVERSITE DES SCIENCES ET TECHNOLOGIE DE LILLE
LABORATOIRE DE MECANIQUE DE LILLE

THESE

Pour obtenir le grade de

DOCTEUR DE L'UNIVERSITE DE LILLE I

Spécialité Génie Civil

Présentée par

Naïma Belayachi



**Analyse du Comportement des Polymères Chocs avec la prise en compte
de l'endommagement par cavitation**

Soutenue le 05 Décembre 2006

-Jury-

M. Krzysztof Woznica	Professeur, ENSI de Bourges	Rapporteur
M. Said Ahzi	Professeur, Université de Strasbourg	Rapporteur
M. Isam Shahrour	Professeur, Université de Lille	Examineur
M. Thomas Pardoën	Professeur, Université Catholique de Louvain	Examineur
M. Moussa Nait Abdelaziz	Professeur, Université de Lille	Directeur de thèse
M. Nouredine Benseddiq	Maître de conférence, Université de Lille	Co-directeur

Remerciements

Ce travail de recherche a été réalisé au Laboratoire de Mécanique de Lille à l'Ecole Polytechnique Universitaire de Lille.

Je tiens à exprimer ma profonde gratitude et respects, et mes sincères remerciements à mon directeur de thèse, ***Mr. Moussa Nait Abdelaziz***, Professeur à l'Ecole Polytechnique Universitaire de Lille. Mr Nait abdelaziz m'a accueilli dans son équipe et dans le laboratoire, m'a réservé des moments de discussion et m'a facilité les conditions pour mener à bien ce travail dont j'ai tiré un maximum de connaissance, j'en serais éternellement reconnaissante.

J'ai apprécié avec gratitude toute aide scientifique et morale de ***Mr. Noureddine benseddiq***, Maître de conférence l'Ecole Polytechnique Universitaire de Lille. Je le remercie profondément pour son encadrement, ses conseils, et son soutien constant tout au long de ma thèse. Son œil critique m'a été très précieux pour structurer le travail et pour améliorer la qualité des différentes sections. Sa patience et sa sympathie m'ont beaucoup apporté tout au long de ces trois années et m'accompagneront encore longtemps.

Mes remerciements s'adressent aux ***membres du jury*** qui me font l'honneur de participer à l'évaluation de ce travail. Ils ont également contribué par leurs remarques et suggestions à améliorer la qualité de ce mémoire, et je leur en suis très reconnaissante.

Je suis également très touché de compter le Professeur ***Isam Shahrour*** parmi les membres du jury. Son influence auprès de moi a été plus importante qu'il ne le pense. Il m'a transmis l'amour pour la recherche. Il est aussi pour moi un exemple et une source d'inspiration pour l'enseignement et la recherche.

J'adresse mes remerciements à ***Mr Jean-Michel Gloaguen***, du Laboratoire de Structure et propriétés de l'état solide, d'avoir mi à ma disposition le matériau pour réaliser la partie expérimentale de ce travail.

Mes plus chaleureux remerciements à mon mari *Mustapha*. Tout au long de ma thèse, il m'a soutenu, encouragé et aidé surtout dans les moments de découragement. Il a su me donner toutes les chances pour réussir ce travail. Qu'il trouve, dans la réalisation de ce travail l'aboutissement de ses efforts ainsi que l'expression de ma plus affectueuse gratitude.

Je passe ensuite une dédicace spéciale à ma fille, mon rayon de soleil *Lina*, elle a fait preuve d'une patience que peu pourraient accepter. Sa tendresse et son innocence m'ont permis de travailler avec plus de courage et persévérance.

C'est à *mes parents* que j'adresse toute mon affection et ma reconnaissance de m'avoir permis d'en arriver là, et qui m'ont offert l'opportunité de faire des études. Un grand merci bien particulier à ma famille et surtout à *mes frères et sœurs*, qu'ils puissent trouver dans ce travail, le témoignage de mon profond dévouement, respects et gratitude pour leur sacrifices et encouragement.

Je ne terminerais pas mes remerciements sans mes amis, pour tous les bons moments que nous avons passés à polytech-Lille, j'ai apprécié tout particulièrement le soutien de *Souad*, la bonne humeur et les encouragements de *Adel* dans les moments les plus difficiles, la sympathie et la timide présence de *Adil*.

Enfin, que l'ensemble des personnes que je n'aurais pas cité reçoivent mes sincères remerciements.

Résumé

L'objectif de ce travail est la prédiction du comportement mécanique macroscopique d'un matériau composite polymère en prenant en compte les propriétés de sa microstructure. Une des manières les plus fiables pour obtenir une relation quantitative entre différentes échelles est l'utilisation des processus d'homogénéisation. Une méthode numérique d'homogénéisation périodique a été adoptée pour modéliser le comportement mécanique des polymères chocs en grandes déformations. Pour adapter aux grandes déformations le comportement dépendant du temps des matériaux tels que les polymères une description hyperélastique-élastoviscoplastique a été développée. Nous avons choisi un modèle viscoplastique (Perzyna) pour rendre compte du comportement de la matrice amorphe que nous couplons à un modèle hyperélastique pour décrire le comportement de l'élastomère. Le composite étudié de matrice de polyméthacrylate de méthyle (PMMA) fragile renforcé au choc par des particules d'élastomère de polybutadiène et un matériau modèle pour les objectifs de notre travail. L'endommagement par cavitation dans la phase caoutchoutique est un phénomène observé dans de nombreux type de composites multiphases, et que l'on relie à de bonnes propriétés au choc du matériau. Dans une première partie, on s'intéresse au comportement du composite sans endommagement en compression uniaxiale. L'aptitude du modèle constitutif ainsi que la méthode d'homogénéisation à appréhender l'influence de certains paramètres à savoir la fraction volumique des particules, la température et la vitesse de déformation a été mise en évidence en comparant les résultats numériques et expérimentaux. Nous avons étudié par la suite le comportement du composite en prenant en compte la cavitation en traction uniaxiale pour différentes vitesses de déformations. L'apparition de la cavité et son influence sur le comportement global du matériau a été réalisé en couplant le modèle hyperélastique-élastoviscoplastique à trois critères de germination de vide de la littérature basé généralement sur la pression hydrostatique dans la particule d'élastomère (Gent, Fond, et Hou & Abeyratne).

L'approche numérique utilisée dans ce travail a prouvé son efficacité, et sa pertinence pour la prédiction du comportement macroscopique avec des mécanismes microstructuraux assez complexes.

Sommaire

Introduction générale	9
Chapitre 1	
Mécanismes de déformation des composites polymères	13
1.1 Introduction	14
1.2 Généralités sur le comportement mécanique des polymères	15
1.3 Mécanismes de déformation des polymères	20
1.4 Renforcement des polymères par des particules d'élastomères	24
1.4.1 Transition ductile-fragile	25
1.4.2 Phénomène de cavitation, son rôle au renforcement	27
1.4.3 La cavitation à travers les observations expérimentales	29
1.4.4 Paramètres influençant la cavitation	31
<i>Propriétés de l'élastomère</i>	32
<i>Distance interparticulaire</i>	32
<i>Etat de dispersion de particules</i>	34
<i>Taille de particules</i>	35
<i>Adhésion interfaciale</i>	36
1.5 Modélisation du comportement viscoplastique des polymères amorphes	38
1.5.1 Modèles physiques	38
1.5.2 Modèles phénoménologiques	42
1.6 Conclusion	43
Chapitre 2	
Homogénéisation : aspects théoriques et éléments bibliographiques	47
2.1 Introduction	48
2.2 Généralités sur la théorie de l'homogénéisation	48
2.2.1 Séparation des échelles, notion du VER	49
2.2.2 Méthodologie de l'homogénéisation	50
2.2.2.1 Représentation	50
2.2.2.2 Localisation	51
2.2.2.3 Homogénéisation	52
<i>Rappel du lemme de Hill</i>	53

2.2.3	Différentes méthodes d'homogénéisation (Bornes et estimations)	54
2.2.4	Homogénéisation non linéaire	56
2.2.5	Homogénéisation des milieux périodiques	57
2.2.5.1	Cellule de base	58
2.2.5.2	Champs microscopiques périodiques	60
2.2.5.3	Conditions aux limites et opération de moyenne	61
2.3	Conclusion	64

Chapitre 3

Modélisation du comportement des RT-PMMA par une approche d'homogénéisation

		65
3.1	Introduction	66
3.2	Description hyperélastique-élastoviscoplastique	67
3.2.1	Equations constitutives	68
3.2.2	Hyperélasticité	70
3.2.3	Viscoplasticité	71
3.3	Etude expérimentale et caractérisation	73
3.3.1	Matériaux et préparation des échantillons	74
3.3.2	Essais mécaniques	74
3.3.3	Essais à température	76
3.3.4	Résultats	77
3.4	Modélisation du comportement et homogénéisation	81
3.4.1	Validation du modèle viscoplastique	85
3.4.2	Homogénéisation du comportement des RT-PMMA	87
3.5	Conclusion	91

Chapitre 4

Homogénéisation en traction du comportement des RT-PMMA avec prise en compte de l'endommagement

4.1	Introduction	94
4.2	Rappel bibliographique de la modélisation de l'endommagement par cavitation	95
4.3	Analyse du comportement et de la cavitation des polymères renforcés RT-PMMA	100
4.3.1	Définition du problème	100

4.3.2 Etude expérimentale et identification des lois de comportement	101
4.3.2.1 Matériau et préparation des éprouvettes	101
4.3.2.2 Dispositif expérimental	102
4.3.2.3 Essais mécaniques et mesure de la variation de volume	103
4.3.3 Homogénéisation du comportement des RT-PMMA sans endommagement	106
4.3.4 Influence de la fraction volumique des vides pour le PMMA poreux	109
4.3.5 Cavitation dans le polymère renforcé	111
4.3.5.1 Bandes de cisaillement	113
4.3.5.2 Pression hydrostatique	114
4.4 Analyse de l'endommagement dans les polymères renforcés à partir d'un critère d'apparition de cavité	117
4.4.1 Cavitation, modélisation micromécanique	118
4.4.2 Résultats et discussion	121
4.5 Conclusion	127
Conclusions et perspectives	129
Références bibliographiques	134

Introduction Générale

Introduction Générale

Le développement des matériaux composites est né de la volonté d'allier les qualités techniques au besoin d'allègement dans un même matériau, qui par la suite doit s'adapter aux solutions technologiques des problèmes à résoudre.

Nous assistons depuis plusieurs années à une croissance importante de la production des polymères, leur utilisation étant de plus en plus diversifiée. En particulier, nous les retrouvons seuls ou comme matrice de composite, dans des pièces de structures. Cette expansion récente de l'utilisation des composites polymères a fortement poussée au développement de l'étude de leurs propriétés mécaniques et comportement à la rupture.

Les polymères thermoplastiques sont particulièrement intéressants pour leur bonnes propriétés mécaniques, et leur tenue thermique. La nette amélioration de leur résistance au choc par l'incorporation de particules d'élastomères fut une avancée majeure dans le domaine des polymères. Cette technique de renforcement est largement utilisée aujourd'hui. Toutefois, les mécanismes sous-jacents sont complexes et soulèvent encore plusieurs questions.

Un des défis actuels reste de comprendre et de modéliser les processus de déformations et d'endommagement de ces matériaux lorsqu'ils sont soumis à différents types de sollicitations mécaniques.

Malgré les nombreuses recherches réalisées dans ce domaine pour rendre finement compte des phénomènes microscopiques régissant le comportement macroscopique de ces matériaux hétérogènes, la dépendance de leur comportement mécanique à la forme, aux propriétés des différents matériaux élémentaires, et des interfaces constitue encore un riche domaine de recherche. Il est primordial dans ce genre de problème, d'appréhender le comportement à l'échelle microscopique pour pouvoir prévoir le comportement mécanique à l'échelle macroscopique, ce qui justifie l'importance d'une théorie telle que *l'homogénéisation*.

Dans ce but, il est essentiel d'avoir la meilleure connaissance possible de ces matériaux, en terme de microstructure et de propriétés mécaniques de manière à pouvoir suivre ces propriétés sous sollicitations afin d'identifier les mécanismes d'endommagement mis en jeu, leur initiation et leur développement et ce jusqu'à la rupture. Pour ce faire des modèles de comportement mécanique et des approches de calculs micromécanique intégrant la microstructure et l'endommagement sont développés et présentent une grande utilité pour l'étude de ces phénomènes. Parallèlement aux efforts de modélisation, de nombreux essais mécaniques sont menés sur les matériaux de structures pour évaluer les propriétés mécaniques, étudier la résistance des matériaux et valider les modèles.

Nous nous sommes fixés dans ce travail comme objectif l'analyse du comportement macroscopique et de l'endommagement par cavitation d'un matériau hétérogène à matrice polymère et renforts caoutchoutiques à partir des propriétés mécaniques des différentes phases constitutives et de leur répartition spatiale (fraction volumique, forme et taille du renfort). Pour cela, une approche micromécanique issue de la mécanique des milieux continus et basée sur une branche particulière de la théorie de l'homogénéisation qui est l'homogénéisation périodique a été adoptée. La méthodologie utilisée consiste à résoudre le problème sur une cellule de base, représentative des hétérogénéités du milieu périodique, et à exprimer les résultats par l'intermédiaire de relations de moyennes en termes de contraintes et de déformations macroscopiques.

Dans le cas des composites particulaires à matrice polymère, en plus d'un effet classique de mélange, l'ajout d'une certaine fraction d'une deuxième phase de nature élastomère entraîne une modification de propriété de résistance à la rupture de la matrice. L'endommagement par cavitation est un phénomène observé dans de très nombreux type de composites multi phases, et que l'on relie à de bonnes propriétés au choc du matériau sans pour autant que les relations de cause à effet aient été clairement définies.

On se propose plus particulièrement de concentrer notre étude sur l'effet du phénomène de cavitation des particules d'élastomère sur le comportement global. Afin de cerner davantage les informations d'ordre quantitatif sur le processus de cavitation, une complémentarité entre des essais expérimentaux et des simulations numériques du comportement mécanique a été entreprise.

Notre contribution se situe dans ce cadre et s'articule autour de quatre grandes parties :

Tous d'abord, une étude bibliographique (chapitre 1) sera consacrée aux différentes études visant à décrire les lois de comportement aptes à reproduire le comportement des polymères amorphes. Les modèles issus de la littérature seront présentés, tous en précisant le cadre de notre étude. Dans ce rappel bibliographique, l'accent sera mis aussi sur le renforcement par l'addition de charges aux polymères amorphes, et sur les paramètres qui y contribuent. Parmi ces derniers, la problématique liée à la cavitation des particules sera soulevée, problématique qui constitue le cadre de la deuxième partie de notre étude.

Au cours du chapitre 2, des rappels sur la technique d'homogénéisation ainsi que les principales méthodes d'homogénéisation existantes seront présentées. Nous mettrons en évidence la motivation et la méthodologie de l'homogénéisation périodique que nous avons utilisé pour la prédiction du comportement global d'un composite polymère.

Le chapitre 3 s'intéresse plus particulièrement au comportement du PMMA (polyméthacrylate de méthyle) et du PMMA choc (RT-PMMA) sans endommagement. Il s'agit dans un premier temps de formuler et de mettre en œuvre numériquement la description hyperélastoviscoplastique et l'approche d'homogénéisation adoptées. Les paramètres de la loi de comportement viscoplastique de la matrice vitreuse décrivant la localisation de la déformation plastique sont identifiés à partir d'essais de compression uniaxiale. La pertinence du modèle et de l'approche utilisée est vérifiée en comparant les prédictions des simulations en terme de courbes contrainte – déformation avec les données expérimentales obtenus pour différentes vitesses de déformations et différentes températures. La dépendance du comportement du composite polymère à la température et à la vitesse de déformation a été mise en évidence.

La modélisation du comportement macroscopique en prenant en compte l'endommagement par cavitation fera l'objet du chapitre 4. Après une brève présentation des différents critères classiques de la cavitation des élastomères et des approches numériques existantes qui permettent de caractériser de manière fiable le comportement et l'endommagement du RT-PMMA, une première partie de ce chapitre sera consacrée à la modélisation du comportement global du matériau composite en traction en couplant à l'approche micro-macro utilisée l'endommagement par cavitation. La technique utilisée consiste à considérer la cavitation comme un vide sphérique unique au centre de la particule de la cellule élémentaire ou VER.

A partir de la méthode d'homogénéisation, l'influence de divers paramètres clés sur le comportement macroscopique du matériau est mise en évidence. L'étude de la cohabitation des deux mécanismes cavitation et bandes de cisaillement a été réalisée numériquement à différentes fractions de vide.

Nous présentons dans la seconde partie la technique de vidéotraction adoptée pour étudier l'évolution de l'endommagement et son influence sur le comportement global du composite polymère ainsi que l'analyse de la cavitation en couplant le modèle hyperélastoviscoplastique à un critère d'apparition de cavité des élastomères en masse basé généralement sur la pression hydrostatique dans la particule. Ce couplage permettra de montrer l'influence du déclenchement de la cavitation sur le comportement global du composite d'une part, et de trancher dans le problème d'apparition de cavité après ou avant l'écoulement plastique de la matrice.

Ce chapitre sera conclu par la comparaison des courbes expérimentales et numériques de la réponse en traction du mélange RT-PMMA pour différentes températures et vitesses de déformation.

Les conclusions issues de ce travail sont finalement développées. De là découleront aussi quelques perspectives d'études des polymères renforcés par des particules d'élastomères.

Chapitre 1

*Mécanismes de déformation des
composites polymères*

1.1 Introduction

Le développement des matériaux composites est né de la volonté d'allier les qualités techniques au besoin d'allègement dans un même matériau, qui par la suite doit s'adapter aux solutions technologiques des problèmes à résoudre.

Un matériau composite résulte de l'association de deux matériaux différents aussi bien par leur forme que par leurs propriétés mécaniques ou chimiques pour tenter d'accroître leurs performances. Les deux constituants du composite sont la matrice et le renfort, qui en se combinant donnent un matériau hétérogène souvent anisotrope. Les matériaux constituant le composite sont généralement choisis en fonction de l'application que l'on souhaite en faire par la suite. Les critères de choix peuvent être, par exemple, les propriétés mécaniques requises, la résistance au choc ou encore la méthode de mise en œuvre. Plus particulièrement, les matériaux composites à matrice organique trouvent de plus en plus d'application. L'amélioration de ces systèmes composites a été initialement orienté vers des matériaux de haute technicité, essentiellement des composites à fibres longues ou courtes (fibres de verre ou de carbone...), présentant un excellent compromis densité - propriétés mécaniques. Ces systèmes composites doivent leur essor essentiellement à l'industrie aéronautique, un transfert de technologie s'étant par la suite opéré dans le domaine des sports et loisirs.

Parmi les nombreux systèmes composites en développement, les thermoplastiques renforcés par des particules ont été qualifiés de borne inférieure en matière de renforcement mécanique. Néanmoins, le succès commercial de certains produits, ainsi que les résultats intéressants sur les relations structure – propriétés de tels systèmes ont conduit les communautés scientifiques et industrielles à un autre regard sur ce type de composites. Les polymères thermoplastiques sont particulièrement intéressants pour leurs bonnes propriétés mécaniques, leur tenue thermique, et leur résistance aux solvants. La modification efficace de leur résistance au choc par l'ajout d'une deuxième phase fut une avancée considérable dans le domaine des polymères. En dispersant des particules d'élastomère de dimensions microniques ou submicroniques dans une matrice polymère, il est possible d'augmenter considérablement l'énergie dissipée lors d'un choc et de passer d'un comportement fragile à un comportement ductile. Toutefois, les mécanismes sous-jacents sont complexes et soulèvent encore de nombreuses questions. Dans ce premier chapitre, nous proposons une synthèse des diverses informations dans la littérature concernant les mécanismes de déformations et

d'endommagement observés dans les polymères. Nous décrivons aussi le comportement mécanique des polymères amorphes à la lumière des modèles de la littérature.

1.2 Généralités sur le comportement mécanique des polymères

Malgré de grandes différences de nature et de structure entre les métaux (et alliages) et les polymères (et composites), on observe de grandes similitudes dans leurs comportements macroscopiques. Ainsi, avec des ordres de grandeur différents, les termes d'élasticité, de viscosité, de déformation plastique, d'écrouissage, de rupture fragile, de rupture ductile, s'appliquent à tous ces matériaux. C'est ce qui justifie a priori l'approche globale de la mécanique des matériaux : à l'aide des concepts de la mécanique des milieux continus, et de la rhéologie. Ainsi, il n'est pas rare que les méthodes d'analyses des propriétés mécaniques mises au point pour les métaux soient appliquées aux polymères.

Dans un grand nombre de polymères, l'arrangement spatial des macromolécules ne présente aucun ordre à grande distance, ou tout au plus une microcristallinité extrêmement imparfaite comme dans le PVC ou le PC. Ces polymères sont considérés en première approximation comme ayant une structure amorphe. Les chaînes tendent à former des pelotes irrégulières. Les différentes macromolécules sont flexibles et intimement enchevêtrées les unes dans les autres. Les matériaux qui ont cette structure présentent différents types de comportement en fonction de la température [1]:

- à basse température, le polymère est vitreux, rigide, parfois fragile, avec un module de Young de l'ordre de 1000 MPa
- au dessus de la température de transition vitreuse T_g , le comportement mécanique devient viscoélastique puis caoutchoutique avec un module de l'ordre de 1 MPa, le matériau pouvant subir des allongements hyperélastiques considérables
- à des températures encore plus élevées, l'agitation thermique est telle que la diffusion des chaînes devient très aisée. Le comportement est alors celui d'un fluide visqueux ou viscoélastique.

Les polymères dont les chaînes macromoléculaires sont les plus régulières adoptent une structure semi-cristalline. Afin de minimiser l'énergie de conformation, les chaînes se replient sur elles-mêmes pour former des segments réguliers qui s'empilent selon un réseau cristallin de plus forte densité que le polymère amorphe. Cette structure se forme au cours du refroidissement depuis l'état liquide. En raison de la viscosité du polymère fondu et des

nombreux défauts des macromolécules, la cristallisation ne peut être ni totale ni parfaite. La structure présente en fin de refroidissement une juxtaposition de cristallites et de zones amorphes résiduelles. Le comportement mécanique de cette classe de matériau présente donc deux températures caractéristiques : la température de transition vitreuse de la phase amorphe et la température de fusion de la phase cristallisée. On a donc :

- en dessous de T_g un polymère rigide de module d'Young voisin des polymères amorphe vitreux ;
- entre T_g et T_m un matériau plus souple (module de l'ordre de 700 MPa) à cause de la phase amorphe caoutchoutique mais avec une bonne résistance grâce à la présence des cristallites ;
- au dessus de T_m un fluide visqueux ou viscoélastique.

La Figure 1.1 illustre respectivement le comportement typique sous sollicitation uniaxiale à température ambiante d'un polymère amorphe et celui d'un polymère semi-cristallin [1]. On distingue trois domaines :

- Zone I, la contrainte augmente d'abord linéairement avec la déformation, puis atteint un maximum « limite élastique ». Cette partie est appelée réponse viscoélastique. Dans le cas de certains polymères amorphes, un crochet de traction se produit fréquemment à la fin du stade viscoélastique. Cet adoucissement est généralement absent dans les polymères semi-cristallins, pour lesquels la limite élastique présente une transition arrondie progressive.
- Zone II, la déformation devient irréversible, la striction se développe et la contrainte redescend à une valeur minimum d'écoulement plastique, ce qui forme un pic de contrainte. Cette étape est associée en partie au déroulement des macromolécules sous l'effet de la déformation appliquée.
- Zone III, ce stade, qualifié de durcissement structural est vraisemblablement lié à l'orientation de chaînes selon la direction principale de déformation. Lorsque la striction s'est entièrement propagée, la déformation redevient homogène jusqu'à la rupture de l'éprouvette.

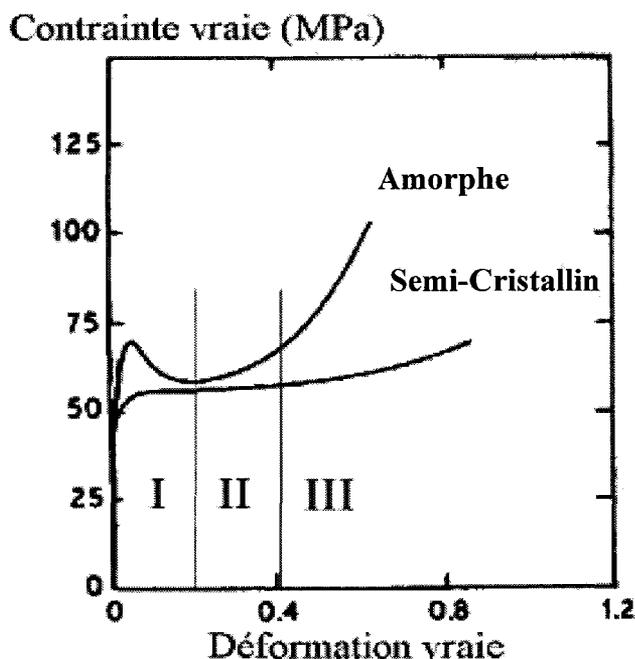


Figure 1.1 : Comportement typique d'un polymère amorphe d'un polymère semi-cristallin [1].

Certains polymères ne présentent pas de limite d'élasticité évidente. C'est le cas des polymères fragiles pour lesquels l'échantillon rompt au cours du stade viscoélastique, ou bien des élastomères, caractérisés par leur comportement hyperélastique. Lorsqu'une limite d'élasticité se produit, en général pour une déformation de l'ordre de quelques pour cent, elle se manifeste, soit sous la forme d'un maximum de la courbe contrainte-déformation, appelé crochet et qui caractérise généralement certains polymères amorphes, soit sous la forme d'un brusque changement de la pente où « genou » pour les polymères semi-cristallins ainsi que quelques polymères amorphes [1].

Nous nous intéressons plus particulièrement au comportement et caractéristiques des polymères amorphes, car nous prenons comme objet d'étude les composites polymères à matrice de PMMA (Polyméthylméthacrylate).

L'amplitude du crochet est extrêmement sensible à l'histoire thermomécanique du matériau et à la vitesse de sollicitation, et peut disparaître dans le cas d'essais très lents.

Ce maximum de contrainte est souvent choisi, par convention, comme seuil de plasticité. L'adoucissement au seuil de l'écoulement plastique ne peut être du à un effet d'orientation et les causes de son apparition doivent être cherchées au niveau des modifications structurales. Le seuil d'écoulement plastique d'un polymère amorphe, pour $T < T_g$, dépend de la vitesse de déformation et de la température, d'où le caractère viscoplastique du comportement. La limite

d'écoulement et la chute du niveau de la contrainte associée à l'instabilité plastique augmentent lorsque la température diminue. Notons par ailleurs que la contrainte au seuil de plasticité augmente avec la vitesse de déformation [1] [2].

Les polymères amorphes sont aussi sensibles à la pression hydrostatique. Cet effet est observé lorsque le polymère est sollicité sous des pressions variables (Figure 1.2). Le niveau de contrainte augmente avec la pression imposée [3].

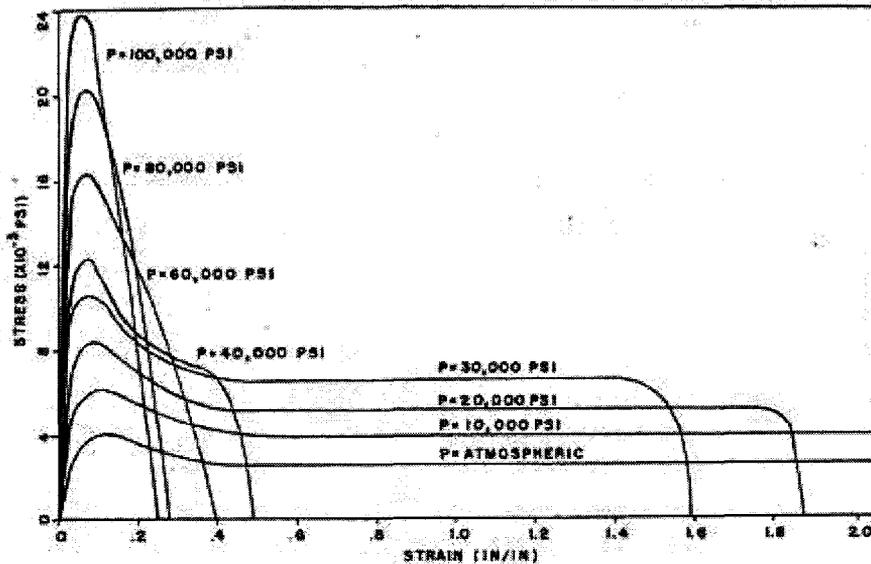


Figure 1.2 : Courbes contrainte-déformation à différentes pressions pour un polypropylène [3].

Cet effet a été mis en évidence par la différence de niveau de contrainte atteint selon le type de sollicitation [4]. Ainsi on observe que le niveau de contrainte atteint est plus élevé en compression qu'en traction, dans ce cas la contrainte hydrostatique à considérer est celle produite par le champ de contraintes lui-même. La Figure 1.3 montre cet effet pour le polycarbonate sollicité en traction et en compression à une vitesse de déformation de 10^{-4} s^{-1} [5]. Il a été démontré que le comportement contrainte déformation des polymères en compression et en traction est bien différent [5]. Ce phénomène a été expliqué en terme de contrainte atteinte au seuil influencé non seulement par les contraintes de cisaillement mais aussi par les contraintes normales agissant perpendiculairement au plan de cisaillement. La relation entre la limite élastique en compression et en traction a été étudiée par Haward et al. [6] à partir d'un critère d'écoulement modifié en pression hydrostatique.

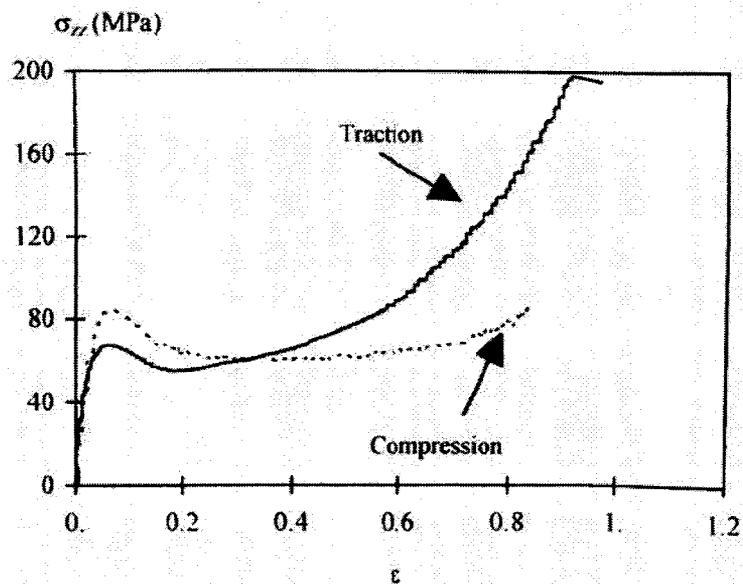


Figure 1.3 : Courbes contrainte-déformation pour le polycarbonate sollicité en traction et compression à 10^{-4} s^{-1} [5]

La Figure 1.4 illustre la comparaison entre la courbe contrainte déformation expérimentale d'un polystyrène (HRPS) en compression et la courbe théorique de traction obtenue à partir de celle-ci. D'autres comme Bauwens-Crowet (1973) [7] ou Quinson et al. [8], ont proposé les critères modifiés en pression de Tresca et Von Mises pour modéliser le comportement viscoplastique des polymères solides.

Finalement, les polymères amorphes à l'état vitreux ont une réponse mécanique élastoviscoplastique avec un adoucissement intrinsèque suivi d'un durcissement [9].

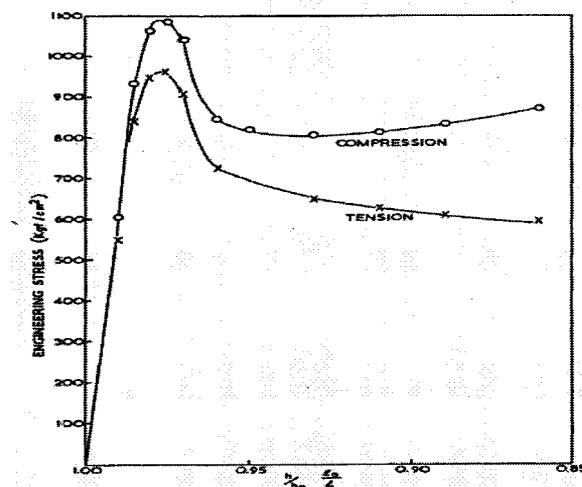


Figure 1.4 : Réponse d'un polystyrène HR en compression et la courbe théorique de traction obtenue à partir de celle-ci [6].

De nombreux chercheurs ont tenté d'expliquer le comportement fortement non-linéaire des polymères d'un point de vue phénoménologique et de son interprétation microstructurale, par l'intermédiaire de la modélisation (critères et modèles). La plupart des modèles disponibles dans la littérature décrivent la dépendance à la vitesse de sollicitation et à la température du seuil d'écoulement plastique (Eyring 1936, Robertson 1966, Argon 1973) [10, 11, 12]. La description de la déformation du seuil plastique a été ensuite proposée par G'sell [13]. Une modélisation complète du comportement des polymères amorphes a été proposée par Boyce [14] et Arruda [15].

1.3 Mécanismes de déformation des polymères

Lors d'une sollicitation mécanique les polymères amorphes peuvent avoir deux comportements en rupture distincts fragile si le craquelage est le processus dominant et ductile si c'est la déformation plastique par bandes de cisaillement qui apparaît [16]. La localisation de la déformation plastique sous forme de bandes de cisaillement est associée à l'adoucissement intrinsèque du matériau au-delà d'un seuil de contrainte qui conduit à l'apparition d'une instabilité plastique sous la forme d'une bande de cisaillement [17]. Ces bandes de cisaillement ont été observées aussi en compression du polystyrène [4, 16]. La compression génère une concentration de contraintes en surface du matériau, formant des microbandes parallèles qui se propagent le long de l'échantillon à un angle de 40° ou 45° de la direction de compression approximativement. Et plus tard les expériences sur d'autres polymères (PMMA, PVC, époxy...) montrent que les bandes de cisaillement se forment aussi en traction comme en compression. La Figure 1.5 illustre des microbandes dans le polystyrène, et des bandes diffuses dans le PMMA déformé en compression.

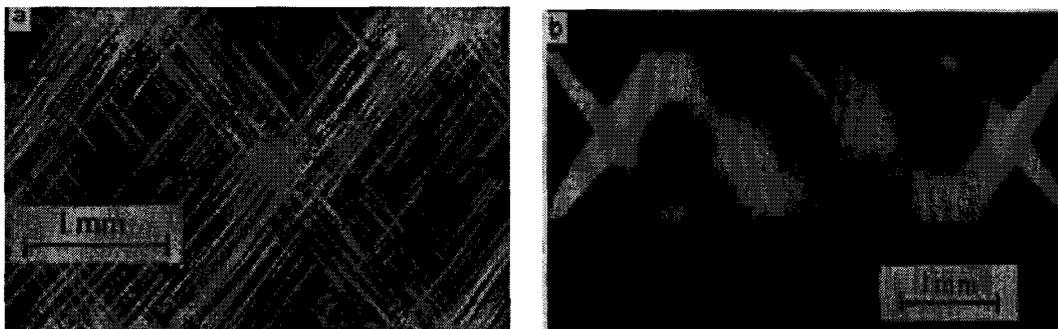


Figure 1.5 : Bandes de cisaillement formées en compression dans (a) le polystyrène et (b) le PMMA (d'après www-ics.u-strasbg.fr/sitanex/JIREC2006).

Par contre une craquelure apparaît géométriquement semblable à une fissure pontée par des fibrilles de matière. Le craquelage (crazing) implique une déformation plastique mais à une échelle beaucoup plus petite que celle correspondant aux bandes de cisaillement, dans une zone intermédiaire entre le matériau massif et les fibrilles des craquelures. Ces deux mécanismes sont viscoplastiques et pour certaines conditions de température et de vitesse de chargement, ils peuvent apparaître simultanément. Toutefois, le crazing est contrôlé par la plus grande contrainte principale et entraîne la formation de vide (Figure 1.6), alors que les bandes de cisaillement sont contrôlées par la contrainte de cisaillement sans formation de vide (Figure 1.5).



Figure 1.6 : Développement d'une craquelure perpendiculairement à la direction de traction (d'après www-ics.u-strasbg.fr/sitanex/JIREC2006).

L'observation d'un des mécanismes ou d'une combinaison des deux dépend bien sûr du matériau, mais aussi des conditions de l'essai : température de l'essai, type de sollicitation [18], dans le cas le plus général :

- En compression, seules les bandes de cisaillement peuvent exister, avec plus ou moins de déformation selon la température de l'essai.
- En traction, les mécanismes dépendent de la valeur de la température de l'essai par rapport à la température de transition vitreuse du matériau polymère :
 - à une température inférieure à T_g , le mécanisme généralement observé est le crazing comme dans le cas du PMMA .
 - à une température supérieure à T_g , les mécanismes de crazing et de bandes de cisaillement sont souvent liés. Sur une éprouvette lisse, les bandes de cisaillement seront les plus observées, alors que le crazing sera favorisé par une géométrie particulière comme une pré-fissure ou un état de déformation plane.

Dans la Figure 1.7, on observe par exemple la cohabitation des deux mécanismes bandes de cisaillement (traits inclinés) et craquelures (traits horizontaux) pour un échantillon de polycarbonate sollicité en traction à température ambiante.

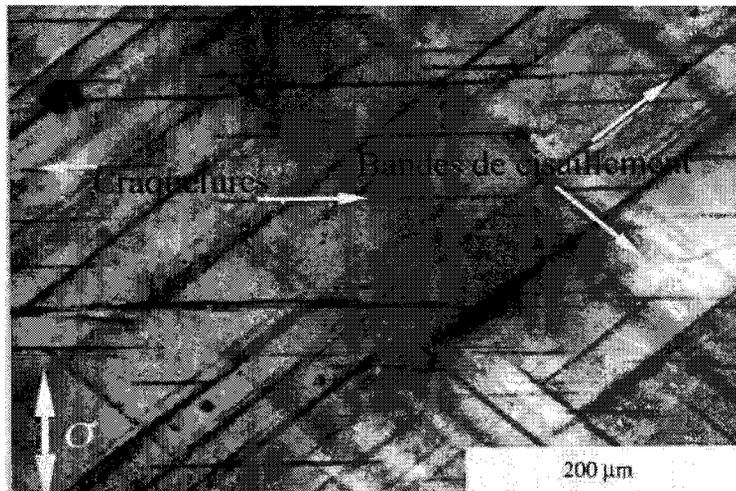


Figure 1.7 : Coexistence de craquelures et de bandes de cisaillement dans le polycarbonate sollicité en traction à température ambiante (d'après www-ics.u-strasbg.fr/sitanex/JIREC2006).

On s'intéresse dans ce qui suit plus particulièrement aux mécanismes qui pourront être rencontrés lors de l'étude de notre PMMA renforcé. En effet une connaissance précise de ces processus de déformation et d'endommagement est nécessaire à l'analyse du comportement global du matériau.

En dispersant des particules d'élastomère de dimensions microniques ou submicroniques dans une matrice polymère fragile, il est possible d'augmenter considérablement l'énergie dissipée lors d'un choc et de passer d'un comportement fragile à un comportement ductile. La Figure 1.8 montre la différence entre un polyamide-12 pure (polymère semi-cristallin) avec un polyamide renforcé par la dispersion de particules de copolymère éthylène-propylène (EPR) [19].

Cette technique de renforcement avec des particules constituée d'élastomères est largement utilisée pour améliorer la résistance au choc de polymères fragiles amorphes (PMMA, PS) ou semi-cristallin (PA66, PA12). Toutefois, les mécanismes sous-jacents sont complexes et soulèvent de nombreuses questions concernant la compétition des différents mécanismes de déformation.

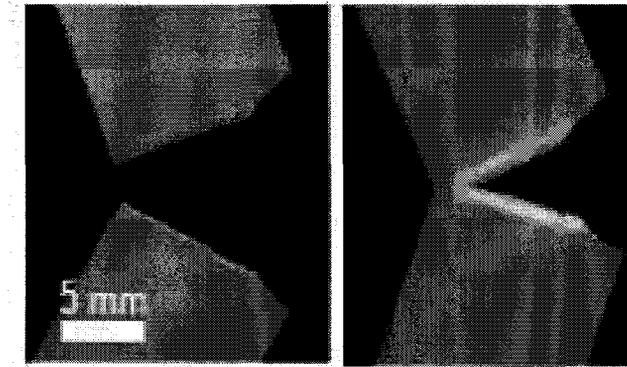


Figure 1.8 : Echantillons post-mortem après un test de choc pour le polyamide-12 pur (à gauche) et le polyamide renforcé par des particules de caoutchouc de copolymère éthylène-propylène (EPR) [19].

L'incorporation de particules d'élastomères qui, en cavitant lors d'une sollicitation, redistribuent les contraintes dans la matrice fragile, et permettent la déformation plastique étendue de la matrice par bandes de cisaillement et non par craquelure [16] (Figure 1.9).

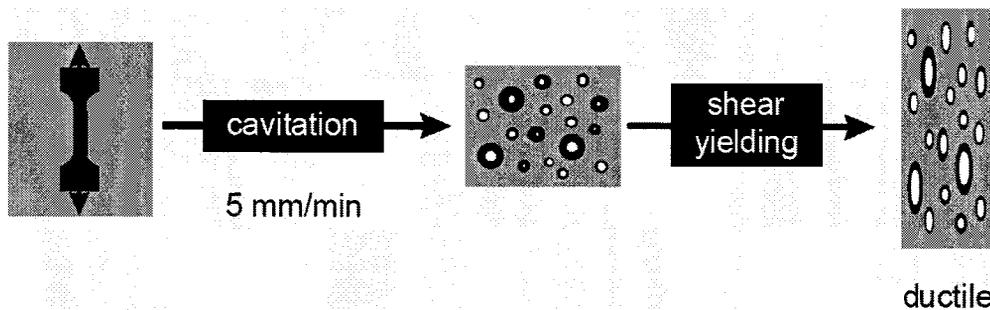


Figure 1.9 : Représentation du développement de la cavitation induisant le cisaillement plastique dans une matrice polymère renforcé par des particules d'élastomères.

La combinaison des mécanismes cités ci-dessus avec la présence des particules d'élastomères permet une nette amélioration des propriétés choc du matériau. Soit dans le cas où les particules constituent des sites d'initiation et d'arrêt de craquelures [20], ou encore dans le cas de formation de cavités au sein des particules elles-mêmes. Le processus de cavitation, très peu consommateur d'énergie, est issu d'un fort contraste de propriétés mécaniques des deux matériaux à l'échelle de la microstructure [21]. L'utilisation de particules molles d'élastomère (très faible module de cisaillement) entraîne inévitablement une dépression interne au delà de

laquelle la cavitation se déclenche dans les nodules, et le module élastique du système diminue.

Dans le cadre de notre étude, c'est le cas où les particules d'élastomères cavitent et favorisent le processus de déformation plastique qui nous intéresse. En effet, suite à l'apparition du phénomène de cavitation, l'effet de la compétition des mécanismes de déformation se traduit par la diminution de la limite élastique du comportement macroscopique du composite polymère [22].

1.4 Renforcement des polymères par des particules d'élastomères

Dans des conditions normales d'utilisation, les polymères amorphes peuvent être soit fragiles soit tenaces selon la température d'utilisation et l'intensité du choc. Pour cela ces polymères ont été généralement renforcés par le mélange ou la dispersion d'une seconde phase, le plus souvent élastomère qui conduit d'une part à l'amélioration de la ténacité et à l'augmentation de la ductilité des polymères vitreux [22, 23]. Un exemple d'un PMMA renforcé par des particules core-shell d'élastomère est illustré dans la Figure 1.10 et montre la bonne dispersion des particules obtenue par le processus du mélange [23].

La résistance à la rupture des polymères vitreux amorphes est considérablement améliorée par l'incorporation de particules qui cavitent et induisent une déformation plastique étendue de la matrice que sa rupture fragile [19]. Ce renforcement spectaculaire obtenu se fait au détriment de la rigidité. Pour palier ce problème, une technique consiste à disperser non plus une phase élastomère mais des particules inorganique rigides. C'est le cas par exemple des systèmes PMMA-silice [24], où le renfort améliore les propriétés mécaniques du polymère en matière de rigidité au dessus de la température de relaxation principale de la matrice, tout en lui maintenant ses qualités visuelles. Ceci fait de ces polymères chargés des candidats intéressants pour les systèmes optiques. L'ajout d'une phase inorganique au polymère introduit la possibilité d'un mécanisme supplémentaire qui amorce le cisaillement plastique : c'est la décohésion à l'interface matrice-particule. Mais l'agrégation de particules observée sur ces systèmes constitue autant de déviation aux hypothèses d'un composite modèle, qu'il devient difficile à mettre en œuvre.

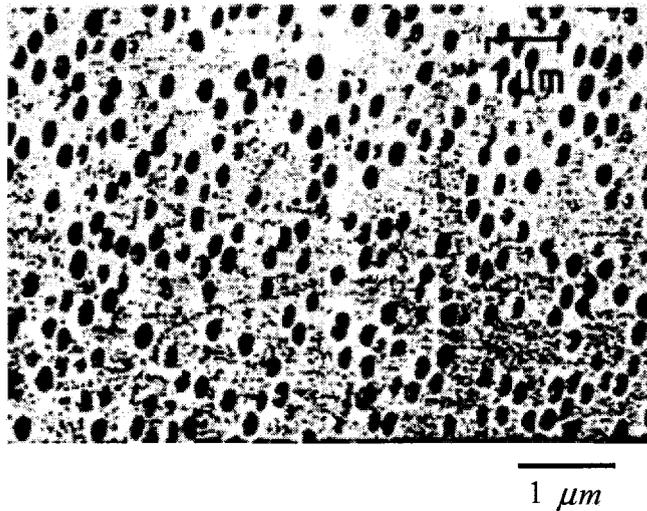


Figure 1.10 : Observation par microscopie électronique à transmission (MET) d'une section représentative d'un PMMA renforcé par des particules d'élastomère [23].

Et pour une meilleure connaissance des mécanismes de déformation et du comportement complexe de ces composites, nous avons choisi de mener ce travail sur un matériau modèle présentant un contraste important entre matrice et renfort. Toutefois, nous présentons dans cette partie un bilan de connaissances et de résultats sur les polymères renforcé au choc et leurs spécificités par rapport à d'autres composites particuliers.

1.4.1 Transition ductile-fragile

Il convient avant toute chose de préciser un concept qui sera très fréquemment utilisé tout au long de cette partie c'est celui de la transition ductile fragile. Dans le cas de nos polymères modifiées RT-PMMA, la variation de consommation d'énergie est très brutale au passage d'un comportement de type fragile à ductile : elle augmente de manière très importante. Cette transition entre modes de rupture peut être observée lorsque l'on fait varier certains paramètres externes de l'essai de rupture (vitesse, température...) ou suite à une modification des paramètres relatifs au système matrice/élastomère étudié (taux de renfort, taille des particules...). L'ajout de cette deuxième phase apporte une certaine ductilité à la matrice vitreuse fragile et l'on observe une courbe telle que celle de la Figure 1.11 pour le PMMA fragile et le PMMA renforcé par des particules d'élastomères ductile à température ambiante (22°C) et une vitesse de déformation de 10^{-3} s^{-1} [25]

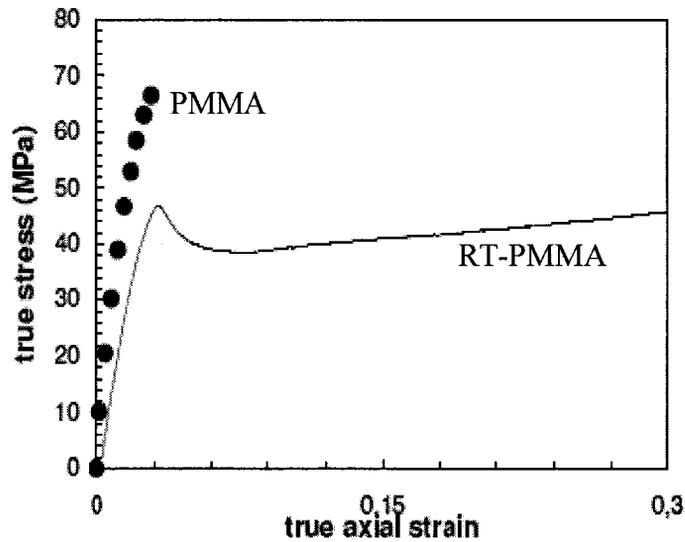


Figure 1.11 : La réponse du RT-PMMA et du PMMA à un essai de traction uniaxiale à température ambiante et à une vitesse de déformation de 10^{-3} s^{-1} [25].

C'est pourquoi la transition ductile fragile sera toujours rapportée au paramètre conduisant à la modification du comportement du matériau : nous parlerons, et ce dans la majeure partie des cas, de température de transition ductile fragile. En pratique, les essais sont souvent réalisés à des vitesses de déformation fixées et le paramètre variable est la température. On retrouve généralement un comportement ductile pour les températures élevées et les faibles vitesses de déformation et un comportement fragile à basses températures et dans le cas des grandes vitesses de déformation [26] comme le montre la Figure 1.12.

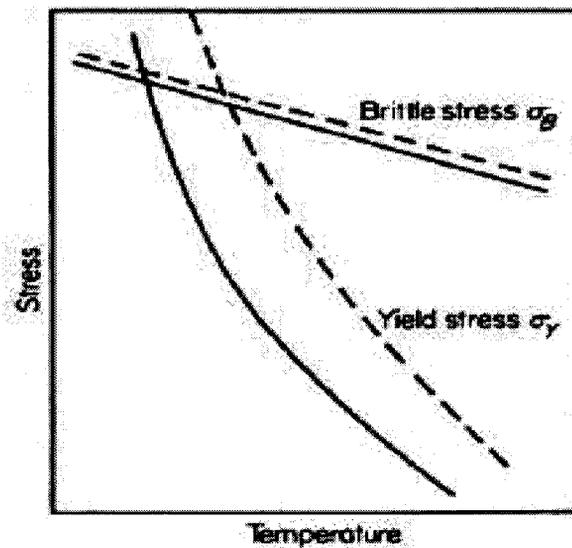


Figure 1.12 : Dépendance en température de la transition ductile-fragile, en grandes (traits continu) et faibles vitesses (traits pointillés) [26].

Selon la géométrie de l'échantillon ou les conditions de sollicitation, un même matériau peut se rompre de façon fragile ou ductile (Figure 1.13). Il faut noter que les notions de fragilité et de ductilité ne caractérisent pas le matériau mais son mode de rupture. Si la rupture a lieu dans le régime de déformation élastique avant le seuil d'écoulement plastique, le comportement est fragile. L'énergie dissipée pendant la rupture est faible et la propagation de la fissure est souvent instable. Par contre, le comportement est ductile s'il s'accompagne d'une déformation plastique étendue. La Figure 1.13 illustre la réponse de trois différents polymères dans le cas d'une rupture fragile (PMMA, PS) ou ductile (PC) en traction et compression.

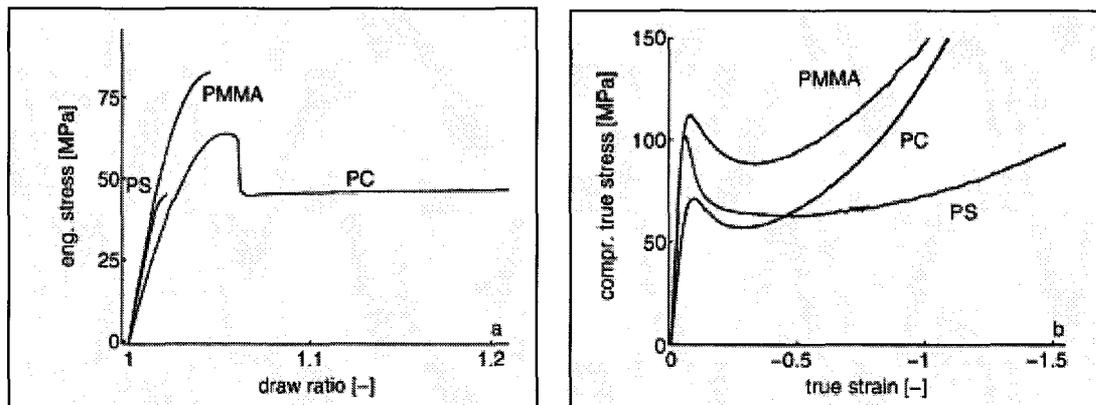


Figure 1.13 : La réponse de Trois polymères vitreux (a) en traction (b) en compression [9].

1.4.2 Phénomène de cavitation, son rôle au renforcement

L'ajout de particules d'élastomères de petites tailles (typiquement 200 nm de diamètre) dans des matrices de polymères fragiles amorphes permet d'augmenter leur résilience. L'intérêt réside dans la cavitation des particules, visible sur la micrographie de la Figure 1.14, qui sont consommatrices d'énergie dans leur processus de croissance [27].

Ainsi pour expliquer cet effet renforçant, les composites à matrice polymère et renfort élastomérique ont fait l'objet de nombreuses études basées sur les observations expérimentales et les simulations numériques, et ont permis de résumer le renforcement en la compétition de deux mécanismes : la cavitation des particules et la déformation plastique par bandes de cisaillement.

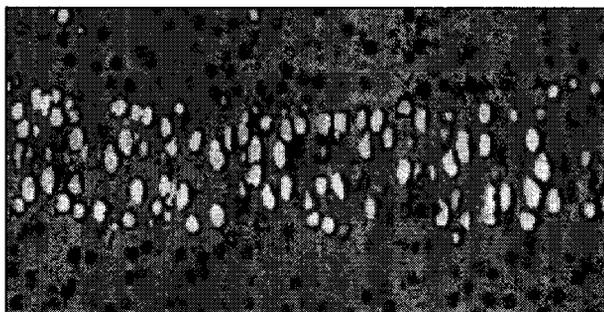


Figure 1.14 : Bande de dilatation observée dans un polycarbonate renforcée par des nodules d'élastomère d'environ 200nm de diamètre [27].

Ceci a été démontré par exemple, par Pearson et Yee 1991 [28] pour de l'époxy modifié par des particules de caoutchouc, Magalhaes et Borggreve 1995 [29] pour le composite polystyrene/SEBS (styrène/éthylène/butylène triblock), et Van der Sanden et al. 1994 [30] pour les systèmes Polycarbonate/core-shell élastomère (EPDM-Ethylène Propylène Diène Monomère) ou encore Kayano et al. 1997 [31] avec le polymère de matrice de Nylon 6 et de particules d'élastomère SEBS. D'autres aussi comme Bucknall et al. 1994 [32], et Smit et al. 1999 [33] ont prouvé ce phénomène par des approches énergétiques et de variation de volume.

La cavitation est un phénomène qui a été mis en évidence dans de très nombreux composés bi-phasiques constitués d'une matrice amorphe ou semi cristalline et d'une phase dispersée de nature élastomère. La mise en évidence de ce mode d'endommagement est souvent reliée à de bonnes propriétés au choc du matériau, sans pour autant que les relations de cause à effet entre deux éléments aient été clairement définies. Les expériences au laboratoires couplées avec des études numériques ont permis de mettre en lumière deux faits de première importance pour l'étude du processus de cavitation. Le premier est que la cavitation va se déclencher suite à l'atteinte d'un seuil de dépression critique au sein de la particule considérée. De plus, pour un mode de sollicitation uniaxial, ce seuil de dépression est souvent atteint au voisinage du seuil de plasticité du matériau. Le second est que pour qu'il puisse conduire à une amélioration de la résistance au choc du matériau, le phénomène de cavitation doit se déclencher pour un état de contrainte qui permette de dissiper le maximum d'énergie en provoquant une plastification extensive de la matrice. A partir de leurs observations de la déformation du polyéthylène (PE) Butler et Donald 1998 [34] affirment que la cavitation apparaît aussi dans la matrice et qu'elle sera détecté dans la phase amorphe entre les lamelles cristallines avant ou simultanément à l'apparition de la plasticité dans le matériau. Mais si les chaînes sont suffisamment longues, il est impossible de mettre en

évidence la cavitation dans le PE. L'apparition de la cavitation est liée à la mobilité de la phase amorphe dans les polymères semi cristallin.

L'un des objectifs de notre travail est de mieux cerner les relations entre la microstructure et les propriétés mécaniques macroscopiques du composite polymère (RT-PMMA).

La cavitation est un phénomène primordial dans le développement de la déformation plastique. Les vides sont générés habituellement d'une manière contrôlée par l'introduction de particules d'élastomère qui cavitent plus facilement. Cette cavitation interne est difficile si les particules sont de très petite taille [28] ou si le module de cisaillement du caoutchouc est très grand. Une explication acceptable de la dépendance de la taille est donnée par Bucknall et al. 1994 [32], qui a introduit un modèle énergétique pour montrer que la contrainte critique de cavitation augmente avec la diminution du diamètre des particules. Une description importante de l'influence du module de cisaillement a été initialement donnée par Gent et Lindley (1959) [35], qui à partir de leurs résultats sur des élastomères en masse ont déduit que la contrainte seuil pour l'apparition d'une cavité est approximativement $5\mu_r/2$ (avec μ_r le module de cisaillement de l'élastomère) en supposant un défaut préexistant et en s'appuyant sur l'énergie élastique stockée dans l'élastomère [36]. Finalement, les propriétés des particules de caoutchouc qui cavitent sont très importantes pour le mécanisme de renforcement [37].

1.4.3 La cavitation à travers les observations expérimentales

La mise en évidence expérimentale du phénomène de cavitation dans les systèmes de polymères renforcés est toujours délicate. Il existe différentes techniques et méthodes de mise en évidence de la cavitation, tel que la diffusion des rayons X aux grands angles, la diffusion de la lumière, les mesures ultrasons et la microscopie électronique. Ces observations se font en général post mortem. Pour étudier le mécanisme de cavitation de manière plus quantitative, la technique la plus utilisée est l'essai de traction avec mesure de variation de volume [27]. Schirrer et al. [38] ont étudié la cavitation par la diffusion de la lumière et le changement de volume, ils ont montré que la technique de diffraction de lumière est un très bon indicateur de l'apparition de la cavitation, contrairement à l'augmentation de volume qui indique plus la rupture et la dilatation de l'élastomère. Ils ont remarqué aussi la formation de bandes de dilatation au début de l'endommagement (à 5 % de déformation). Par contre à un niveau de

déformation plus élevée (8 % de déformation) les diffuseurs n'ont aucune organisation (Figure 1.15).

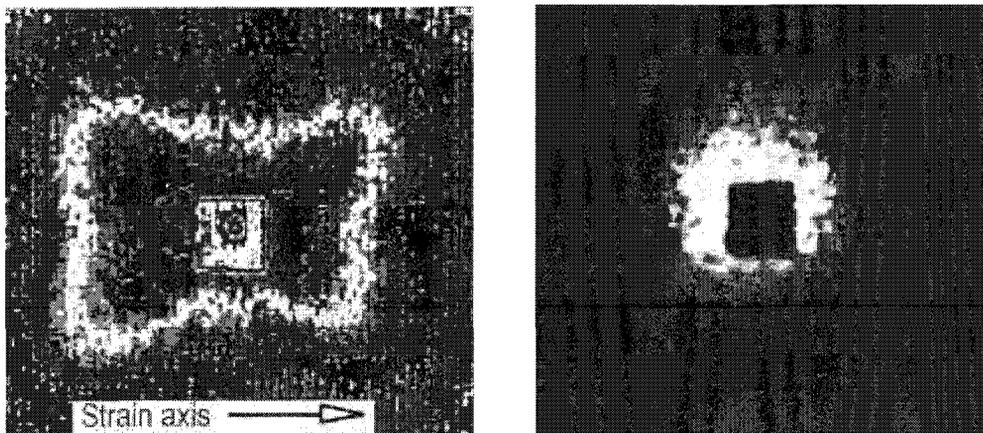


Figure 1.15 : Etat d'endommagement à partir de la diffraction d'un RT-PMMA testé à une vitesse de déformation de 10^{-3} /s et une température de 20°C (à gauche : 5% de déformation, et à droite 8% de déformation) [38].

Un exemple de la formation de ces bandes de dilatation dans un Nylon6 renforcé choc par des particules d'élastomères est montré dans la micrographie de la Figure 1.16. La section est prise d'un échantillon après rupture lors d'un essai choc [39].

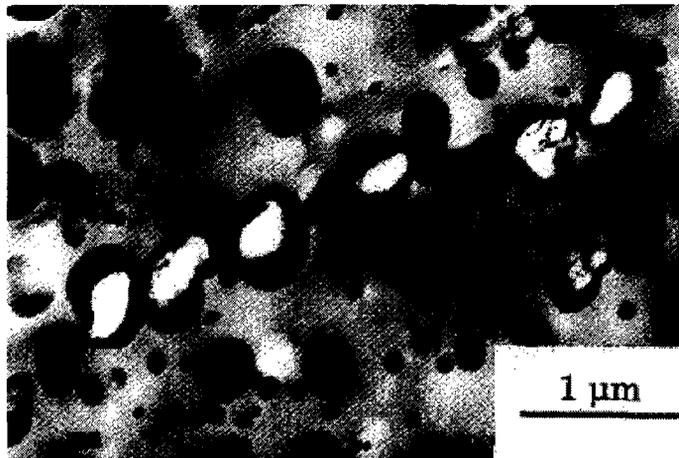


Figure 1.16 : Bande de dilatation dans une section d'un échantillon de Nylon-6/polybutadienne à partir d'un essai choc [39].

Les méthodes citées précédemment ne peuvent détecter la cavitation qu'à partir d'une taille critique de cavité. Or des cavités d'environ 10 nm de diamètre peuvent prendre naissance sans que celles-ci ne soient détectées. Par ailleurs, ces méthodes fournissent des données sur le

déclenchement et le développement d'autres mécanismes dilatants, plutôt que sur l'événement de la cavitation lui-même. Un avantage majeur et important des nouvelles techniques utilisées dans les travaux de Bucknall et al. [40, 41] est qu'il fournit une méthode pour observer le début de cavitation dans la particule comme processus séparé, sans les complications qui surgissent quand le cisaillement ou le craquelage multiple se produisent en même temps. Il utilise des tests de contraction/expansion thermique [40] sur le PSAN (poly-styrène-co-acrylonitrile) et le ABS (acrylonitrile-butadiène-styrène) qui leur permettent de déterminer le taux de particules cavitées. Bucknall et al. [41] ont prouvé aussi que la cavitation des particules core-shell d'élastomère dans une matrice de PMMA peut être détectée et surveillée en utilisant la spectrométrie thermique pour des valeurs de température de transition vitreuse associée à la phase d'élastomère.

Nous pouvons conclure que les différentes techniques de dispersion de la lumière ou de la spectroscopie thermique restent des méthodes utiles pour la mise en évidence de la nucléation. La mesure de l'augmentation de volume reste le moyen quantitatif le plus simple. Généralement c'est grâce aux observations expérimentales que la séquence d'évènements de mécanismes de déformation se produisant lors de la propagation de la fissure a été mise en évidence [42], et que l'hypothèse que la cavitation est antérieure à la déformation plastique a été vérifiée. Zairi et al. [25] ont étudié la cavitation dans les particules d'élastomères à partir d'une formulation d'un modèle viscoplastique couplé au modèle de Gurson. L'apparition de la cavitation et le développement du cisaillement ont été identifiés expérimentalement à partir de la mesure de variation de volume.

Finalement, pour résumer, il faut noter que théorie et expérience mettent en lumière le rôle principal de la cavitation des particules : elle permet de relâcher localement la contrainte triaxiale et d'amorcer la déformation plastique, qui s'étend et dissipe l'énergie avec l'augmentation de la contrainte [43].

1.4.4 Paramètres influençant la cavitation

La cavitation est un phénomène très sensible à plusieurs paramètres qui sont la nature, la taille et le taux des particules, la distance interparticulaire, et l'état de dispersion de cette phase élastomérique.

Les nombreuses études consacrées aux polymères choc, nous ont permis de relever les éléments clefs favorisant la cavitation.

Propriétés de l'élastomère

Que ce soit sur le plan expérimental ou théorique, la cavitation intervient lorsque l'on dépasse un seuil de dépression critique au sein de la particule. Selon Gent [35] cette contrainte seuil serait de l'ordre de $5\mu_r/2$. Un module d'Young faible et un coefficient de Poisson proche de 0.5 doivent favoriser la cavitation dans les particules d'élastomères. Gent trouve aussi qu'un rapport entre les modules de cisaillement de l'élastomère et de la matrice $\mu_r/\mu_m = 10$ est nécessaire à de bonnes propriétés à l'impact. Une diminution de la valeur de ce rapport ne doit pas entraîner d'amélioration additionnelle de ces propriétés [20].

Par la suite, l'importance du module de l'élastomère sur l'efficacité du renforcement a été démontré par Dijkstra et al [44] et Borggreve et al [45] sur leur systèmes PA-6 renforcés. Ils ont trouvé que la température de transition ductile-fragile augmente pour les élastomères de modules plus élevés. En dépit des travaux de certains auteurs, il a été constaté aussi que la contrainte requise pour entraîner la cavitation des particules décroît lorsque le module de l'élastomère diminue, et que l'efficacité du renforcement varie significativement avec le module de l'élastomère [45]. Enfin, tous ces auteurs s'accordent sur le fait que la cavitation est d'autant plus facile que le module élastique de l'élastomère est faible.

Distance interparticulaire

Afin d'optimiser le renforcement, la tendance est de générer des particules avec des diamètres compris entre 0.1 et 8 μm en augmentant au maximum la fraction volumique de la phase dispersée. Cependant, l'influence directe de la taille des particules n'est pas clairement établie. Pour une fraction volumique constante, Chen et al. [46] ont observé un renforcement constant pour des distributions de tailles différentes. Cela suggère donc que le renforcement est indépendant de la distribution des tailles des particules formées. Wu [47] a montré sur des systèmes PA66 modifiés que la distance interparticulaire, prise bord à bord entre nodules était le paramètre le plus important du renforcement (Figure 1. 17).

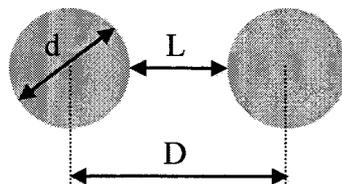


Figure 1.17 : illustration de la distance interparticulaire (L), de la distance entre centres (D), et de la taille de particules.

De manière générale, le renforcement est très sensible à la taille et à la fraction volumique des particules comme le montre la Figure 1.18 pour des mélanges de Nylon renforcé avec des dispersions de caoutchouc [47]. On observe que la transition fragile-ductile apparaît à un diamètre de particule critique, qui varie avec la fraction volumique des particules d'élastomères. Les travaux de Borgreeve et al. [48] montre que ni la taille des particules, ni la fraction volumique en élastomère ne caractérisent à elle seules le renforcement. Ils observent que la température de transition ductile-fragile diminue lorsque la taille des particules diminue à fraction volumique fixée d'une part. D'autre part, pour une taille fixée de particules cette température diminue lorsque la fraction volumique augmente.

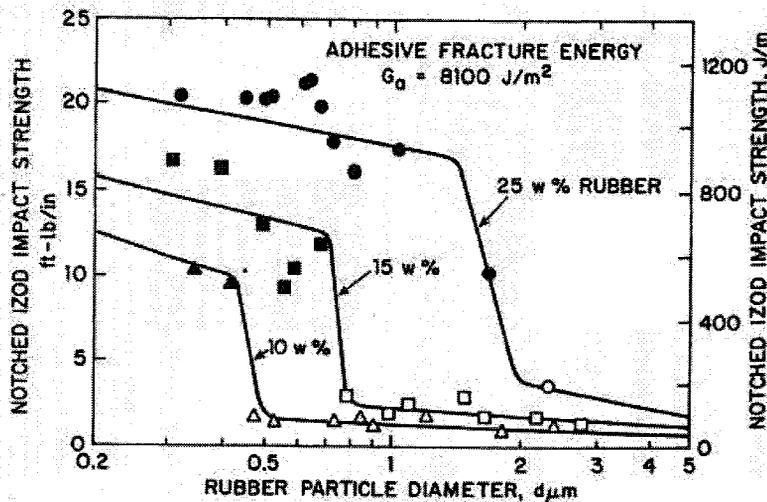


Figure 1.18 : Résistance au choc en fonction de la moyenne du diamètre des particules d'élastomère pour un mélange de PA-66 /EPDM pour différentes fractions volumique [49].

Wu [47] propose un critère pour caractériser le renforcement. Il estime la distance interparticulaire L en fonction de la fraction volumique en élastomère Φ et la taille des particules d . Dans le cas d'une distribution monodisperse de particules sphériques, L est exprimé, selon Wu, par la relation suivante :

$$L = d \left[k \left(\frac{\pi}{6\Phi} \right)^{\frac{1}{3}} - 1 \right] \quad 1.1$$

avec k est une constante géométrique dépendant de la nature de l'empilement des particules.

Wu généralise son critère [49] appelé plus tard taille critique du ligament de la matrice correspondant à l'épaisseur de matrice confinée entre deux particules voisines. La Figure 1.19

illustre cette distance interparticulaire unique qui définit la transition ductile-fragile pour les systèmes PA-66 /EPDM à différentes fractions en élastomère.

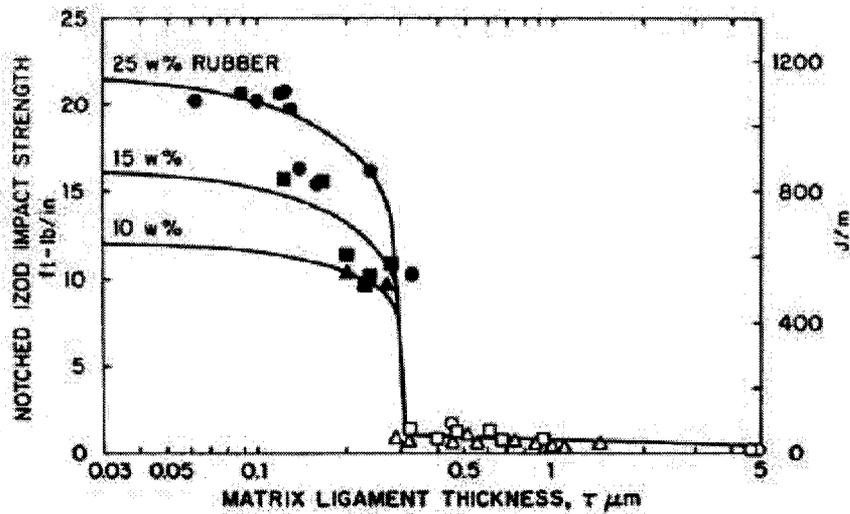


Figure 1.19 : Résistance au choc en fonction du ligament interparticulaire à différentes fractions en élastomère d'un système PA-66 modifié EPDM [49].

Etat de dispersion de particules

C'est cette distance interparticulaire que Wu suggère comme paramètre unique expliquant les rôles de la morphologie de la phase élastomère, de la taille des particules, la distribution, l'agrégation, et la fraction volumique en élastomère. Il trouve que l'agrégation des particules réduit d'une manière importante l'efficacité du renforcement [49]. La Figure 1.20 montre la micrographie de deux exemples de PA-66 modifié, chaque mélange contenant 15% d'élastomère de même taille. Cependant à gauche on trouve une bonne dispersion de particules corrélée à une résistance au choc élevée, et une ductilité du mélange. Le mélange qui contient des agrégats de particules, présente une résistance au choc faible, et un caractère de rupture fragile.

L'existence d'agrégats est aussi mise en évidence dans les travaux de Steenbrink, Litvinov et Gaymans [50] sur un système SAN (Styrène-acrylonitrile) modifié par des particules d'élastomère avec un cœur de polyacrylate de butyle (PABU) et l'écorce de PMMA d'un diamètre allant de 100 à 600 nm. Pour les petites particules (100 à 150 nm de diamètre), les auteurs observent des problèmes d'agrégation, ce qui n'est pas le cas pour des particules plus grosses. Ils ont ainsi montré que le module de Young et la limite d'élasticité sont indépendants de la taille des particules.

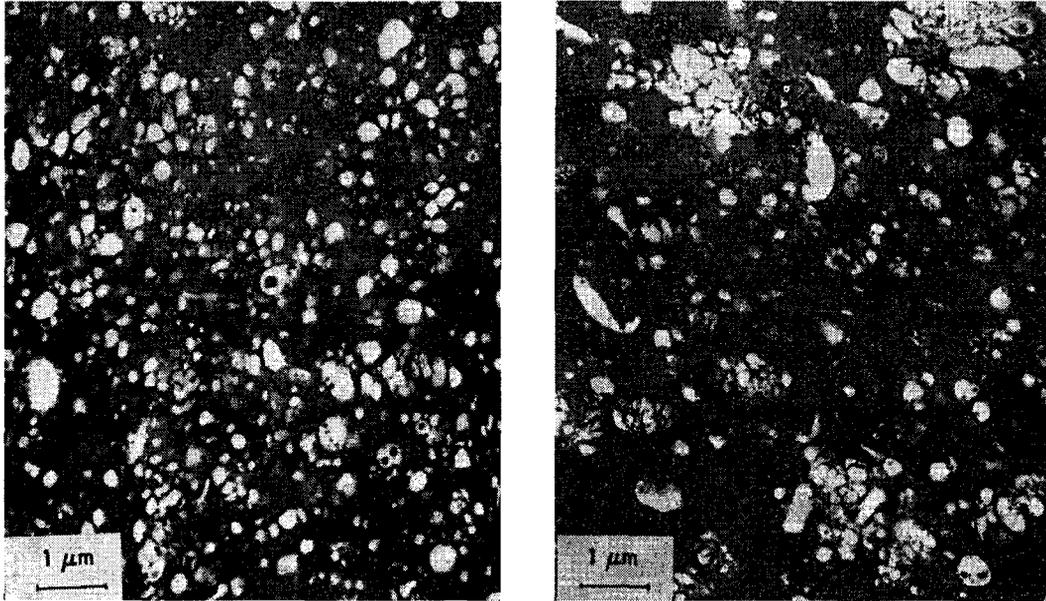


Figure 1.20 : Micrographie de PA-66 modifié par des particules d'élastomère avec : à gauche : une bonne dispersion de particules (mélange ductile) et à droite un état d'agrégation (mélange fragile) [49].

D'un autre coté Wu [49] a observé qu'à fraction volumique de particules donnée, l'épaisseur du ligament diminue avec la diminution de la taille des particules. Ainsi, les petites particules sont plus efficaces dans le renforcement que les grandes.

Taille de particules

La cavitation serait elle tributaire de la taille et existe il une taille minimale permettant de l'amorcer ?

Plusieurs travaux ont mis en évidence qu'en dessous d'une certaine taille, il était impossible à une particule de caviter [21, 32, 51, 52, 53]. Pour un système de PMMA /20% d'élastomère, le renforcement (en terme de ténacité) atteint une valeur maximale pour un diamètre de particules de 250 nm [51]. La résistance au choc du PMMA modifié en fonction de la taille des particules est montrée sur la Figure 1.21. La taille critique des particules d'élastomères pour la cavitation est de 200 nm. La confrontation entre des vitesses de sollicitation faibles et élevées lors d'essais d'impact réalisé par Van der Wal [42] a montré que l'influence de la taille des particules sur la température de transition ductile fragile était différente d'une vitesse à une autre. A vitesse élevée, la température de transition ductile fragile augmente considérablement avec l'augmentation de la taille des particules. Par contre, à faible vitesse,

pour le niveau de taille de particule étudié, la température de transition ductile-fragile diminue.

Lazzeri et Bucknall [39, 53] ont montré à partir d'un critère énergétique que la contrainte requise pour la cavitation d'une particule est d'autant plus élevée que celle-ci est petite.

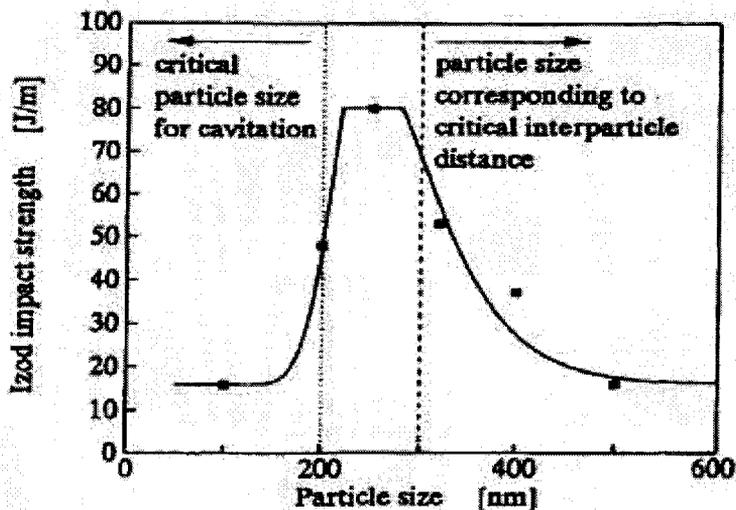


Figure 1.21 : Résistance au choc en fonction de la taille des particules d'un PMMA renforcé par des particules d'élastomère [51].

D'autres auteurs se sont intéressés à l'étude de renforcement et confirment la relation importante entre la distance interparticulaire et la résistance au choc. Par exemple, les travaux de Wei et al. [54] proposent une équivalence distance-interparticulaire-température- vitesse de déformation.

Sur un système de polyéthylène (HDPE) renforcé par des particules élastomères et des particules inorganiques rigides, Bartczak et ses collaborateurs [55] vérifient le résultat obtenu par Wu indépendamment de la nature du renfort. On peut aussi citer les travaux de Baghéri et Pearson [56] qui ont examiné le rôle de la distance interparticulaire dans le renforcement de l'époxy par des particules d'élastomères cavitées. Ou encore l'étude de Loyens et al. [57] qui trouve une distance interparticulaire critique de l'ordre de 100 nm dans son composite PET/EPR.

Adhésion interfaciale

A cet effet de taille des particules, s'ajoute aussi la nature de l'interface entre la particule et la matrice. L'adhésion interfaciale peut avoir une origine physique comme l'enchevêtrement et l'interpénétration des deux phases au voisinage de l'interface.

D'une manière générale, on peut dire qu'une adhésion interfaciale trop faible va donner facilement une décohésion à l'interface. La décohésion précoce au niveau de l'interface empêche la cavitation de la particule (du fait du déchargement local). Cette absence de cavitation va favoriser le caractère fragile de la rupture. Il est donc nécessaire d'avoir une adhésion interfaciale suffisamment forte pour l'optimisation de la ténacité du matériau composite.

Van der Sanden [58] a vérifié qualitativement la dépendance de la température de transition ductile fragile à la qualité de l'adhésion interfaciale. Il utilise des systèmes de polystyrène et de polycarbonate avec un renfort non adhérent d'élastomère. Une mauvaise adhésion suivie d'une décohésion, présente une résistance au choc aussi appréciable que les résultats de la cavitation de la particule d'élastomère elle-même [58]. D'autres comme Dompas et al. [59] ou Lu et al. [60] ont étudié l'apparition de la cavitation ou la décohésion selon l'adhésion à l'interface matrice particule.

L'utilisation des particules core-shell qui donne la possibilité d'ajuster l'adhésion entre la particule et la matrice par des opérations de greffage reste la méthode la plus utilisée. En effet, la technique est de modifier les chaînes d'élastomères avec des molécules qui viendront se localiser aux interfaces et vont permettre la formation d'une interphase matrice/particule.

Dans le cas par exemple de ce travail, nous nous intéressons seulement à l'endommagement par cavitation des élastomères et son influence sur le comportement macroscopique, la matrice de PMMA a été modifiée par des particules core-shell composé d'un cœur d'élastomère et d'une greffe de PMMA qui assure une parfaite adhésion matrice/particule (voir chapitre 3 et 4).

Les résultats synthétisés dans cette revue bibliographique montrent les avantages du renforcement mais illustrent aussi la difficulté de mise en œuvre pour optimiser son efficacité. Les études présentées mettent en avant le rôle variable que peut jouer la taille de la particule de renfort sur le comportement du polymère chargé à différentes conditions de sollicitation de vitesse ou de température. La rupture du polymère choc est gouvernée par des facteurs géométriques locaux (taille des particules, distance interparticulaire, état de dispersion, et l'adhésion interfaciale), mais aussi par des facteurs mécaniques (module de la phase dispersée).

1.5 Modélisation du comportement des polymères amorphes

Dans les dernières décennies, plusieurs modèles constitutifs non élastiques ont été proposés pour décrire le comportement typique des polymères dépendant de la vitesse, de la température et de la pression hydrostatique. Une revue des modèles a été présentée en détail dans la thèse de Zairi [61]. On distingue d'une part les théories phénoménologiques qui ignorent les spécificités microstructurales du matériau, et d'une autre les théories physiques qui en moyennant différentes simplifications donne un sens aux mouvements moléculaires à l'origine du comportement macroscopique fortement non linéaire des polymères.

Nous rappelons dans cette partie les modèles de base en essayant en premier lieu de discuter l'origine physique et moléculaire de ces modèles proposés uniquement pour les polymères. On présente par la suite les modèles couramment utilisés pour les polymères amorphes en faisant des analogies au comportement viscoplastique des métaux.

1.5.1. Modèles physiques

La première théorie est celle d'Eyring [10]. En se basant sur l'écoulement visqueux il exprime la vitesse de cisaillement en fonction de la contrainte d'écoulement. Cette relation permet de déterminer la contrainte d'écoulement plastique lors d'un essai à vitesse de déformation imposée. Cependant plusieurs auteurs [62, 63] ont montré que la théorie d'Eyring est insuffisante et ont tenté de la généraliser pour faire intervenir plusieurs types de mouvement moléculaire et rendre compte des effets de température et de vitesse. Cette théorie représente le seuil d'écoulement en traction en fonction du logarithme de la vitesse de déformation à différentes températures sous forme de droites parallèles. Comme le cas du comportement du PMMA dans les travaux de Bauwens [7] (Figure 1.22).

Robertson en 1966 [11] suppose que les segments de chaîne sont statistiquement distribués entre deux populations conformationnelles de haute et de basse énergie. L'application d'une contrainte diminue la différence d'énergie entre les deux conformations et confère alors au polymère un état microstructural que l'on trouverait à l'état fondu à une température supérieure à T_g et croissante avec le niveau de contrainte. Cette approche ne tient compte que des interactions intramoléculaires. Il est donc logique que la théorie de Robertson soit applicable aux températures proches de la transition vitreuse lorsque les forces de frottement intermoléculaires deviennent plus faibles qu'à plus basse température.

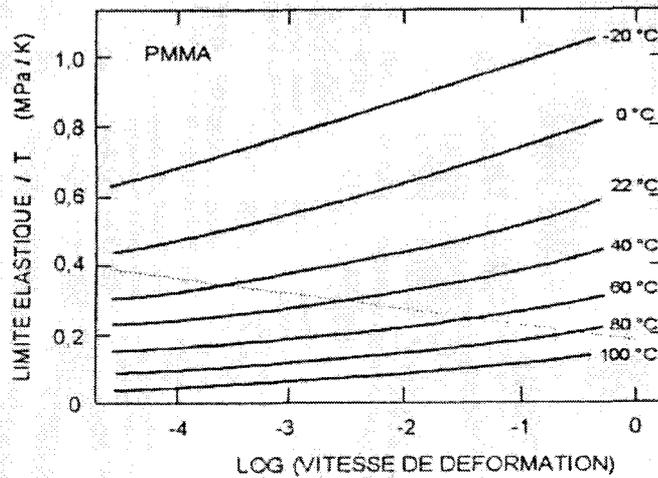


Figure 1.22 : Influence de la vitesse et de la température sur la limite élastique du PMMA en compression [7].

Haward et Thackray (1968) [64] ont développé un modèle unidimensionnel qui prend en compte la dépendance en vitesse de déformation du point d'écoulement et du durcissement associé à l'étirement des chaînes. La réponse élastique est modélisée par un ressort linéaire, le seuil d'écoulement est déterminé par un amortisseur d'Eyring rendant compte de la viscosité et le durcissement est modélisé par le ressort statistique de Langevin. L'état tridimensionnel de la déformation est représenté par des segments de chaînes orientées dans les trois directions principales.

Un peu plus tard, Argon [12] propose un modèle en prenant en compte les forces intermoléculaires. Le modèle d'Argon est considéré comme un cas particulier du modèle d'Eyring où l'énergie d'activation dépend du module. Ce modèle permet de bien décrire l'influence de la température, et de la vitesse de déformation sur la contrainte d'écoulement plastique à des températures inférieures à T_g .

Plus récemment, Boyce et al. [14] ont introduit le modèle appelé « BPA », qui est essentiellement une extension du modèle de Haward-Thackray [64] au cas tridimensionnel, en utilisant la théorie d'Argon et un modèle à trois chaînes pour décrire respectivement, l'écoulement plastique, et la réponse de déformation en durcissement comme on peut le voir sur la Figure 1.23 qui illustre une schématisation du modèle de Haward. Les auteurs ont remplacé la contrainte athermique dans le modèle original par une fonction de la pression dont l'évolution est définie phénoménologiquement. Ce modèle considère que l'adoucissement correspond à une accélération de la vitesse de déformation plastique associée à une évolution microstructurale du matériau. Le durcissement est associé à l'étirement des

chaînes conduisant à la réduction de l'entropie de ces dernières. Cette réduction engendre des forces de rappel entropiques et des contraintes internes associées qui s'opposent à la déformation imposée. Il en résulte localement une contrainte effective $\bar{\sigma} = \sigma - \mathbf{b}$ où σ est le tenseur de contrainte de Cauchy et \mathbf{b} le tenseur associé aux contraintes internes estimée en faisant une analogie avec les modèles de l'élasticité caoutchoutique.

Le modèle BPA a été raffiné plus tard par Boyce [65], Arruda [15] et Wu et Van der Giessen [66] en respectant le durcissement due à la réorientation des chaînes moléculaires, et par Hasan et al. [67] pour introduire l'effet du vieillissement et du rajeunissement.

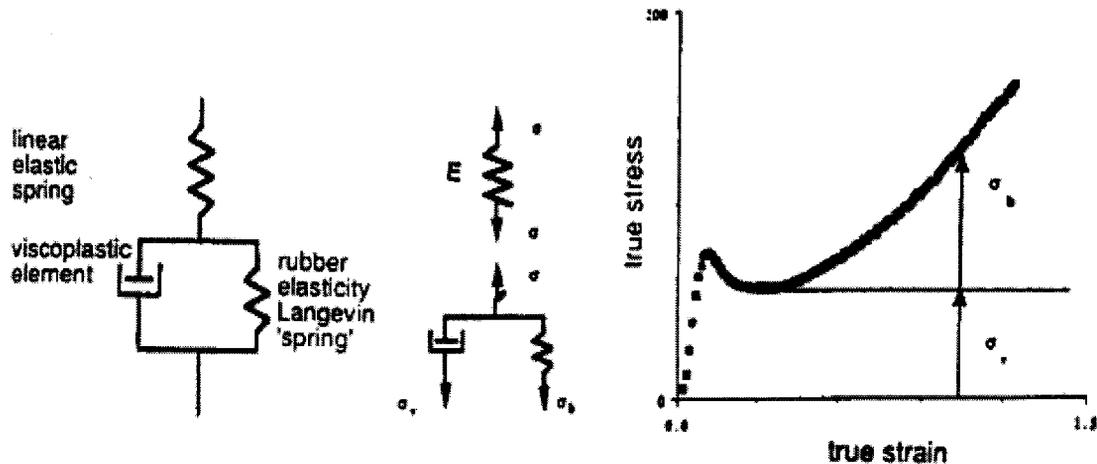


Figure 1.23 : Représentation du modèle de Haward et Thackray et courbe contrainte-déformation montrant les différentes contributions de chaque éléments.

Tous ces modèles supposent que le durcissement est dû à l'alignement chimique des chaînes, et ils utilisent l'élasticité caoutchoutique Gaussienne ou la fonction de Langevin pour décrire cette augmentation de contrainte à des élongations de chaînes limitées. L'adoucissement intrinsèque, est le résultat de l'évolution des déformations inhomogènes tel que les bandes de cisaillement et les craquelures.

La formulation de Boyce repose sur une représentation de trois chaînes (Figure 1.24 a) proposées initialement par Wang et Guth [68]. Cependant, dans la modification du modèle présenté par Arruda [15], le polymère est représenté par huit segments de chaînes partant d'un nœud situé au centre d'un cube orienté selon les trois directions principales et dirigées vers les huit coins du cube (Figure 1.24 b). Les modèles à trois, et huit chaînes présentent l'intérêt d'être capable de décrire le comportement à l'aide de seulement deux paramètres du matériau, déterminables après une seule expérience. Boyce et Arruda [14, 15] ont montré que si pour un mode de déformation donné, les modèles sont équivalents, le modèle à huit chaînes est le seul à pouvoir prétendre décrire un comportement dans un autre type de sollicitation à

partir des deux mêmes constantes. La loi de comportement du tenseur des contraintes internes \mathbf{b} associé au durcissement dépend des élongations plastiques principales λ_α . On détermine les composantes b_α selon les directions principales du tenseur de déformation plastique. Ceci provient de la distribution des orientations des chaînes moléculaires dans un réseau à trois chaînes ou huit chaînes non Gaussien.

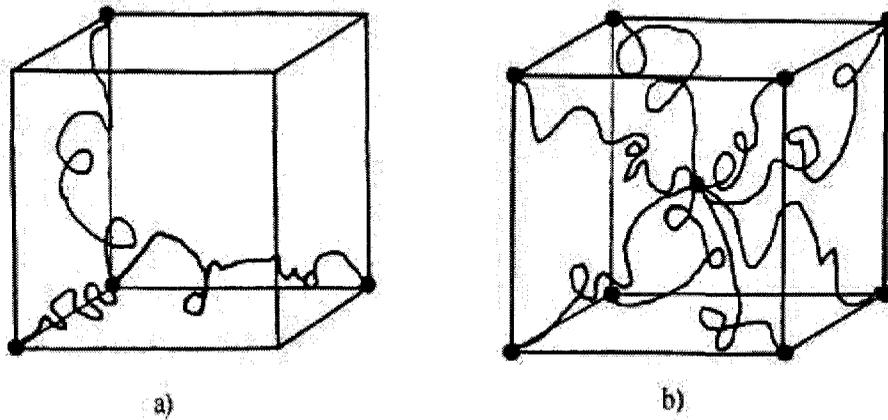


Figure 1.24 : Réseau de chaînes représentant le polymère, (a) modèle à trois chaînes, (b) modèle à huit chaînes.

Wu et al. [66, 69] ont montré que le modèle BPA est approché de façon satisfaisante par une combinaison linéaire des modèles à trois et huit chaînes où b_α sera :

$$b_\alpha = (1 - \rho) b_\alpha^{3-ch} + \rho b_\alpha^{8-ch} \quad 1.2$$

Avec

$$b_\alpha^{3-ch} = \frac{1}{3} C^R \sqrt{N} \lambda_\alpha L^{-1} \left(\frac{\lambda_\alpha}{\sqrt{N}} \right) \quad 1.3$$

$$b_\alpha^{8-ch} = \frac{1}{3} C^R \sqrt{N} \frac{\lambda_\alpha^2}{\lambda_c^2} L^{-1} \left(\frac{\lambda_\alpha}{\sqrt{N}} \right) \quad 1.4$$

et ρ est un paramètre définie par $\rho = 0.85 \max(\lambda_1, \lambda_2, \lambda_3) / \sqrt{N}$.

λ_α étant les valeurs propres du tenseur de déformation, N le nombre de segments rigides entre les points d'enchevêtrement, λ_c étant l'élongation plastique $\lambda_c^2 = \frac{1}{3} \sum_{\beta=1}^3 \lambda_\beta^2$. La fonction de

Langevin est $L(x) = \coth(x) - \frac{1}{x}$. Le paramètre C^R correspond à un module caoutchoutique.

Lorsque la limite d'étirement $\lambda_{\max} = \sqrt{N}$ est atteinte, le réseau est bloqué, et toute possibilité d'écoulement plastique est épuisée.

Tervoort [70] développe un modèle en introduisant une description Neo-Hookéenne du durcissement dans le modèle de Leonov composé d'un ressort linéaire compressible et l'amortisseur de Eyring, en séparant la contrainte hydrostatique et le déviateur de contrainte. Une extension de ce modèle a été proposée par Timmermans [71], Govaert [72] en incorporant l'adoucissement intrinsèque par une contrainte interne dans le modèle de Leonov. La description élastoviscoplastique et tridimensionnelle de Boyce et al. [14] est une formulation assez complète car elle permet de rendre compte de l'ensemble des stades de déformation spécifiques aux polymères amorphes, à l'aide de variables internes qui enrichissent la description originelle d'Argon.

1.5.2. Modèles phénoménologiques

Ces lois issues de la métallurgie, ont la plupart une origine phénoménologique et décrivent essentiellement le comportement plastique des métaux. Elles ont parfois de ce fait quelques difficultés à reproduire correctement le durcissement structural des polymères différent de celui des métaux. On trouve de nombreuses lois de comportement multiplicatives reliant la contrainte à la fois à la déformation et à la vitesse de déformation. Nous citons quelques exemples des lois constitutives viscoplastiques, dits modèles unifiés tenant compte des effets plastiques et visqueux couplés, ne faisant pas la distinction entre la déformation plastique et celle du fluage. Ces modèles ont été repris par les polyméristes pour rendre compte du comportement complexe des polymères.

Perzyna propose dans les années soixante une loi viscoplastique [73]. Son principe est basé sur la loi de comportement plastique avec la règle de normalité [74]. Sa forme est :

$$\mathbf{D}^p = \gamma \langle \phi(\mathbf{F}) \rangle \frac{\partial \mathbf{F}}{\partial \boldsymbol{\sigma}'} \quad 1.5$$

$$\text{Où} \quad \mathbf{F} = \mathbf{J}(\boldsymbol{\sigma}') - \mathbf{R} \quad 1.6$$

$$\text{Soit} \quad \mathbf{D}^p = \frac{3}{2} \gamma \langle \phi(\mathbf{F}) \rangle \frac{\boldsymbol{\sigma}'}{\mathbf{J}(\boldsymbol{\sigma}')} \quad 1.7$$

Avec :

\mathbf{D}^p : La partie plastique du tenseur vitesse de déformation (déformation inélastique)

$\gamma(T)$: Le coefficient de viscosité en fonction de la température.

$R(T)$: le paramètre d'écroissage qui dépend de la température, pour le matériau sans écroissage $R=k$, k est la limite élastique.

$\phi(F)$: La fonction arbitraire non linéaire du potentiel viscoplastique F choisi sous forme d'une loi puissance généralement.

Et $J(\sigma)$ le second invariant du déviateur de contrainte.

Ce modèle a suscité beaucoup d'attention dans la littérature, car validé au préalable expérimentalement dans les travaux de Perzyna 1983 [75]. De plus sa simplicité d'écriture permet faciliter son implémentation dans des codes de calcul. Peric et Owen (1992) [76] ont utilisé ce modèle dans leurs études numériques pour adapter au grandes déformations le comportement des matériaux dépendant du temps et de l'histoire de la déformation. Les travaux récents de Van der Sluis [77, 78], sur le polycarbonate chargé par des particules d'élastomères ont apporté une approche intéressante basée sur le modèle de Perzyna et un écroissage non linéaire qui a montré l'efficacité de l'utilisation de ce type de modèles pour les polymères. D'autres comme Corigliano et ses collaborateurs [79] se sont intéressés à la modélisation des couches polymériques en utilisant le modèle de Perzyna.

La loi proposée par Bodner-Partom permet de modéliser le comportement viscoplastique du matériau sans faire référence à la surface d'écoulement plastique [80]. Sa forme générale est la suivante :

$$\mathbf{D}^p = \frac{3}{2} \dot{p} \frac{\boldsymbol{\sigma}'}{J(\boldsymbol{\sigma}')} \quad 1.8$$

Dans la littérature on peut trouver deux formulations du taux de déformation viscoplastique cumulée \dot{p} :

La première de type A (dans les travaux de Bodner et al 1975 [80]) exprime le taux de déformation inélastique cumulée sous la forme

$$\dot{p} = \frac{2}{\sqrt{3}} \mathbf{D}_0 \exp \left[-\frac{1}{2} \left(\frac{Z}{J(\boldsymbol{\sigma}')} \right)^{2n} \frac{n+1}{n} \right] \quad 1.9$$

La deuxième, nommée type B (travaux de Chan et al 1988 [81]) s'écrit

$$\dot{p} = \frac{2}{\sqrt{3}} \mathbf{D}_0 \exp \left[-\frac{1}{2} \left(\frac{Z}{J(\boldsymbol{\sigma}')} \right)^{2n} \right] \quad 1.10$$

Avec la loi d'écroissage $Z = R + D$

En 2001 le modèle de Bodner a été modifié par Frank et Brockman [82], afin de rendre compte du plateau horizontal après la limite élastique puis le durcissement final d'un polycarbonate en traction en introduisant une nouvelle forme du taux de déformation cumulée :

$$\dot{\mathbf{p}} = \frac{2}{\sqrt{3}} \mathbf{D}_0 \left(\frac{\mathbf{J}(\boldsymbol{\sigma}')}{Z} \right)^{2n} \quad 1.11$$

Plus tard Goldberg et al. [83] propose une autre expression du taux de déformation cumulée pour prendre en compte la dépendance en pression hydrostatique des polymères sous la forme :

$$\dot{\mathbf{p}} = \frac{2}{\sqrt{3}} \mathbf{D}_0 \exp \left[-\frac{1}{2} \left(\frac{Z}{\mathbf{J}(\boldsymbol{\sigma}') + \alpha \text{tr}(\boldsymbol{\sigma})} \right)^{2n} \right] \quad 1.12$$

Avec α une variable contrôlant la sensibilité à la pression hydrostatique.

Zairi et al. [84] ont tenté de décrire le comportement viscoplastique d'un polymère vitreux en modifiant les équations constitutives du modèle de Bodner-Partom. Ils couplent leur modèle modifié à la formulation de Gurson pour prendre en compte l'adoucissement [25].

Le modèle de Chaboche [85] représente un élargissement du modèle de Perzyna. Sa loi viscoplastique résulte de l'hypothèse de l'existence d'un potentiel viscoplastique ou de dissipation [86]. Les lois d'écoulement s'expriment alors à partir de la propriété de normalité des matériaux standard généralisés :

$$\mathbf{D}^p = \frac{\partial \Omega}{\partial \boldsymbol{\sigma}} \quad \dot{\alpha} = -\frac{\partial \Omega}{\partial \mathbf{X}} \quad \dot{r} = -\frac{\partial \Omega}{\partial \mathbf{R}} \quad 1.13$$

Et on définit Ω le potentiel de dissipation qui s'écrit

$$\Omega = \Omega(\boldsymbol{\sigma}, \mathbf{X}, \mathbf{R}, T, \alpha, r) \quad 1.14$$

T, α, r : Sont des variables d'état qui jouent uniquement le rôle de paramètres: la température, le tenseur d'écrouissage cinématique et la variable d'écrouissage isotrope. Et \mathbf{X} la variable interne.

Dans le cas particulier du matériau de Von Mises et sous condition isothermique, la formule de la vitesse de déformation peut être écrite sous la forme :

$$\dot{\mathbf{E}}^I = \frac{3}{2} \dot{\mathbf{p}} \frac{\boldsymbol{\sigma}' - \mathbf{X}'}{\mathbf{J}(\boldsymbol{\sigma}' - \mathbf{X}')} \quad 1.15$$

$$\dot{\mathbf{p}} = \gamma \left\langle \frac{\mathbf{J}(\boldsymbol{\sigma}' - \mathbf{X}') - \mathbf{R} - \mathbf{k}}{\mathbf{K}} \right\rangle^n \quad 1.16$$

n : exposant de viscosité (paramètre de sensibilité à la vitesse de déformation)

k : limite élastique initiale

K : fonction de résistance plastique

γ : coefficient de viscosité ($\gamma = 1 [1/s]$)

Dans la loi de Chaboche l'écoulement cinématique peut être superposé à un écoulement isotrope, soit pour améliorer la modélisation (en traction par exemple), soit parce que l'on observe effectivement une expansion des surfaces équipotentielles autour du centre, soit pour décrire les effets de durcissement ou d'adoucissement dans les essais cycliques.

L'extension de ce modèle a été proposée par Chaboche dans ces travaux de 1997 [87] pour étudier le comportement viscoélastique d'une résine époxyde en introduisant une formulation sans seuil. D'autres comme Kammerer et al. [88], ou encore Saleeb et al. [89] plus récemment ont utilisé la loi de Chaboche pour modéliser le comportement des polymères.

Parmi ces modèles on peut distinguer deux groupes selon la formulation mathématique. Le premier groupe ne fait pas de référence à la surface d'écoulement. L'absence de la surface limite d'écoulement dans les modèles nécessite une formulation mathématique plus élaborée pour reproduire directement le passage entre la partie linéaire et curviligne du diagramme contrainte déformation (Bodner-Partom). Dans le deuxième groupe la contrainte interne isotrope R représentant la surface d'écoulement plastique permet de manière claire de distinguer les domaines linéairement élastique et inélastique dans le comportement du matériau (Perzyna [73], Chaboche [85]).

1.6 Conclusion

La résistance à la rupture des polymères fragiles est considérablement améliorée par l'incorporation de fines particules, qui à son tour cavitent et favorise la déformation plastique de la matrice en redistribuant les contraintes dans le matériau. La confrontation entre expérience et théorie a mis en évidence le rôle de la cavitation des particules d'élastomères à l'origine de l'efficacité du renforcement.

De nombreux paramètres tels que la taille et la nature de l'élastomère, la distribution et le taux de renfort, ou encore l'adhésion interfaciale jouent un rôle sur le comportement local et global de la matrice, mais un intérêt particulier est porté à la distance interparticulaire qui a la particularité de gouverner la transition ductile fragile.

Nous avons évoqué aussi dans ce chapitre un certain nombre de théorie de base des modèles viscoplastique permettant d'expliquer certains aspects du comportement rencontré dans l'étude des polymères solides et la compétition des différents mécanismes de

déformation. Mais pour la plupart de ces lois, elles ne permettent de décrire qu'une fenêtre souvent restreinte du comportement de ces matériaux. Identifiées en conditions simples, elles sont impossibles à étendre à des situations plus complexes. Il est encore difficile de trouver une loi unique capable de modéliser le comportement de tous les matériaux pour tous les modes de sollicitations et dans n'importe quelles conditions. En effet, un modèle donné ne peut s'identifier correctement que si l'on dispose de résultats d'essais en nombre suffisant, mettant en jeu une plage de variation importante de chacun des coefficients à identifier.

Pour notre étude où on se propose de prédire le comportement macroscopique d'un composite polymère en connaissant les propriétés de sa microstructure, nous avons adopté la formulation élastoviscoplastique de Perzyna en se reposant sur sa capacité de reproduire le comportement de notre matériau polymère (résultats intéressants de [77, 78]), la facilité avec laquelle on pourra déterminer ses différents paramètres à partir de mesures simples, et la possibilité d'utiliser cette loi couplée avec un modèle d'écrouissage isotrope dans des simulations numériques à l'aide de programmes en Eléments Finis.

Chapitre 2

*Homogénéisation : aspects théoriques et
éléments bibliographiques*

2.1 Introduction

La technique d'homogénéisation vise à obtenir, par l'analyse de l'hétérogénéité du matériau de référence, des modèles de comportement homogène macroscopique équivalents ayant un pouvoir prédictif fiable, et pouvant s'intégrer dans un code de calcul. L'efficacité de cette démarche repose sur le choix de l'échelle pertinente pour représenter les propriétés physiques auxquelles on s'intéresse et sur la description, à cette échelle, des microstructures et des mécanismes actifs. On désigne ce passage d'une échelle d'appréhension des phénomènes et des propriétés à une autre par « le passage micro-macro ».

Nous nous intéressons désormais dans ce chapitre à la théorie de l'homogénéisation nécessaire à l'étude que l'on désire mener, à savoir l'étude du comportement macroscopique de matériaux composites polymères avec prise en compte de l'endommagement. Dans cette optique, des approches d'homogénéisation classiques seront présentées ainsi que la motivation du choix de la technique d'homogénéisation périodique numérique.

2.2 Généralité sur la théorie de l'homogénéisation

Il est aisé de concevoir que la rupture d'un matériau composite constitué, d'au moins deux composants dépend fortement des caractéristiques matérielles et géométriques de ses constituants, mais, également de leur interaction. C'est en ce sens que le comportement en service, celui donc qui intéresse l'ingénieur et que nous appellerons comportement macroscopique d'une structure, va fortement dépendre des mécanismes qui agissent aux niveaux de ses constituants. Il apparaît donc comme primordial de savoir appréhender les comportements, dits microscopiques des constituants, afin de pouvoir prévoir le comportement des structures à l'échelle macroscopique. Or, réaliser un calcul de structures en prenant rigoureusement en compte tous les mécanismes microscopiques est, quasiment impossible. La complexité de la méthode qu'il faudrait adopter pour décrire exactement la structure hétérogène, réside dans la description de la microstructure et du comportement des matériaux constitutifs de façon assez détaillée.

C'est là l'objectif principal des méthodes d'homogénéisation qui attirent l'attention depuis environ une trentaine d'années (Bornert et Michel 2001) [90], d'autant plus que l'élaboration de matériaux composites, conçus afin de posséder des performances bien spécifiques, connaît un essor permanent.

En d'autres termes, la théorie de l'homogénéisation consiste à remplacer un matériau réel hétérogène par un matériau fictif, dit homogène équivalent, censé se comporter de la même façon que le matériau réel, une fois soumis aux mêmes chargements. Ainsi, l'illustration de cette théorie prend tout son sens si l'on se place au point de vue numérique.

L'efficacité de cette démarche repose et sur le choix de l'échelle pertinente pour représenter les propriétés physiques auxquelles on s'intéresse et sur la description à cette échelle, des microstructures et des mécanismes actifs.

2.2.1 Séparation des échelles, notion du VER

La séparation des échelles consiste à définir l'échelle de description. Schématiquement, elle ne vise à décrire qu'un secteur limité de la structure. L'unique critère de choix, dans cette tâche, est dicté par la taille caractéristique des hétérogénéités structurales considérées. Cependant, tout dépend de l'objectif visé. Le choix de l'échelle de départ à adopter est guidé par deux préoccupations : ne pas descendre inutilement à un niveau plus fin qu'il n'est nécessaire pour rendre compte des propriétés que l'on veut analyser, et s'assurer que l'échelle retenue est encore justifiable par les éléments de la mécanique des milieux continus [90].

Lorsque la séparation des échelles permet de définir un « Volume Élémentaire Représentatif » **VER** du matériau hétérogène considéré qui reste suffisamment petit par rapport aux dimensions caractéristiques des structures macroscopiques et dont le comportement mécanique global peut être affecté aux points de ces structures comme « comportement homogène équivalent » ou « comportement effectif ». Le milieu hétérogène réel pourra donc être remplacé par un milieu homogène effectif (MHE) de telle sorte que le calcul de la structure constituée de ce matériau homogène fictif donne des champs de contraintes et de déformation macroscopiques qui soient les moyennes des champs locaux microscopiques, qui auraient pu être calculés sur la structure réelle. Ce choix de représenter un point macroscopique par un élément de volume (Figure 2.1), qui consiste en fait à effectuer un zoom sur le point afin de détailler les hétérogénéités qui lui sont associées, implique donc de faire la distinction entre les deux échelles évoquées précédemment :

- l'échelle macroscopique qui est l'échelle de la structure, des chargements imposés et de toutes autres quantités dépendantes uniquement de la position globale (ou macroscopique).
- l'échelle microscopique qui est l'échelle du VER, à l'intérieur duquel le repérage est défini par la longueur l , représentant la position locale.

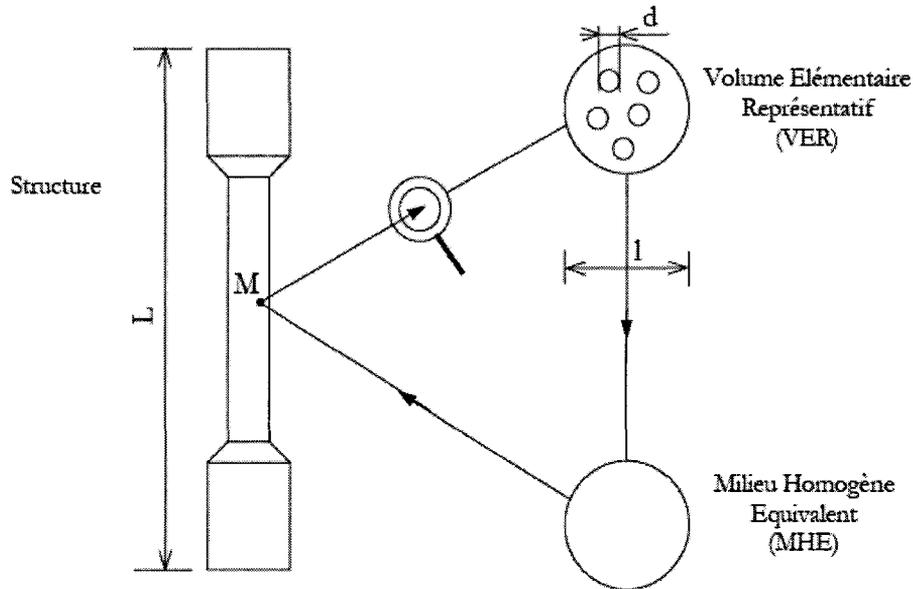


Figure 2.1 : Séparation des échelles ($d \ll l \ll L$).

Le milieu hétérogène réel pourra donc être remplacé par un « Milieu Homogène Effectif » *MHE* de telle sorte que le calcul de la structure constituée de ce matériau homogène fictif donne des champs de contraintes et de déformations macroscopiques qui soient les moyennes des champs locaux microscopiques, qui auraient pu être calculés sur la structure réelle.

2.2.2 Méthodologie de l'homogénéisation

L'objet d'étude est donc un VER de matériau hétérogène de caractéristiques mécaniques et géométriques variables. Le but est de définir un milieu homogène fictif de même géométrie externe que le VER, qui soumis aux mêmes sollicitations que lui, aurait une réponse globale identique. Cela nécessite trois séries d'opérations :

- L'étape de la représentation ;
- L'étape de la localisation ;
- L'étape de l'homogénéisation.

2.2.2.1 Représentation

Cette étape consiste en la description structurelle, géométrique et physique du VER. Pour cela, il faut définir la géométrie et l'échelle externe du VER et celles de ses constituants. Comment sont-ils arrangés ? De manière périodique ou aléatoire ?

On distingue alors deux classes de matériaux :

- les matériaux désordonnés, qui présentent une répartition aléatoire de leurs hétérogénéités et nécessitent alors une représentation statistique : ce sont par exemple les matériaux polycristallins, pour lesquels l'indétermination se traduit par des orientations et formes de grains aléatoires.
- Les matériaux périodiques, qui présentent une microstructures aux propriétés répétitives et autorisent alors une représentation déterministe du VER qui sera dans ce cas une cellule, appelée cellule de base qui, translatée dans toutes les directions de l'espace d'étude, permettra de reconstituer entièrement le matériau : ce sont en général les matériaux composites, fabriqués dans un but bien particulier induisant, dans la plupart des cas, cette périodicité par souci de performances.

Aussi, il faut décrire, à ce stade, la loi de comportement ainsi que les propriétés caractéristiques de chaque élément constitutif du VER.

2.2.2.2 Localisation

Une fois le VER défini, l'étape de localisation consiste en la formulation du problème dont il fait l'objet. En effet cette étape vise à déterminer les relations liant respectivement les contraintes σ et déformations ε locales aux contraintes Σ et déformations \mathbf{E} globales. Eventuellement, on pourrait adopter des hypothèses liées, à la périodicité de la structure analysée. L'étape de localisation consiste finalement à établir les équations du problème à résoudre. On aurait pu donc obtenir de nombreuses formulations possibles selon le choix et la modélisation du VER. Pour ce faire, on considère que les champs locaux (microscopiques) régnant dans le VER découlent des sollicitations imposées à la structure sous forme de forces ou déplacements. A la fin de cette étape on disposera des tenseurs a^E et a^Σ , appelés respectivement tenseur de localisation en déformation et tenseur de localisation en contrainte, tels que :

$$\begin{cases} \varepsilon = a^E : \mathbf{E} \\ \sigma = a^\Sigma : \Sigma \end{cases} \quad 2.1$$

On obtient alors deux problèmes de localisation à résoudre selon les sollicitations imposées :

- Approche déformation : \mathbf{E} imposée

$$\begin{aligned} \mathbf{div} \boldsymbol{\sigma} &= 0 \quad \text{dans } V \\ \boldsymbol{\sigma} &= \mathbf{C} : \boldsymbol{\varepsilon} \quad \text{dans } V \\ \langle \boldsymbol{\varepsilon} \rangle_V &= \mathbf{E} \end{aligned} \tag{2.2}$$

\mathbf{C} : le tenseur de rigidité.

- Approche contrainte : $\boldsymbol{\Sigma}$ imposée

$$\begin{aligned} \mathbf{div} \boldsymbol{\sigma} &= 0 \quad \text{dans } V \\ \boldsymbol{\sigma} &= \mathbf{C} : \boldsymbol{\varepsilon} \quad \text{dans } V \\ \langle \boldsymbol{\sigma} \rangle_V &= \boldsymbol{\Sigma} \end{aligned} \tag{2.3}$$

Cependant, il faut respecter les limites du domaine des valeurs possibles pour les caractéristiques effectives. Ainsi, on cherche à établir des bornes ou un encadrement pour ces grandeurs relatives au comportement homogène équivalent.

2.2.2.3 Homogénéisation

L'étape d'homogénéisation consiste en l'expression du comportement effectif équivalent ainsi qu'à son estimation. Comme pour l'étape précédente à la fin de l'étape d'homogénéisation, les lois de comportement homogénéisées sont disponibles, et sont au nombre de deux, suivant que l'on ait imposé une déformation ou une contrainte macroscopique :

$$\begin{cases} \mathbf{E} = \langle \boldsymbol{\varepsilon} \rangle_V = \mathbf{S}^{eff} : \boldsymbol{\Sigma} \\ \boldsymbol{\Sigma} = \langle \boldsymbol{\sigma} \rangle_V = \mathbf{C}^{eff} : \mathbf{E} \end{cases} \tag{2.4}$$

Avec \mathbf{C}^{eff} et \mathbf{S}^{eff} respectivement le tenseur des modules et des complaisances.

Ces lois macroscopiques déterminent entièrement le comportement homogène équivalent (Figure 2.2), à partir des relations de moyennes, énoncées en général par la méthode des moyennes, ou démontrées plus rigoureusement par des méthodes mathématiques.

L'utilisation du lemme de Hill permet d'établir l'expression énergétique des caractéristiques effectives. Il peut s'appliquer quel que soit le comportement et joue un rôle central dans l'homogénéisation.

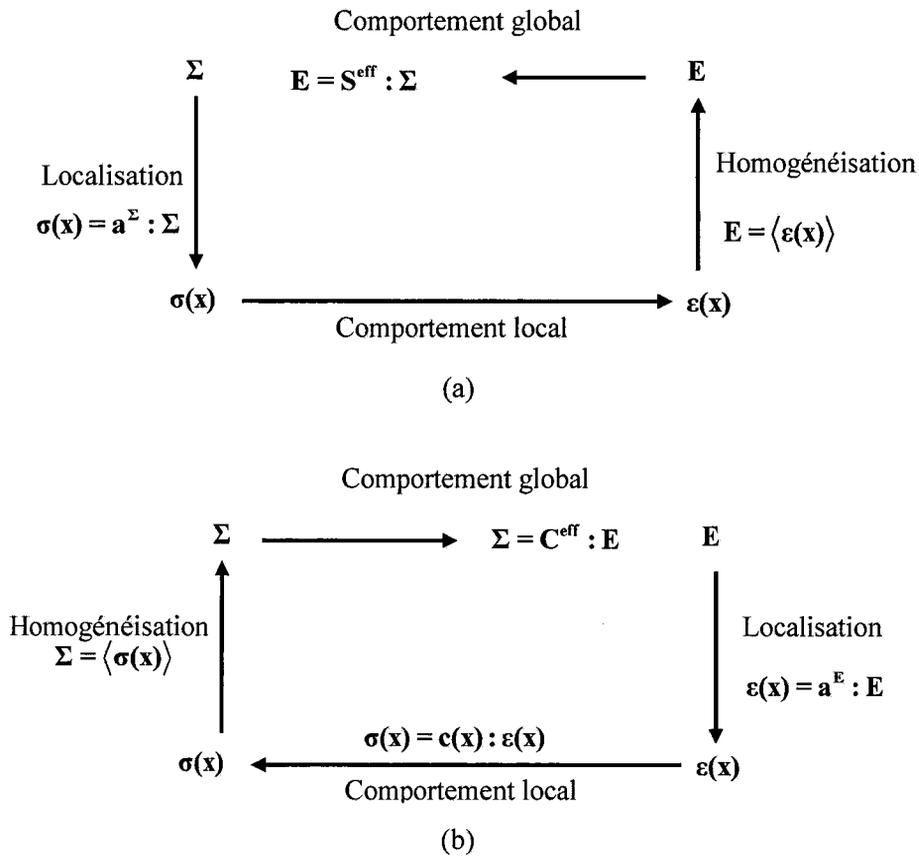


Figure 2.2 : Principe général du comportement effectif (a) en contraintes homogènes, (b) en déformation homogènes.

Rappel du lemme de Hill (Hill 1963) [91]

Soient σ^* et ε^* deux champs respectivement de contraintes équilibrées ($div \sigma = 0$ dans V) et de déformations compatibles ($\varepsilon^* = \varepsilon^*(\mathbf{v})$) non nécessairement associés tel que \mathbf{v} est un champ de déplacement périodique. Alors, si σ^* vérifie des conditions de contraintes périodiques ou homogènes au contour ∂V ou si ε^* vérifie des conditions de déformations périodiques ou homogènes sur ∂V , on a :

$$\langle \sigma^* : \varepsilon^*(\mathbf{v}) \rangle = \langle \sigma^* \rangle : \langle \varepsilon^*(\mathbf{v}) \rangle \tag{2.5}$$

Où $\langle \cdot \rangle$ représente la moyenne d'un tenseur ou d'un vecteur

Le lemme de Hill [91] dénommé quelquefois « condition de macrohomogénéité de Hill » assure l'égalité du travail (ou la puissance) macroscopique et de la moyenne spatiale du travail (ou la puissance) microscopique.

L'étape d'homogénéisation est considérée comme un objectif final du processus d'homogénéisation. Mais en réalité, certains comportements globaux sont particulièrement

sensibles aux réponses locales du matériau hétérogène. Une fois les caractéristiques effectives du matériau déterminées et le calcul sur la structure homogénéisée réalisé, il faut revenir au problème de localisation, par une démarche inverse appelée « relocalisation », pour analyser les champs locaux. Dans ces circonstances, ainsi que dans celles où l'on envisage des transformations finies, il est nécessaire de réactualiser continûment la représentation de la microstructure, qui évolue elle-même avec la transformation globale.

2.2.3 Différentes méthodes d'homogénéisation (Bornes et estimations)

Une des missions de l'approche micromécanique est d'établir des modèles micromécaniques convenables, pour analyser et calculer les comportements mécaniques de chaque constituant, en vue de prédire les comportements mécaniques macroscopiques des matériaux. Plusieurs modèles micromécaniques existent, et tous s'attachent à prévoir les comportements mécaniques des matériaux, en relation avec la microstructure (forme des inclusions, orientations des inclusions, fractions volumiques des inclusions...etc). Ces modèles s'appuient généralement sur le problème d'inclusion d'Eshelby [92].

Les différentes méthodes d'homogénéisation qu'on présente ici se distinguent principalement au niveau de la localisation, ce qui est lié au choix du VER et à sa modélisation. De nombreux auteurs se sont intéressés à l'étape de localisation soit à déformation imposée, soit à contrainte imposée, en rajoutant des conditions aux limites sur le contour ∂V du VER, représentant au mieux les phénomènes subis par le milieu hétérogène ainsi que leur conséquences. En considérant que les constituants du VER sont élastiques linéaires et parfaitement collés.

Les premières expressions proposées pour encadrer les propriétés élastiques de composites sont issues des travaux de Voigt et de Reuss (Voigt 1889, Reuss 1929) [90]. Ces bornes, d'ordre 1, sont considérées comme optimales si la seule information disponible sur le système étudié concerne les modules d'élasticité et les fractions volumiques des différentes phases.

De nouvelles bornes, d'ordre supérieur, ont été proposées par différents auteurs en définissant des champs admissibles plus fins que les champs uniformes associés aux bornes précédentes à partir de champs de polarisation et d'approches statistiques, fondées sur la connaissance de fonctions de corrélation d'ordre au moins égal à 2 des modules d'élasticité (Hashin 1962, Kröner 1977) [93, 94]. De telles approches permettent ainsi d'établir des bornes plus resserrées que les bornes précédentes à partir d'informations additionnelles sur la microstructure, comme les notions de distribution isotrope.

Hashin et Shtrickman (1963) [95] ont donné à partir de ce principe variationnel, un encadrement plus resserré des modules élastiques des matériaux isotropes en utilisant l'assemblage de sphères composite proposé par Hashin [93]. Ces bornes sont directement dépendantes du rapport des propriétés élastiques des différents constituants. Elles sont particulièrement précises lorsque le rapport des modules inclusion/matrice est faible.

Herve-Soltz-Zaoui (1991) [96] ont proposé au début des années 90 de nouvelles bornes pour déterminer les propriétés élastiques des systèmes hétérogènes particulières en resserrant les bornes proposées par Hashin et Shtrickman [95] à l'aide de la théorie du désordre gradué.

En résumé, si aucune information autre que l'identité des constituants et leurs modules d'élasticité n'est disponible, les bornes d'ordre 0 (modules extrêmes) sont optimales. Les bornes de Voigt et Reuss sont utilisables quant à elles si on connaît les fractions volumiques des différentes phases. Les bornes de Hashin et Shtrickman [95] ou celles de la théorie systématique de Kröner [94] sont attachées à des informations morphologiques plus riches.

Un grand nombre d'auteurs se sont intéressés à ce problème et des modèles ont été élaborés afin de proposer des estimations définies plutôt que des bornes : il en est ainsi par exemple des schémas autocohérent et autocohérent généralisé (Hill 1965, Christensen et Lo 1979) [97, 98]. Dans les méthodes autocohérentes, on suppose que l'état mécanique d'une phase, regroupant toutes les inclusions ou grains appartenant à cette phase (présentant par exemple une orientation similaire), peut être estimé comme étant celui d'une inclusion sphérique ou ellipsoïdale noyée dans un milieu infini matrice, dont les caractéristiques mécaniques sont les inconnues du problème.

La théorie autocohérente a été proposée au commencement par Hill en 1965 [99] pour étudier les propriétés élastoplastiques de l'agrégat polycristallin en utilisant un monocristal. Ensuite, Kröner et Budiansky [94, 100] l'ont utilisée et développée. Mais l'extension de cette approche aux matériaux composites a été réalisée par Hill [97] en introduisant la théorie de l'inclusion d'Eshelby [92] dans cette approche. Le matériau est ainsi traité par un processus avec lequel on cherche le module effectif en supposant que l'inclusion se situe dans un milieu infini, puis on imagine une suite d'opérations pour mettre successivement la matrice et l'inclusion dans ce milieu et établir une relation de tenseur partiel entre déformations et contraintes.

De tels modèles ont été appliqués avec succès à la description de propriétés élastiques de composites comme les travaux de Biwa [101] sur le PMMA renforcé par des particules d'élastomères, voire viscoélastiques dans le cas de composites à matrice polystyrène renforcé par des billes de verre [102].

2.2.4 Homogénéisation non linéaire

La généralisation des traitements précédents au cas de comportements locaux non linéaires (élastoplastique, viscoplastique, élastoviscoplastique) est un domaine de recherche en plein développement et encore non figé. Dans le cas des matériaux aléatoires il existe plusieurs extensions du modèle autocohérent [90]. Dans les cas élastoplastique et viscoplastique, on généralise les résultats obtenus en élasticité en utilisant les modules sécants ou tangents des lois considérées [103]. Que ce soit des méthodes variationnelles ou empiriques, l'homogénéisation des matériaux ayant des comportements non linéaires passe habituellement par la définition d'un matériau linéaire de comparaison. Ce matériau est obtenu par une linéarisation de la loi de comportement, autour d'un état de référence (contrainte moyenne, second moment), pour chaque phase non linéaire tout en conservant les aspects morphologiques du problème (orientation, forme des renforts par exemple). Des mécaniques linéaires (élastiques ou viscoélastiques) homogènes sont affectées à chaque phase et le problème peut être résolu à l'aide des outils classiques de l'homogénéisation, établies pour des matériaux linéaires. Lorsque le matériau linéaire de comparaison est viscoélastique, le principe de correspondance viscoélastique, fait intervenir les transformées de Laplace-Carson [104] pour résoudre le problème. Bien que l'homogénéisation de matériaux décrits par des potentiels uniques (élasticité ou viscoplasticité non linéaires) ait reçu une grande attention, peu d'auteurs se sont intéressés à des lois de comportement plus générales (plusieurs pseudo-potentiels, lois écrites sous forme fonctionnelle, etc.). Weng [105] a été parmi les premiers à aborder l'élasto-viscoplasticité non linéaire, suivi par Masson et Zaoui [106] et Brenner et al. [107], pour citer quelques uns. Ces auteurs ont considéré des lois de comportement données comme une somme de pseudo-potentiels faisant intervenir, ou non, des variables internes. Des lois de comportement données sous forme fonctionnelle ont été étudiées par Pouya et Zaoui [108]. Une approche relativement récente a été aussi proposée par Ponte Castaneda [109] à l'appui d'une nouvelle formulation variationnelle pour l'homogénéisation non linéaire : c'est la procédure du second ordre.

D'autres contributions importantes ont été mis en évidence par Tondon et Weng [110] pour la théorie en petites déformations de l'élastoplasticité des métaux avec des particules élastiques, Dvorak et Bahei-el-Din [111] pour une matrice plastique et des fibres élastiques en utilisant la théorie bimodale plastique. Plus récemment, Paley et Aboudi [112] ont développé une méthode semi analytique générale de cellules pour des matériaux élastoplastique et

viscoplastique, alors que Nemat-Nasser [113] et ses collaborateurs ont utilisé les séries de Fourier pour développer des modèles élastoplastiques en fluage. L'application de ces modèles non linéaires à des microstructures complexes dans beaucoup de matériaux réels était plus efficace que les modèles linéaires. C'est le fait que quand l'écoulement plastique apparaît, la déformation est non homogène. Les propriétés locales deviennent dépendantes de l'état de contrainte et la réponse constitutive est influencée par les distributions et la forme de la seconde phase.

La principale difficulté associée avec les lois de comportement données sous forme fonctionnelles est que le type de linéarisation n'a plus de définition intuitive. En effet, la loi de comportement fait intervenir l'histoire du chargement et non une valeur ponctuelle, ce qui rend plus compliqué le calcul d'un module tangent (par dérivation) ou un module sécant, par exemple.

La mise en œuvre de ces lois exige des traitements numériques complexes (résolution d'équations intégrales), ce qui entrave l'implémentation de ces modèles analytiques dans le calcul de structures par élément finis. C'est pourquoi des simplifications supplémentaires sont souhaitables.

L'utilisation des modèles analytiques dans des cas où la dispersion des phases est arbitraire a nécessité l'introduction de « la formulation de la cellule unique » [114, 115]. Dans les modèles de la cellule unique, les propriétés globales sont assurées en supposant des conditions macroscopiques périodiques sur le VER.

2.2.5 Homogénéisation des milieux périodiques

Un milieu périodique est caractérisé par la périodicité de sa structure. Il y a trois principales raisons de s'intéresser à l'homogénéisation périodique. La première étant qu'on rencontre fréquemment cette périodicité dans les matériaux artificiels et parfois dans certains matériaux naturels. La seconde est que les milieux périodiques se prêtent bien aux calculs numériques, sur un volume élémentaire fini du fait qu'ils admettent des conditions aux limites bien posées [104]. Grâce au progrès des moyens de calcul, ces méthodes s'appliquent efficacement sur des structures ou des microstructures complexes (Moulinec et al 1998) [116] bien qu'elles aient été développées initialement sur des structures ou des microstructures simples. La troisième raison, importante sur le plan fondamental, est que l'homogénéisation périodique permet de définir rigoureusement la notion de comportement homogénéisé [90]. En effet, ces travaux considèrent que le rapport entre la dimension microscopique x est la longueur macroscopique

y est un petit paramètre λ . Ainsi, on cherche classiquement des variables à double échelle $\Phi = \Phi(x, y)$ sous la forme d'une série asymptotique :

$$\Phi(x, y) = \Phi^0(x, y) + \lambda\Phi^1(x, y) + \lambda^2\Phi^2(x, y) + \dots \quad 2.6$$

Où : $x = \lambda y$ et chaque $\Phi^i(x, y)$ est périodique par rapport à la variable macroscopique y .

Les équations homogénéisées sont obtenues en faisant tendre le rapport λ vers zéro.

2.2.5.1 Cellule de base

Un milieu périodique est défini par une cellule de base, qui par translation le long de trois vecteurs spatiaux, reproduit toute la structure. La cellule de base n'est pas définie de manière unique. Sa détermination est souvent dictée par l'exploitation des conditions aux limites de périodicité. La Figure 2.4 illustre les différents choix possible pour la cellule de base. Il faut aussi la choisir en prenant soin qu'elle soit suffisamment représentative de l'inhomogénéité du matériau initial. Ceci est connue comme le principe Micro-Meso-Macro de Hashin1983 [117].

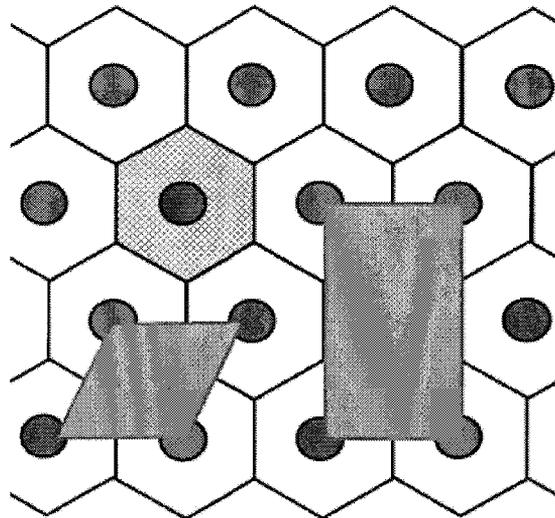


Figure 2.4 : Différents choix possible de la cellule de base.

Le choix de la cellule de base n'influence en aucun cas les calculs : ainsi, le VER généralement utilisé est un parallélépipède comportant une seule inclusion entourée de matrice pour les matériaux constitué d'inclusions noyées régulièrement dans une matrice, ce qui, facilite grandement les calculs. Hill [91] a établie une définition du VER. Il suggère que le VER est mieux défini s'il reflète la microstructure et si les réponses sous des conditions de déformations uniformes ou des contraintes uniformes coïncident. Les propriétés

homogénéisées déterminées de cette manière sont appelées « propriétés apparentes », notion introduite par Huet 1990 [118]. Les propriétés apparentes obtenues par l'application des conditions de déformations uniformes à la cellule surestiment toujours les propriétés effectives réelles, alors que les conditions de contraintes mènent à une sous-estimation. Comme il a été vérifié par Van der Sluis [77] et Terada [119], pour une taille de cellule microstructural donnée, les conditions aux limites périodiques fournissent les meilleures estimations des propriétés macroscopiques que les conditions de déplacement et de contrainte. Finalement, l'augmentation de la taille de la cellule mène aux meilleurs résultats et à la convergence des résultats obtenus avec les différentes conditions aux limites vers les propriétés effectives réelles [120], comme l'illustre la Figure 2.5.

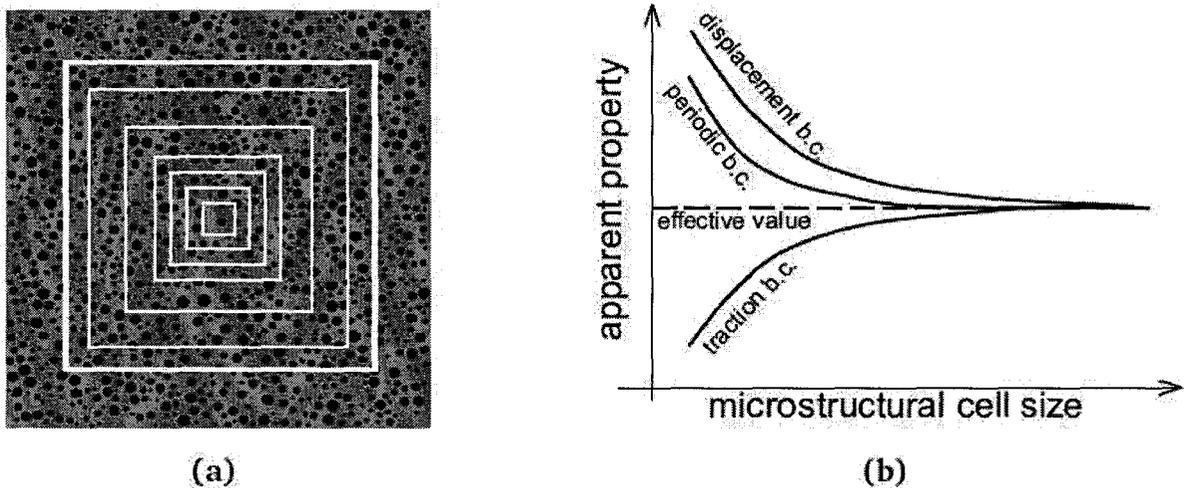


Figure 2.5 : (a) Différentes taille possible de la cellule microstructural, (b) Convergences des propriétés apparentes vers les propriétés effectives avec l'augmentation de la taille de la cellule [120].

Une comparaison des méthodes des modules effectifs en déformation et contrainte homogènes avec celle de l'homogénéisation périodique en fonction de la taille de la cellule a été réalisée par Michel et al. [121]. Ils trouvent que contrairement aux deux méthodes en déformation et contraintes qui ne peuvent être considérées que comme des bornes des propriétés effectives, la théorie de l'homogénéisation périodique fournit le même résultat quel que soit le nombre d'inclusions de la cellule de base. Et donc autant de travailler sur la cellule à inclusion unique qui est en terme numérique diminue considérablement le temps de calcul.

La convergence des propriétés apparentes vers les propriétés effectives avec l'augmentation de la taille de la cellule de base a été étudiée aussi par Huet [122], Pecullan et al. [123] et

Terada [119]. D'autres comme Kanit et ses collaborateurs [124] ont confirmé que la méthode de l'homogénéisation périodique était parfaitement applicable aux milieux aléatoires. Elle fournit d'excellentes approximations.

Différents auteurs ont examiné la comparaison de la réponse du composite de la modélisation d'une structure régulière ou aléatoire d'hétérogénéités de renforts ou vides (Figure 2.6), par exemple les travaux de Ghosh et al. [125], Moulinec et Suquet [116] et Smit et al. [33]. Les résultats montrent qu'il n'y a aucune divergence dans le régime élastique par contre une différence existe en plasticité.

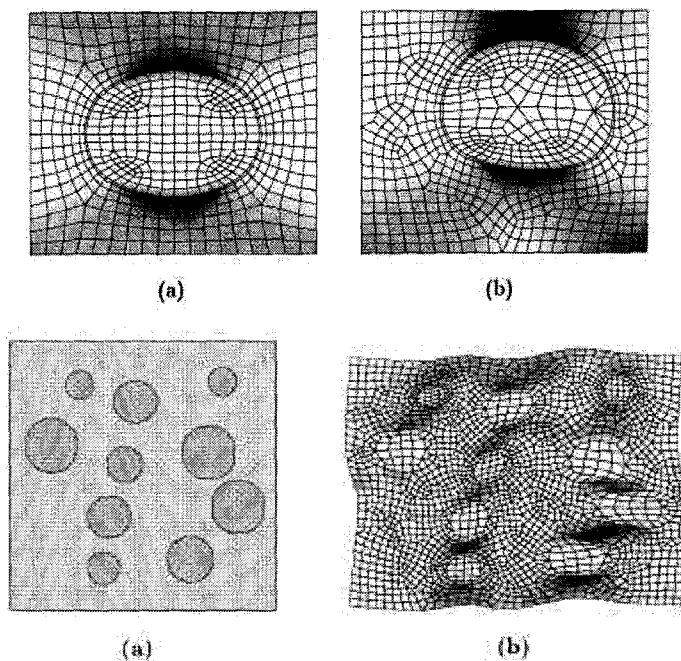


Figure 2.6 : la cellule de base dans le cas régulier (inclusion unique) et le cas irrégulier de la microstructure (a) état initial (b) état déformé [77].

2.2.5.2 Champs microscopiques périodiques

Dans un milieu hétérogène périodique, la géométrie du milieu est invariante par translation le long des vecteurs de périodicité, les variables locales ε et σ possèdent donc cette propriété d'invariance et sont périodiques [90]. ε et σ oscillent autour de leurs valeurs moyennes $\bar{\varepsilon}$ et $\bar{\sigma}$.

Le champ local de déformations $\varepsilon(u)$ peut être décomposé en un champ moyen $\bar{\varepsilon}$ qui serait le champ de déformation s'il était homogène et une correction $\varepsilon(u')$ qui tient compte de la présence des hétérogénéités. Ce terme supplémentaire dérive d'un déplacement périodique u' tandis que ε dérive de u et $\bar{\varepsilon}$ dérive du déplacement $\bar{\varepsilon} \cdot x$.

Les champs de déformations et de déplacement admettent donc la décomposition suivante :

$$\begin{cases} \mathbf{u} = \bar{\boldsymbol{\varepsilon}} \cdot \mathbf{x} + \mathbf{u}' \\ \boldsymbol{\varepsilon}(\mathbf{u}) = \bar{\boldsymbol{\varepsilon}} + \boldsymbol{\varepsilon}(\mathbf{u}') \\ \mathbf{u}' \text{ périodique} \end{cases} \quad 2.7$$

La périodicité du champ de déplacement \mathbf{u}' signifie qu'il prend des valeurs identiques sur deux points, homologues par périodicité, du contour du VER tel que le montre la Figure 2.7.

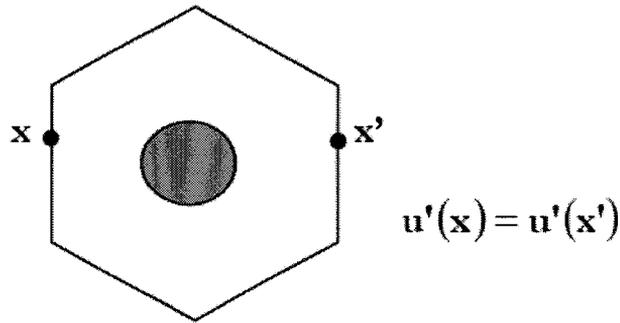


Figure 2.7 : Périodicité du champ de déplacement \mathbf{u}' .

On note aussi :

$$\langle \boldsymbol{\varepsilon}' \rangle = 0 \quad \text{et} \quad \langle \boldsymbol{\varepsilon} \rangle = \bar{\boldsymbol{\varepsilon}} \quad 2.8$$

En plus d'être périodique, le champ de contraintes local $\boldsymbol{\sigma}$ est en équilibre dans tout le milieu. Il satisfait l'équilibre volumique dans V ainsi que l'équilibre d'une cellule avec les cellules voisines. La première condition se traduit par le fait que $\boldsymbol{\sigma}$ est à divergence nulle dans V . Et la deuxième condition indique que les vecteurs contrainte sont opposés ou anti-périodiques sur les cotés opposés de ∂V soient :

$$\begin{cases} \text{div}(\boldsymbol{\sigma}) = 0 \quad \text{dans } V \\ \boldsymbol{\sigma} \cdot \mathbf{n} \text{ anti-périodique sur } \partial V \end{cases} \quad 2.9$$

2.2.5.3 Conditions aux limites et opération de moyenne

La résolution locale de tels problèmes s'avère hors de portée tant la discrétisation nécessaire serait énorme pour avoir une connaissance détaillée du comportement de la structure. C'est le comportement macroscopique de la structure qui nous intéresse en premier lieu. Dans cette optique, le but de la théorie de l'homogénéisation est de déterminer le comportement effectif

des corps à microstructure périodique pour les remplacer au niveau macroscopique par des corps homogènes de propriétés équivalentes. Ainsi, la théorie de l'homogénéisation permet d'évaluer des grandeurs matérielles équivalentes (moyennes), afin de pouvoir étudier le comportement macroscopique de la structure sans se soucier des hétérogénéités microscopiques.

Conditions aux limites

On considère le problème aux limites et aux valeurs initiales suivant, où les inconnues sont le champ de déplacement u et, éventuellement les champs de variables internes obéissant à des lois d'évolution :

$$\begin{cases} \varepsilon_{ij} = u_{(i,j)} \\ \text{lois de comportement} \\ \sigma_{ij,j} = 0 \quad \forall x \in V \\ \text{conditions initiales} \end{cases} \quad 2.10$$

où V est le VER choisi. Trois types de conditions aux limites sont alors proposées :

- Conditions de déformations homogènes au contour :

$$\mathbf{u} = \mathbf{E} \cdot \mathbf{x} \quad \forall \mathbf{x} \in \partial V \quad 2.11$$

où \mathbf{E} est un tenseur symétrique indépendant de \mathbf{x}

- Conditions de contraintes homogènes au contour :

$$\boldsymbol{\sigma} \cdot \mathbf{n} = \boldsymbol{\Sigma} \cdot \mathbf{n} \quad \forall \mathbf{x} \in \partial V \quad 2.12$$

où $\boldsymbol{\Sigma}$ est un tenseur symétrique indépendant de \mathbf{x}

- Conditions de périodicité :

$$\mathbf{u} = \mathbf{E} \cdot \mathbf{x} + \mathbf{u}' \quad \forall \mathbf{x} \in V \quad 2.13$$

où \mathbf{u}' est périodique, on impose aussi que $\boldsymbol{\sigma} \cdot \mathbf{n}$ est antipériodique.

Il est clair que ces conditions peuvent être appliquées sur la cellule de base quand le matériau hétérogène présente une structure périodique.

Relations de moyennes

La transition de l'échelle microscopique à l'échelle macroscopique est principalement réalisée en formulant des relations entre les variables d'état au niveau micro et macro. L'utilisation du lemme de Hill, qui suppose que la forme des équations soit la même au niveau local et global, a montrée l'intérêt que pouvaient présenter les moyennes de certaines grandeurs physiques,

qu'elle soit de volume ou statistiques [126], et qui consiste à remplacer le milieu hétérogène par un milieu homogène équivalent ayant des propriétés dites effectives.

En général, les quantités macroscopiques sont formulées en tant que moyennes des variables correspondant à l'état microscopique. Dans les théories déterministes (Hill [91, 127]), la moyenne d'une quantité est prise sur la région occupée par la cellule unique.

La moyenne spatiale d'un champ de déformation compatible ε s'exprime :

$$\mathbf{E} = \bar{\varepsilon} = \langle \varepsilon \rangle = \frac{1}{V} \int_V \varepsilon \, dV \quad 2.14$$

Il est important aussi de pouvoir relier ces intégrales de volume sur V à des intégrales de surface sur ∂V où s'appliquent éventuellement les conditions aux limites :

$$\begin{aligned} \langle \varepsilon \rangle &= \frac{1}{V} \int_V \mathbf{u}_{(i,j)} \, dV \, e_i \otimes e_j \\ &= \frac{1}{V} \int_{\partial V} \mathbf{u}_{(n)} \, dS \, e_i \otimes e_j \\ &= \frac{1}{V} \int_{\partial V} \mathbf{u} \otimes \mathbf{n} \, dS \end{aligned} \quad 2.15$$

La moyenne spatiale d'un champ de contraintes σ statiquement admissible, tel que $\text{div} \sigma = 0$, s'exprime par :

$$\begin{aligned} \Sigma = \bar{\sigma} = \langle \sigma \rangle &= \frac{1}{V} \int_V \sigma \, dV = \frac{1}{V} \int_V \sigma_{ij} \, dV \, e_i \otimes e_j \\ &= \frac{1}{V} \int_V \sigma_{(ik\delta j)k} \, dV \, e_i \otimes e_j = \frac{1}{V} \int_V \sigma_{(ikx_j)k} \, dV \, e_i \otimes e_j \\ &= \frac{1}{V} \int_V (\sigma_{(ikx_j)})_k \, dV \, e_i \otimes e_j = \frac{1}{V} \int_{\partial V} \sigma_{(ikn_kx_j)} \, dS \, e_i \otimes e_j \\ &= \frac{1}{V} \int_{\partial V} (\sigma \cdot \mathbf{n}) \otimes \mathbf{x} \, dS \end{aligned} \quad 2.16$$

Le problème mécanique de la cellule unique est maintenant complet. Des simulations numériques sur la cellule de base peuvent être accomplies en appliquant les conditions aux limites et par l'utilisation des relations micro-macro, le comportement macroscopique peut être déterminé.

2.3 Conclusion

Après quelques rappels sur la technique d'homogénéisation qui ont fait l'objet de ce chapitre, on précise notamment l'importance du choix de l'échelle de description de la microstructure, selon les phénomènes auxquels on s'intéresse dans le passage micro-macro. Puis, la notion de macro homogénéité qui est un artifice important permettant d'affecter à un volume élémentaire représentatif VER du matériau hétérogène de référence un comportement homogène équivalent, lequel est exprimé par des champs homogènes macroscopiques. Ensuite les principales méthodes d'homogénéisation ont été passées en revue. Enfin une branche particulière de l'homogénéisation qu'est l'homogénéisation périodique et les principales notions de cette théorie ont été résumées. L'homogénéisation des milieux périodiques est la méthode la plus fréquemment utilisée dans le cas des simulations par éléments finis. De manière classique, elle cherche des variables à double échelle sous une forme asymptotique. En faisant tendre le rapport de l'échelle locale avec celle macroscopique vers 0, on obtient les équations homogénéisées.

Les résultats et les constatations de la littérature ont justifié l'efficacité de l'homogénéisation périodique, et nous permettent ici d'affirmer notre choix d'utiliser cette méthode dans notre travail. Cette approche va être mise en œuvre pour déterminer le comportement macroscopique de notre polymère chargé par la méthode des éléments finis.

L'étape suivante de notre travail sera alors la détermination du comportement macroscopique du composite polymère sans la prise en compte de l'endommagement par cavitation.

Chapitre 3

*Modélisation du comportement des RT-
PMMA par une approche
d'homogénéisation*

3.1 Introduction

La prédiction des propriétés mécaniques, des composites a fait l'objet de nombreuses études, basées sur des approches issues de la mécanique des milieux continus (micromécanique) ou des approches de la dynamique macromoléculaires.

Après avoir exposé toutes les notions fondamentales nécessaires à notre étude, ce chapitre est consacré à la modélisation du comportement mécanique macroscopique d'un composite à matrice polymère et renfort caoutchoutique en utilisant une technique d'homogénéisation numérique avec une structure périodique. Dans cette optique, on présente l'étude micromécanique proposée en l'adaptant à la notion de grandes déformations. On rappelle ensuite les hypothèses de travail concernant notre matériau, le chargement et les conditions aux limites du volume élémentaire représentatif. Leur mise en œuvre, au moyen d'un code de calcul par éléments finis, permet la détermination du comportement homogène équivalent de notre matériau biphasique. Le composite étudié de matrice de polyméthacrylate de méthyle (PMMA) fragile renforcé au choc par des particules d'élastomère de polybutadiène et un matériau modèle pour les objectifs de notre travail. Comme nous avons indiqué en chapitre 1 nous avons choisi un modèle viscoplastique (Perzyna) pour rendre compte du comportement de la matrice amorphe que nous couplons à un modèle hyperélastique pour décrire le comportement de l'élastomère. Nous présentons alors dans cette partie la description phénoménologique adoptée pour rendre de la nature élastoviscoplastique de la matrice vitreuse et hyperélastique du renfort en grandes déformations.

Le modèle hyperélastique-élastoviscoplastique ainsi obtenu et la stratégie d'homogénéisation seront validés avec des essais de compression uniaxiale du PMMA et du PMMA renforcé à différentes fractions volumique de particules. Le principal intérêt de ce test pour cette étude est d'éviter la formation de craquelures ou toute autre cavitation au sein du matériau comme cela est souvent observé lors d'essais en traction pour une meilleure validation de l'approche micromécanique sans endommagement. Dans le chapitre suivant, nous utilisons ce travail avec une sollicitation en traction en prenant en compte la cavitation comme mode d'endommagement. Les résultats des essais de compression seront utilisés pour l'identification des paramètres du modèle viscoplastique adopté.

On présentera aussi en détail le protocole expérimental utilisé pour ce mode de sollicitation.

3.2 Description hyperélastique-élastoviscoplastique

Lors de la mise en charge d'un matériau polymère, la réponse montre un adoucissement intrinsèque au-delà d'un seuil d'écoulement plastique suivi d'un durcissement progressif à mesure que la déformation augmente qui conduit à une localisation de la déformation par bandes de cisaillement. Comme nous avons vu dans le chapitre 1, le comportement des polymères amorphes est sensible à la vitesse de déformation, la température et la pression hydrostatique. L'introduction de renforts élastomériques dans la matrice vitreuse rend l'analyse des mécanismes mis en jeu dans le matériau composite d'autant plus complexe que la déformation subie est grande : aux mécanismes de déformation viscoplastique propres aux polymères s'ajoutent des mécanismes de transfert de charge entre renfort et matrice et des mécanismes d'endommagement. A partir d'une loi de comportement rendant compte des caractéristiques non linéaires, nous pouvons décrire le mécanisme par localisation de la déformation plastique.

Pour décrire le comportement mécanique aux grandes déformations des solides élastoviscoplastiques, plusieurs modèles ont été proposés dans la littérature [14] [77] [78] [84], tous ces modèles sont capables de décrire le comportement typique des polymères solides. Ces modèles sont basés sur la constatation expérimentale qu'après l'écoulement, la contrainte vraie chute avec la déformation témoignant d'une déformation inhomogène (formation de bandes de cisaillement, et pour de plus larges déformations, le matériau se durcit).

Pour les polymères vitreux renforcés choc, des études ont été menées notamment par Van der Sluis [78], et Socrate & al. [22], pour simuler le comportement du composite d'une part et la croissance de cavités dans les particules d'élastomères servant de renfort.

Pour rendre compte des grandes déformations, du temps et de l'histoire du matériau, une description hyperélastoviscoplastique a été adoptée. Le comportement de l'élastomère est décrit par un modèle énergétique (hyperélastique) [76], tandis que la partie viscoplastique caractérisant le comportement de la matrice est décrite par le modèle de Perzyna [73]. Nous utilisons la même méthodologie proposée par Van der Sluis [77, 78] mais la formulation du modèle pour le durcissement a été modifiée. En utilisant les équations constitutives du modèle élastoviscoplastique décrite ci-dessous, on montre comment les lois constitutives développées dans le cadre de la théorie des petites déformations peuvent être étendue au cas plus général

des grandes transformations en utilisant une formulation hypoélastique en reliant un taux de contraintes à une vitesse de déformation.

3.2.1 Equations constitutives

L'écriture de la loi constitutive nécessite l'introduction de trois hypothèses fondamentales :

- décomposition du tenseur taux de déformation en sa partie élastique et sa partie plastique
- introduction d'une frontière entre la zone élastique et la zone viscoplastique
- introduction d'une loi d'écoulement pour la partie irréversible du tenseur taux de déformation.

Dans le cadre d'une description en grandes transformations, le tenseur gradient est décomposé en une partie élastique et une partie plastique. La déformation procède d'abord par la déformation plastique jusqu'à un état intermédiaire puis une déformation élastique de cette configuration.

Soit \mathbf{F} le gradient de déformation définie par rapport à la configuration de référence comme suit :

$$\mathbf{F} = \frac{\partial \vec{x}}{\partial \vec{X}} \quad 3.1$$

Où \vec{X} représente les coordonnées de référence d'un point matériel dans la configuration de référence à l'instant $t=0$, et \vec{x} représente les coordonnées spatiales du même point de référence dans la configuration à l'instant t .

Le gradient de déformation est multiplicativement décomposé en une partie élastique \mathbf{F}^e et une contribution plastique (ou viscoplastique) :

$$\mathbf{F} = \mathbf{F}^e \mathbf{F}^p \quad 3.2$$

Cette décomposition n'est pas l'unique décomposition possible, une décomposition additive du tenseur de Green-Lagrange est parfois utilisée [128].

Le tenseur des vitesses de déformation \mathbf{L} est définie selon :

$$\mathbf{L} = \dot{\mathbf{F}} \cdot \mathbf{F}^{-1} \quad 3.3$$

Ce tenseur peut être écrit comme une décomposition additive en sa partie symétrique, le tenseur taux de déformation \mathbf{D} , et sa partie anti-symétrique, le tenseur taux de rotation \mathbf{W} :

$$\mathbf{L} = \mathbf{D} + \mathbf{W} = \frac{1}{2}(\mathbf{L} + \mathbf{L}^T) + \frac{1}{2}(\mathbf{L} - \mathbf{L}^T) \quad 3.4$$

En utilisant la décomposition multiplicative en (3.2), \mathbf{L} peut être sous la forme suivante [128] :

$$\mathbf{L} = \dot{\mathbf{F}}^e \cdot (\mathbf{F}^e)^{-1} + \mathbf{F}^e \cdot \dot{\mathbf{F}}^{vp} \cdot (\mathbf{F}^{vp})^{-1} \cdot (\mathbf{F}^e)^{-1} \equiv \mathbf{L}^e + \mathbf{L}^{vp} \quad 3.5$$

De là, la formulation de la loi de comportement est classiquement basée sur une décomposition additive de la partie symétrique \mathbf{D} du tenseur des vitesses de déformation [129] en une partie élastique \mathbf{D}^e et une partie viscoplastique \mathbf{D}^{vp} :

$$\mathbf{D} = \mathbf{D}^e + \mathbf{D}^{vp} \quad 3.6$$

Comme déjà expliqué ci dessus, étant donné que l'élastomère montre de grandes déformations élastiques, un modèle hyperélastique a été choisie, ou la relation contrainte déformation dérive d'une fonction d'énergie de déformation [76]. Il faut noter aussi que la plupart des approches viscoplastiques en grandes déformations, utilisent une formulation hypoélastique [129] pour assurer l'objectivité des termes qui entrent dans l'écriture des équations de comportement.

La relation contrainte déformation hypo-élastique mettant en relation le tenseur des contraintes $\boldsymbol{\sigma}$ et la partie élastique \mathbf{D}^e du tenseur des vitesses de déformation s'écrit alors sous la forme suivante :

$$\dot{\boldsymbol{\sigma}} = \mathbf{H} : \mathbf{D}^e = \mathbf{H} : (\mathbf{D} - \mathbf{D}^{vp}) \quad 3.7$$

Dans laquelle $\dot{\boldsymbol{\sigma}}$ est une dérivée objective du tenseur des contraintes de Cauchy et \mathbf{H} est le tenseur élastique d'ordre 4 de Hooke.

On considère alors dans la description constitutive, une partie hyperélastique correspondant au comportement des renforts caoutchoutiques et une partie viscoplastique pour décrire le comportement de la matrice vitreuse.

3.2.2 Hyperélasticité

La relation contrainte déformation dans l'hyperélasticité peut être dérivée d'une fonction d'énergie de déformation. Ici le cadre hyperélastique est formulé en terme de (\mathbf{S}, \mathbf{E}) , où \mathbf{S} est le second tenseur de contrainte de Piola-Kirchhoff, et \mathbf{E} le tenseur de déformation de Green-Lagrange.

En supposant l'existence d'une densité d'énergie de déformation $W(\mathbf{E})$, on peut écrire :

$$\mathbf{S} = \frac{\partial W(\mathbf{E})}{\partial \mathbf{E}} \quad \text{ou} \quad \mathbf{S} = \mathbf{J}\mathbf{F}^{-1} \cdot \boldsymbol{\sigma} \cdot \mathbf{F}^{-T} \quad 3.8$$

$$\mathbf{J} = \det(\mathbf{F}), \quad \mathbf{E} = \frac{1}{2}(\mathbf{C} - \mathbf{I}) \quad 3.9$$

Avec

\mathbf{F} le tenseur gradient de déformation, $\boldsymbol{\sigma}$ le tenseur de contrainte de Cauchy,
 $\mathbf{C} = \mathbf{F}^T \cdot \mathbf{F}$ le tenseur de dilatation de Cauchy Green, et \mathbf{I} le tenseur identité.

La partie élastique du modèle doit être sous forme de vitesse et donc la différentiation de (3.8) est donnée par :

$$\dot{\mathbf{S}} = \frac{\partial^2 W(\mathbf{E})}{\partial \mathbf{E} \partial \mathbf{E}} = {}^4\mathbf{A} : \dot{\mathbf{E}} \quad 3.10$$

Où le tenseur d'ordre 4 est donné à partir de la fonction d'énergie choisie.

En utilisant :

$$\dot{\mathbf{E}} = \mathbf{F}^T \cdot \mathbf{D} \cdot \mathbf{F} \quad 3.11$$

et

$$\dot{\boldsymbol{\sigma}} = \mathbf{F} \cdot \dot{\mathbf{S}} \cdot \mathbf{F}^T \quad 3.12$$

Il est possible d'écrire cette équation comme :

$$\dot{\boldsymbol{\sigma}} = {}^4\mathbf{H} : \mathbf{D} \quad 3.13$$

Dans le but de compléter la description constitutive hyperélastique, on a choisi une fonction d'énergie de Déformation de type Néo-Hookéen [130].

Remarque : dans la version du code de calcul qu'on a utilisé pour la simulation numérique, il y'a la possibilité de choisir différentes fonctions de déformation, et de calculer à partir des résultats expérimentaux les coefficients de chaque loi.

La fonction d'énergie de déformation choisie est sous la forme suivante :

$$\mathbf{W} = \frac{\mu}{2}(\mathbf{I}_1 - 3) + \frac{1}{d}(\mathbf{J} - 1)^2 \quad 3.14$$

Où

μ : module de cisaillement de l'élastomère

d : paramètre d'incompressibilité du matériau définie par le module de compressibilité du matériau $d = \frac{2}{K}$

\mathbf{I}_1 : Invariant du tenseur des dilatations défini en fonction des élongations principales λ_i :
 $\mathbf{I}_1 = \lambda_1^2 + \lambda_2^2 + \lambda_3^2$.

L'approche micro-macro que nous allons utilisé pour déterminer le comportement global du matériau nécessite la détermination des contraintes de Cauchy σ_{ij} et des déformation logarithmiques ε_{ij} .

3.2.3 Viscoplasticité

Pour compléter la description du modèle hyperélastique-élastoviscoplastique constitutif, nous avons choisi de modéliser le comportement en grandes déformations des polymères vitreux par les équations introduites par Perzyna (1985) [131].

Ce modèle considère la relation hypoélastique, et la décomposition additive du tenseur des vitesses de déformation pour écrire :

$$\dot{\boldsymbol{\sigma}} = {}^4\mathbf{H} : (\mathbf{D} - \mathbf{D}^{vp}) \quad 3.15$$

Où \mathbf{H} est le tenseur de Hooke (tenseur d'élasticité) donné par :

$$\mathbf{H} = \frac{E}{2(1+\nu)} \left[(\delta_{ik}\delta_{jl} + \delta_{il}\delta_{jk}) + \frac{2\nu}{1-2\nu} \delta_{ij}\delta_{kl} \right] \quad 3.16$$

Où E et ν représentent respectivement le module de Young et le coefficient de Poisson et δ le symbole de Kronecker.

La vitesse de déformation viscoplastique est donnée par la règle de normalité. Sa direction est la normale à la surface d'écoulement dans l'espace de contrainte $\frac{\partial \Phi}{\partial \sigma}$, Φ étant la surface d'écoulement. En introduisant l'hypothèse que la fonction Φ ne dépend pas des déformations et en supposant le critère de Von Mises [73], la déformation viscoplastique est formulée comme:

$$\mathbf{D}^{vp} = \gamma \phi(\Phi) \frac{\partial \Phi}{\partial \sigma} \quad 3.17$$

où $\phi(\Phi)$ est une fonction choisie généralement comme une fonction puissance:

$$\phi(\Phi) = \left(\frac{\sigma}{\sigma_0} - 1 \right)^{\frac{1}{m}} \quad 3.18$$

et donc on a :

$$\mathbf{D}^{vp} = \gamma \left(\frac{\sigma}{\sigma_0} - 1 \right)^{\frac{1}{m}} \quad 3.19$$

avec $\frac{\partial \Phi}{\partial \sigma} = 1$ dans le cas d'un matériau parfaitement viscoplastique.

m, γ : sont respectivement le paramètre de durcissement et la viscosité (paramètres de sensibilité à la vitesse de déformation). σ est la contrainte d'écoulement et σ_0 est la limite élastique dite statique (pour une vitesse qui ne dépasse pas $10^{-4} s^{-1}$ dans notre cas).

Le modèle de Perzyna décrit seulement la sensibilité à la vitesse de déformation de la contrainte d'écoulement, il faut donc introduire l'adoucissement et le durcissement post écoulement.

Le programme éléments finis que nous utilisons nous permet de prendre en compte ce comportement post-écoulement. L'érouissage multilinéaire isotrope combiné avec le critère de Von Mises est adopté.

Le comportement viscoplastique du matériau à une vitesse donnée est réalisé en considérant le comportement à une vitesse faible (10^{-5} /s), qu'on fait translater à l'aide des paramètres de sensibilité à la vitesse de Perzyna.

Dans cette étude, on suppose que la partie viscoélastique de la réponse n'affecte pas le comportement global et la réponse pré-écoulement est élastique linéaire.

Le comportement en grandes déformations des solides viscoplastiques est décrit par les équations constitutives, pour lesquelles des solutions analytiques sont difficiles à obtenir, même pour des problèmes simplifiés. Une méthode appropriée pour résoudre ce type d'équation est la procédure numérique itérative et incrémentale par éléments finis que nous utilisons dans la partie 3.4.

3.3 Etude expérimentale et caractérisation

La prise en compte du comportement mécanique du matériau au travers de la formulation des lois de comportement et de l'identification des paramètres de ces lois est un élément fondamental du processus de simulation. Une fois que le choix de la formulation mathématique de la loi de comportement est effectué, bien souvent les paramètres de cette loi ne sont pas disponibles ou sont incomplets lorsque l'on souhaite passer à l'étape de simulation numérique. Un effort tout particulier doit donc porter sur la mise en place d'essais expérimentaux permettant de recréer des conditions de sollicitation proches de celles rencontrées lors du processus physique et d'identifier à partir de ces essais les paramètres numériques de la loi de comportement. Dans cette partie, on présente les moyens et les essais expérimentaux développés au sein du laboratoire afin d'identifier les paramètres du modèle hyperélastoviscoplastique.

Pour identifier les paramètres de la loi de comportement élastoviscoplastique présenté dans le paragraphe précédent, nous avons mené des essais de compression à différentes vitesses de déformations et différentes températures pour le PMMA et pour le polymère modifié (RT-PMMA). Le chargement en compression, contrairement à la traction, permet d'éviter (ou de retarder au maximum) les mécanismes d'endommagement. Cet essai permet donc de valider le modèle et la méthode d'homogénéisation numérique choisis.

3.3.1 Matériaux et préparation des échantillons

Compte tenu de la complexité du renforcement et des phénomènes que l'on veut étudier, nous avons choisie un composite modèle constitué d'une matrice polymère amorphe de polyméthacrylate de méthyle (PMMA) et des particules de polybutadiène de type core-shell.

La matrice vitreuse de PMMA utilisé a une masse molaire de l'ordre de 65000 g/mol, et sa température de transition vitreuse est d'environ 120°C. Les particules d'élastomère d'un diamètre de 270 nm sont constituées d'une greffe de PMMA et d'un cœur mou de polybutadiène, qui a une température de transition vitreuse de -21°C.

Pour les tests de compression, des éprouvettes cylindriques de 8 mm de hauteur, et un diamètre de 6 mm ont été usinés à partir de barreaux d'une section (8×8 mm²). Ces barreaux ont été découpés sur des plaques moulées en compression à température à partir du matériau sous forme de granulés. Le refroidissement des plaques est fait à l'eau jusqu'à la température ambiante. Afin d'étudier l'effet de la fraction volumique de renfort et de valider la méthode d'homogénéisation, des éprouvettes de RT-PMMA de même géométrie ont été usinées à partir de plaques de quatre matériaux différents en modifiant le taux de charge volumique (5% , 15% , 20% , 45%). Les particules de type core-shell assurent la répartition de celles-ci dans le mélange matrice/renfort.

3.3.2 Essais mécaniques

Les essais de compression uniaxiale sont réalisés sur une machine de traction/compression Instron 5867. Une cellule de 10 KN est utilisée pour mesurer la force appliquée. L'utilisation d'un logiciel nous permet de programmer les sorties en contrainte, et déformation à chaque instant au cours de l'essai. Le déplacement du plateau supérieur est commandé avec une vitesse de translation de la traverse calculée à partir de la vitesse de déformation. Tous les échantillons ont subi une compression jusqu'à 40% de déformation. Les échantillons sont sollicités entre deux plateaux de compression parallèles (Figure 3.1).

Dans le but de déterminer les trois paramètres (σ_0, m, γ) du modèle élastoviscoplastique, le PMMA est testé à des vitesses de déformation allant de 10⁻⁵ s⁻¹ jusqu'à 10⁻² s⁻¹ à température ambiante d'abord puis à des températures plus élevées (60°C, 80°C). Les différents mélanges étudiés sont ensuite testé aux mêmes températures et des vitesses de déformation de l'ordre de 10⁻⁴ s⁻¹, 10⁻³ s⁻¹, et 10⁻² s⁻¹.

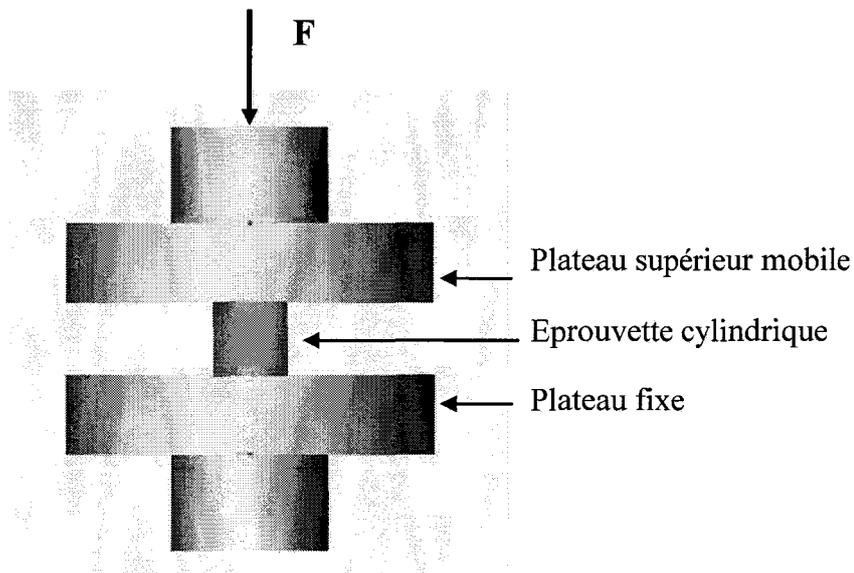


Figure 3.1 : Représentation schématique de l'essai de compression à température ambiante.

Lors d'un essai de compression uniaxiale, deux phénomènes peuvent se produire, une déformation en forme de tonneau ou une déformation par flambage [132]. Le premier phénomène est dû au dimensionnement de l'éprouvette, tandis que le deuxième est dû au frottement au niveau des plateaux. La Figure 3.2 illustre les deux formes de déformation de l'échantillon cylindrique en compression. Le frottement entre les facettes de l'éprouvette et les plateaux de compression peut gêner le déplacement latéral des extrémités de l'éprouvette.

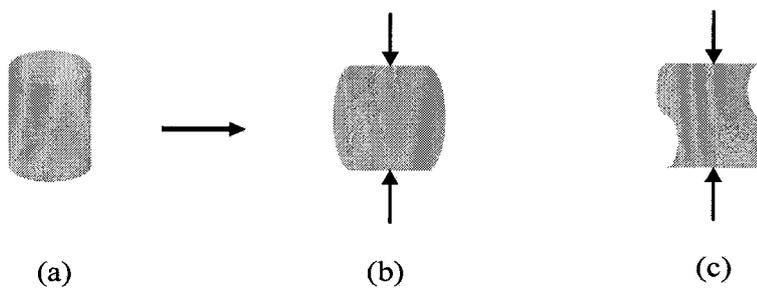


Figure 3.2 : déformation de l'éprouvette en compression uniaxiale : (a) l'échantillon à l'état initial, (b) la forme de tonneau, (c) le flambage.

Dans le but de réduire au maximum les effets de frottement, pour mener au mieux les essais de compression, les dimensions de nos échantillons ont été choisies en accord avec le rapport Hauteur/diamètre préconisé par G'sell [132], avec des facettes lisses et parallèles [133] (Figure 3.3).

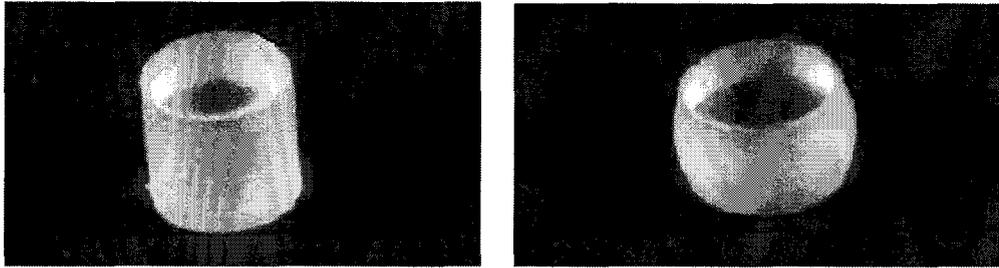


Figure 3.3 : Epreuve de PMMA utilisée respectivement avant déformation à gauche, la déformée après l'essai.

3.3.3 Essais à température :

Pour étudier la dépendance du comportement du composite polymère à la température et à la vitesse de déformation, nous avons réalisé la même série d'essais précédente sur le PMMA et sur le RT-PMMA en température. Ceux-ci ont été rendus possibles grâce à une enceinte thermique autorisant des essais pouvant atteindre des températures très élevées (250°C). Pour assurer l'homogénéité de la température dans l'éprouvette, celle-ci était maintenue pendant environ 10 mn à la température désirée avant de démarrer l'essai. L'extrémité supérieure de l'éprouvette est laissée libre durant la phase de chauffage de façon à laisser les dilatations thermiques s'effectuer librement. Afin d'étudier l'influence de l'augmentation de la température sur la courbe contrainte déformation, le PMMA a été testé à des températures allant de 25° à 115°C à une vitesse de déformation constante [133].

La Figure 3.4, montre l'enceinte thermique et les deux cylindres en aluminium utilisés pour la compression de l'échantillon dans le cas d'essais en température.

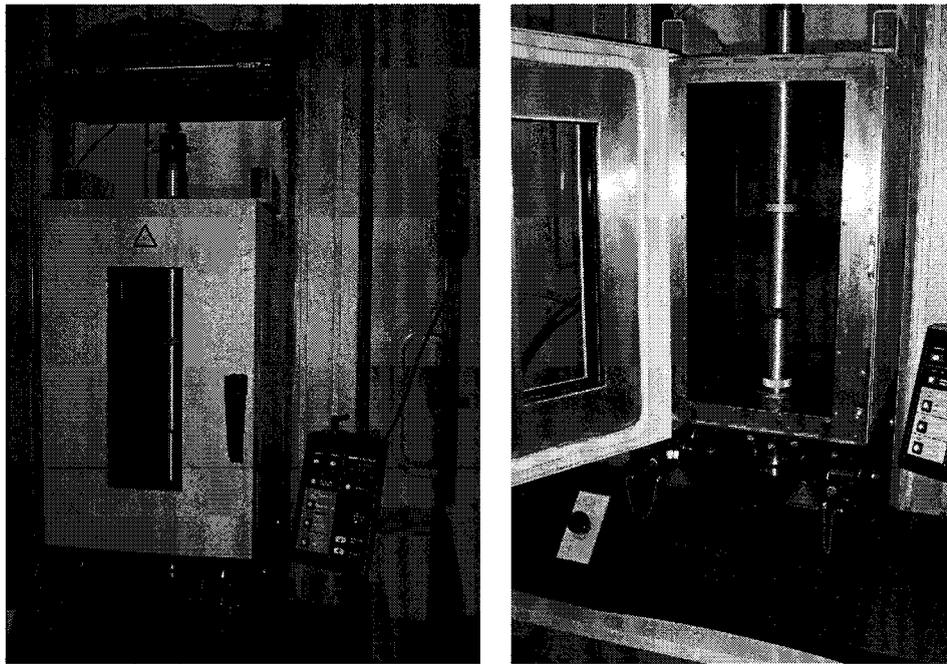


Figure 3.4 : Essai de compression à température : à gauche, l'enceinte thermique fermée en cours d'essai, et à droite, l'échantillon entre les cylindres de compression à l'intérieur de l'enceinte thermostatée.

3.3.4 Résultats

A partir de l'enregistrement du déplacement de la traverse et de la mesure de la force F au cours de l'essai, on peut parvenir à l'aide du logiciel directement aux courbes contraintes déformations nominales. Pour faire les transformations nécessaires en grandeurs vraies (contrainte vraie, déformation vraie...), on suppose que le matériau est incompressible et isotrope, et la déformation est supposée homogène. L'extensomètre permet de mesurer le déplacement ΔL et en connaissant la hauteur initial de l'échantillon L_0 :

La déformation axiale vraie est obtenue à partir de :

$$\varepsilon_{zz} = \ln \left(1 + \frac{\Delta L}{L_0} \right) \quad 3.20$$

La contrainte vraie devient quant à elle :

$$\sigma_{zz} = \sigma_N \cdot \left(1 + \frac{\Delta L}{L_0} \right) \quad 3.21$$

Avec la contrainte nominale $\sigma_N = \frac{F}{S_0}$, et S_0 la section initiale.

Le module de Young est accessible directement en pratiquant une régression linéaire de la partie linéaire de la courbe contrainte-déformation.

La Figure 3.5 rassemble des courbes contrainte-déformation axiale résultant des essais à différentes températures à une vitesse de 10^{-3} s^{-1} respectivement pour le PMMA et le RT-PMMA à 15% de fraction volumique de particules.

Pour les deux cas, le niveau de contrainte diminue lorsque la température augmente. Les courbes confirment la non linéarité très marquée du comportement des polymères, et un faible adoucissement suivi d'un durcissement plutôt notable est observé. L'influence de la température semble différente : le PMMA atteint le comportement caoutchoutique quand la température s'approche de sa transition vitreuse (115°C) alors que le RT-PMMA a un comportement caoutchoutique à 130°C . Une légère translation des courbes vers des niveaux élevés de contraintes. Cet effet de température est plus accentué pour le PMMA.

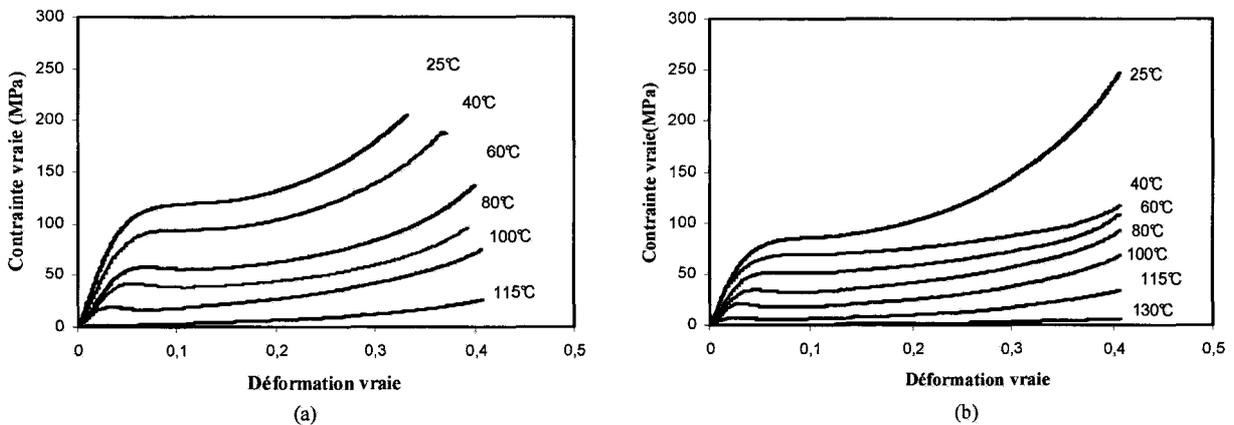


Figure 3.5 : Courbes contrainte-déformation axiale vraie à différentes température et à une vitesse de déformation de 10^{-3} s^{-1} du : (a) PMMA pure, (b) RT-PMMA à une fraction volumique de particules de 15%.

En reportant sur un graphe l'évolution de la contrainte en fonction de la déformation (Figure 3.6), pour des vitesses de déformation différentes, et pour une même température, nous avons pu mettre en évidence la dépendance du comportement du PMMA à la vitesse de déformation. Ces courbes montrent que la limite d'élasticité, le module de Young, et le durcissement décroissent avec la diminution de la vitesse de déformation. Les courbes présentent un pic qui

se déclare légèrement à la température ambiante et devient plus marquant avec l'augmentation de la température. Ce sont ces courbes qui montrent la sensibilité à la vitesse de déformation du comportement du PMMA qui vont nous permettre l'identification des paramètres viscoplastiques dans la suite du travail.

Les courbes des Figures 3.5 et 3.6 permettent de vérifier que le module de Young diminue soit avec l'augmentation de la température ou la diminution de la vitesse de déformation. La Figure 3.7 confirme cette dépendance typique des polymères.

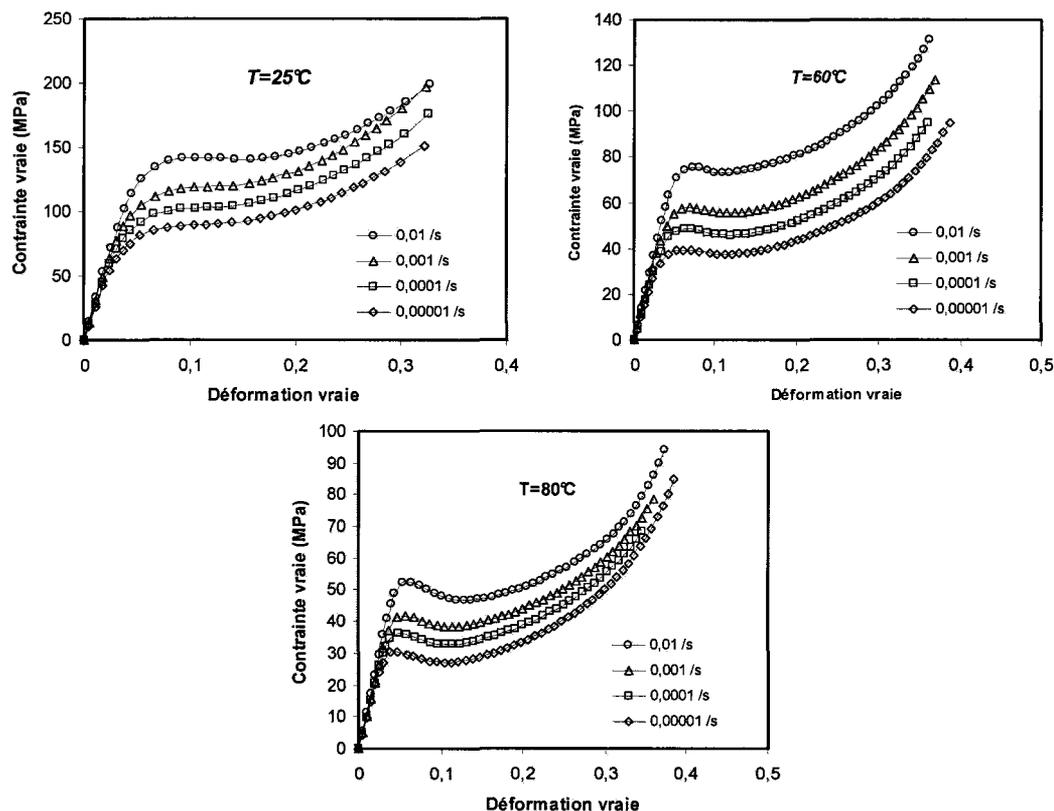


Figure 3.6 : Courbes contrainte-déformation à différentes vitesses de déformation pour les températures d'études 25, 60, 80°C pour le PMMA.

On montre sur la Figure 3.8, un exemple de l'évolution de la contrainte en fonction de la déformation des mélanges RT-PMMA à différentes fractions volumiques testées à une vitesse de déformation de 10^{-3} /s et une température de 60°C. La même tendance a été observée sur les autres cas de vitesse et de température. L'ensemble de ces courbes présente un pic de contrainte, une contrainte plateau, et un durcissement qui diminuent avec l'augmentation de la

fraction volumique de particules. Nous observons que le seuil d'écoulement plastique n'est pas atteint à la même déformation pour les quatre mélanges.

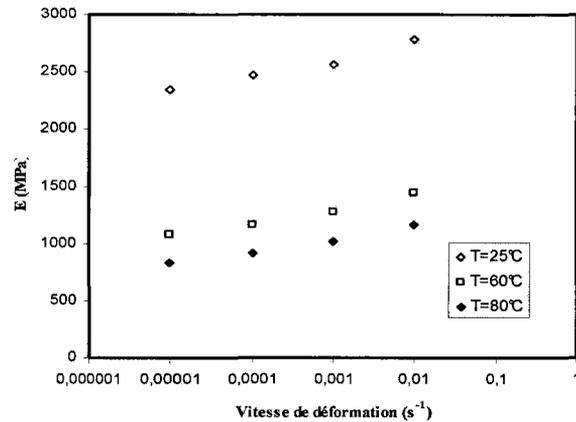


Figure 3.7 : Module d'Young en fonction de la vitesse de déformation pour le PMMA sollicité à différentes température.

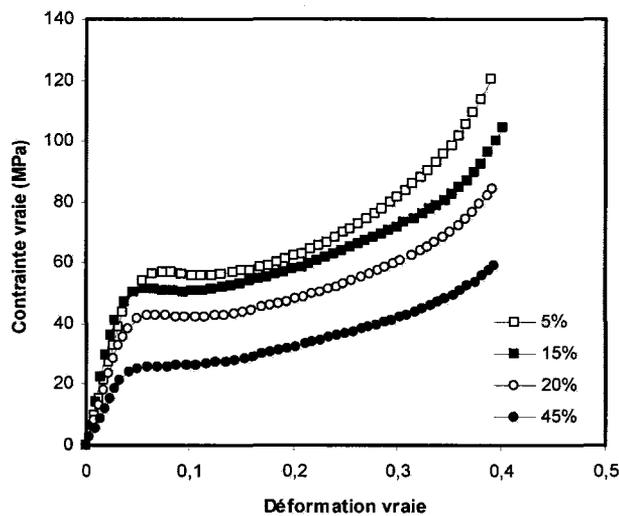


Figure 3.8 : Réponse contrainte-déformation des mélanges à différentes fraction volumique de particules testé à une vitesse de déformation de 10^{-3} /s et une température de 60°C .

Les courbes présentées sur la Figure 3.9 permettent de visualiser l'influence qu'a la fraction volumique des particules sur le comportement macroscopique. On peut observer que la limite d'élasticité diminue linéairement avec l'augmentation de la fraction volumique. Encore une fois ces courbes prouvent aussi la dépendance à la vitesse de déformation et la température du comportement des différents mélanges étudiés.

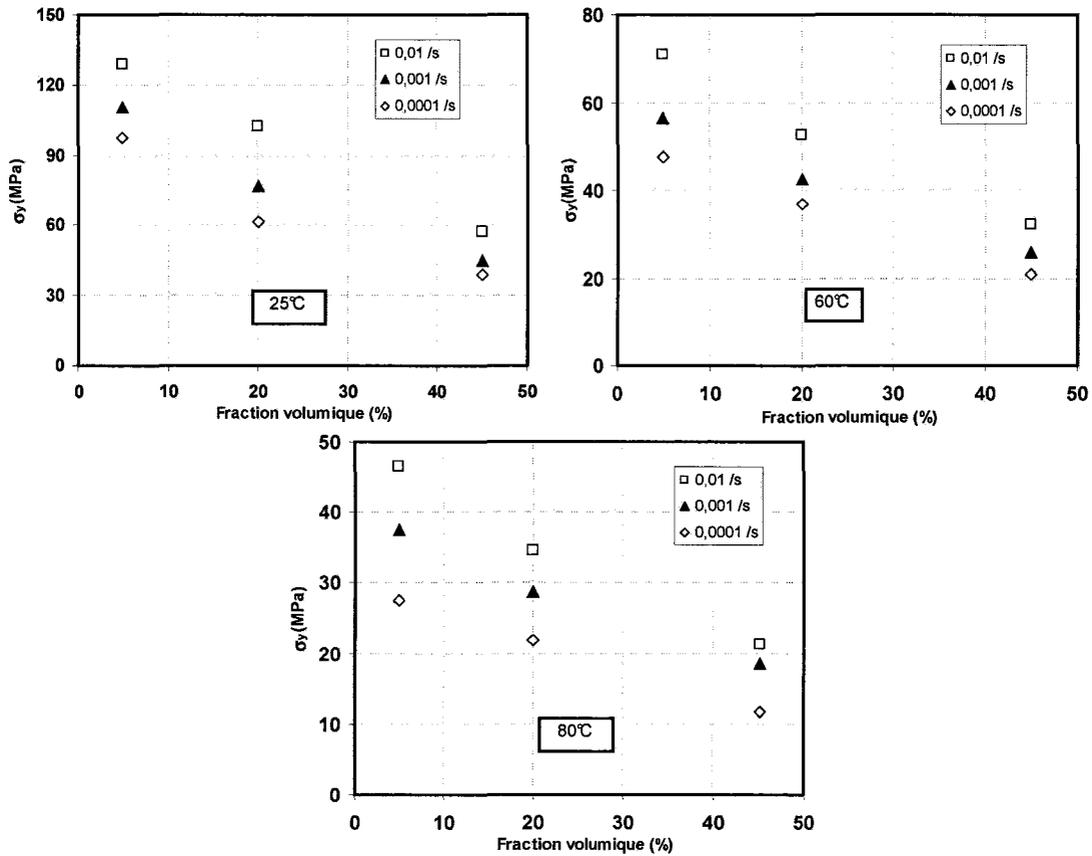


Figure 3.9 : Limite d'élasticité (σ_y) en fonction de la fraction volumique des particules pour différentes vitesses à chaque température.

3.4 Modélisation du comportement et homogénéisation

Dans cette partie, nous nous intéressons à la simulation des essais de compression du PMMA et du PMMA modifié à l'aide d'un code de calcul par éléments finis. L'objectif de ces simulations est double : le premier est relatif à la validation du modèle viscoplastique alors que le second concerne la procédure d'homogénéisation numérique et la description hyperélastoviscoplastique. Dans un premier temps nous présentons l'ensemble des paramètres à identifier et la méthode de modélisation du composite.

L'identification des paramètres viscoplastique pour le PMMA passe par le processus classique en utilisant la droite des moindres carrés à partir des courbes de compression pour le PMMA à

différentes vitesses de déformation. Nous traçons $\ln D^{vp} = f\left(\gamma\left(\frac{\sigma}{\sigma_0} - 1\right)^{\frac{1}{m}}\right)$, pour les trois vitesses de déformations 10^{-4} , 10^{-3} et 10^{-2} /s. cette évolution est proche d'une droite

$y = a.x + b$ nous permet de déterminer les coefficients a et b. finalement les paramètres sont déduits comme suit : $\gamma = \exp(b)$ et $m = 1/a$.

Le jeu de paramètres obtenus pour chaque température est donné dans le tableau 3.1

		T=25°C	T=60°C	T=80°C
Paramètres élastiques	$E (MPa)$	2565	1084	833
	ν	0.32	0.33	0.33
Paramètres viscoplastiques	m	0.346	0.294	0.295
	γ	0.027	0.0137	0.0298
	$\sigma_0 (MPa)$	89	40	29

Tableau 3.1 : Récapitulatif des paramètres du modèle élastoviscoplastique pour le PMMA.

Les paramètres du modèle hyperélastique ont été obtenue à partir des résultats relevés de la littérature [27] sur un polybutadiène similaire a celui utilisé en tant que particules renforçantes dans notre composite. Le module de Young ainsi que le coefficient de Poisson de l'élastomère sont respectivement 1 MPa, et 0.4999167.

L'influence de la température sur les paramètres hyperélastique est supposée négligeable, et les mêmes coefficients ont été utilisés pour les simulations des trois températures. Le module de compressibilité ainsi que le paramètre d'incompressibilité utilisé sont donnés dans le Tableau 3.2.

Paramètres hyperélastiques		
μ (MPa)	K(MPa)	d (=2/K)
0.333	2000	0.001

Tableau 3.2 : Les paramètres hyperélastiques pour le polybutadiène.

Nous nous proposons maintenant d'expliquer la méthodologie utilisée pour la prédiction du comportement macroscopique à l'aide de l'approche d'homogénéisation périodique [22, 134, 135].

Le matériau est considéré comme un empilement de cellules élémentaires cylindriques à base hexagonale. Le centre de chaque cellule élémentaire est occupé par le renfort. La cellule élémentaire cylindrique à base hexagonale est assimilée à un cylindre à base circulaire [136].

C'est cette approximation qui permet finalement de remplacer le calcul tridimensionnel par un calcul axisymétrique bidimensionnel (Figure 3.10 a).

Le comportement mécanique macroscopique de ces systèmes biphasés morphologiquement complexes est fondé sur l'introduction d'un élément représentatif dans l'espace périodique [120], on suppose que chaque *VER* se déforme d'une manière répétitive, identique à ses voisins.

Les conditions aux limites périodiques [78] [119] [135] de la cellule sont imposée afin d'assurer la compatibilité des champs de déformations (Figure 3.10). Et les conditions de symétrie sont utilisées pour limiter le *VER* au 1/4 de la cellule axisymétrique (Figure 3.10 b).

La géométrie de la cellule est entièrement définie à travers 3 paramètres ; R, H et r qui sont respectivement le rayon, la hauteur initiale de la cellule et le rayon de la particule. Le choix commun le plus répandu pour ces paramètres est $2R=2H=1$ [22] [135], alors que r est déterminé par la fraction volumique des vides ou des particules f_0 par la relation $r = (3/2f_0)^{1/3}$.

Les conditions aux limites sont choisies pour imposer que les bords latéral et supérieur restent droits alors que les deux autres bords sont maintenus :

$$\begin{cases} \text{sur } y=0 & U_y = 0 \\ \text{sur } x=0 & U_x = 0, \text{ sur } x=R & U_x = cste. \end{cases} \quad 3.22$$

Le chargement extérieur correspond à un déplacement imposé sur le bord supérieur $U_y = -d$ pour simuler l'essai de compression.

Une telle analyse a été initialement proposée par Tvergaard [136] et fut utilisée largement par la suite pour analyser le comportement mécanique des composites particulaires voir par exemple Steenbrink et Van der Giessen (1999) [135] et Van der Sluis et al. (2001) [78] dans le cas du polycarbonate chargé. Les travaux de Benabou et al. [134] au sein de notre équipe pour étudier le comportement d'un système Al/SiCp et l'endommagement interfaciale se sont aussi basé sur cette analyse.

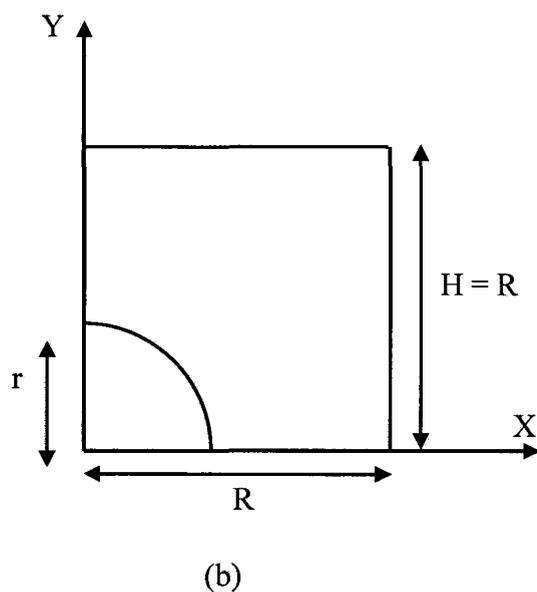
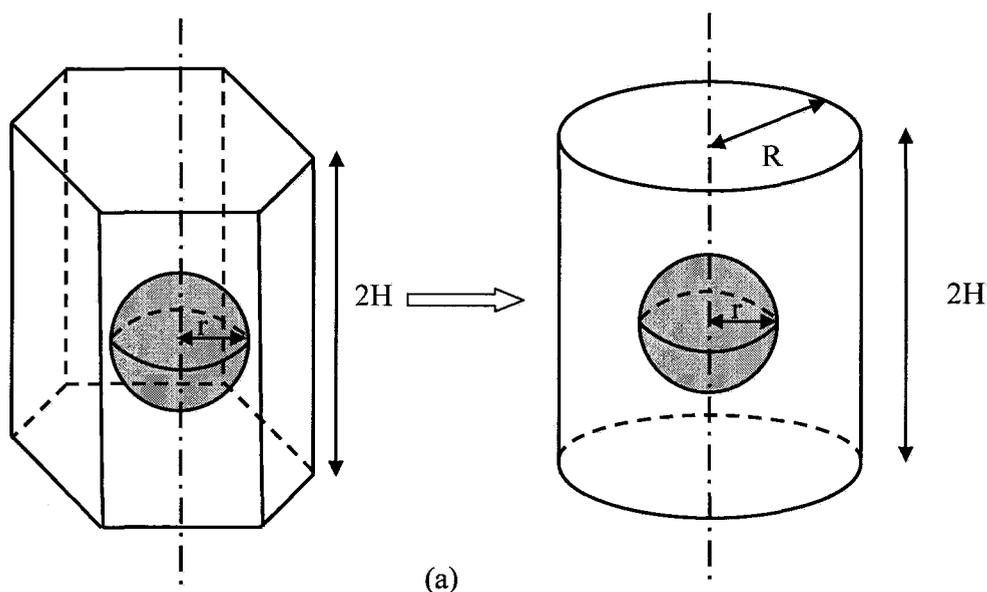


Figure 3.10 : Géométrie du problème d'homogénéisation périodique : (a) approximation de la cellule hexagonale à la cellule cylindrique, (b) cellule axisymétrique et paramètres géométriques.

Comme on vient de voir dans cette partie, le processus d'homogénéisation passe par quatre étapes différentes. Une fois la définition du *VER* choisie, vient la seconde étape qui est l'application des conditions aux limites et du chargement. Ensuite le regard est porté sur l'analyse du comportement mécanique de chaque phase du *VER* à l'aide de la description hyperélastoviscoplastique. Enfin les propriétés macroscopiques obtenues de la simulation numérique, sont calculées comme la moyenne sur la réponse du *VER* des quantités locales calculées par éléments finis.

Afin de pouvoir déterminer la réponse du composite, les composantes du tenseur de déformations et de contraintes macroscopiques sont définies comme la moyenne appropriée sur la région occupée par le *VER*, des composantes des contraintes et déformation microscopiques selon la théorie de la moyenne de Hill [91, 126]:

$$\langle \sigma(x, y) \rangle = \frac{1}{V} \int_V \sigma(x, y) dV \quad \text{et} \quad \langle \varepsilon(x, y) \rangle = \frac{1}{V} \int_V \varepsilon(x, y) dV \quad 3.23$$

Nous nous proposons, maintenant de présenter les simulations par éléments finis réalisées à partir de cette procédure d'homogénéisation périodique.

3.4.1 Validation du modèle viscoplastique

Dans un premier temps on se propose de simuler les essais de compression réalisés sur du PMMA pur (cas homogène) à différentes vitesses de déformation aux températures d'étude, pour valider le modèle viscoplastique présenté dans la section 3.2.3.

On examine le comportement macroscopique du PMMA avec le jeu de paramètres reportés dans le tableau 3.1. Le maillage en éléments finis présenté sur la Figure 3.11 a été utilisé pour le calcul.

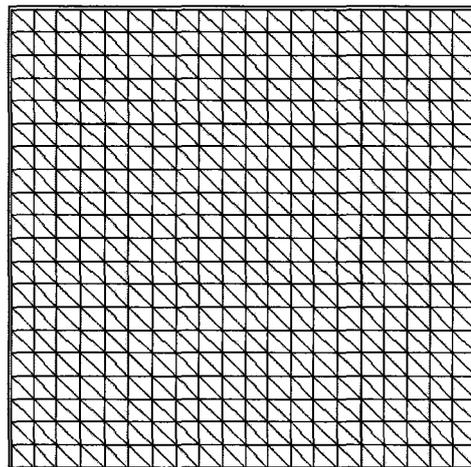


Figure 3.11 : Discrétisation en élément fini pour le cas homogène du PMMA.

Comme on peut le constater sur la Figure 3.12 la concordance entre l'expérience et la simulation est globalement bonne. Pour des vitesses de déformation grandes et à la température de 25° et 80° le seuil d'écoulement prédit est proche des mesures

expérimentales, mais le durcissement s'en écarte. Pour la température de 60° à la vitesse de 10^{-2} /s une sous-estimation du seuil d'écoulement est observée. Cette différence peut s'expliquer par le calcul des contraintes expérimentalement à partir d'une surface rectangulaire, alors que l'échantillon a une forme de tonneau avec une section qui change et devient plus importante au milieu.

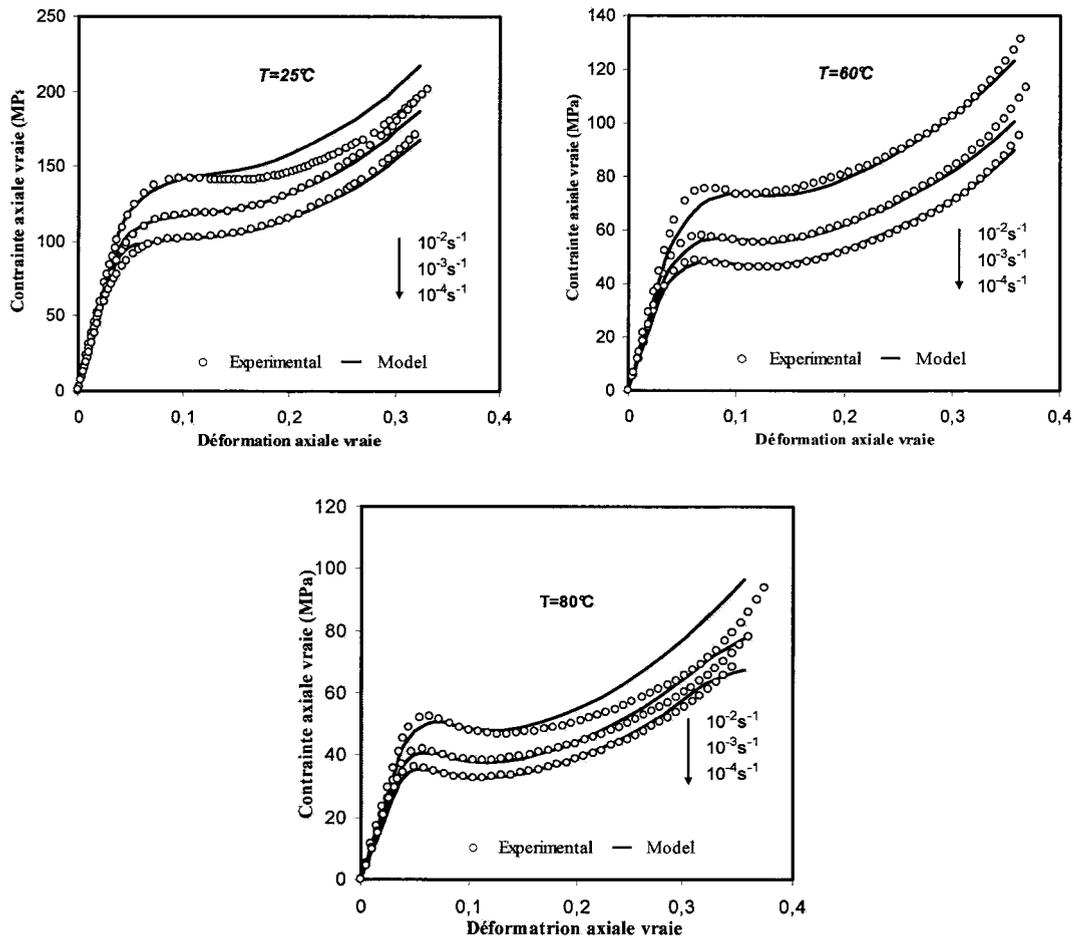


Figure 3.12 : Comparaison entre expériences et simulations de la réponse en compression du PMMA à différentes vitesses de déformation au température d'essais.

3.4.2 Homogénéisation du comportement des RT-PMMA

La deuxième étape consiste en la validation du modèle hyperélastoviscoplastique et de la méthode d'homogénéisation dans le but de montrer la sensibilité à la vitesse et l'influence de l'ajout de la deuxième phase. A cet effet, on a simulé l'essai de compression pour le composite polymère à différentes fractions volumiques. Dans ce cas les paramètres dans le tableau 3.1 et 3.2 ont été utilisés pour l'analyse micromécanique. A partir des relations (3.23) la réponse macroscopique du VER a été déterminée. Un exemple de discrétisation en éléments finis est illustré dans la Figure 3.13 pour le cas d'une fraction volumique de particules de 20%. Des éléments triangulaires à trois nœuds axisymétriques sont utilisés pour la discrétisation spatiale. Une adhésion parfaite est supposée entre la matrice et la particule. Un affinement de maillage à l'interface permet de mieux prendre en compte les gradients issus de cette discontinuité.

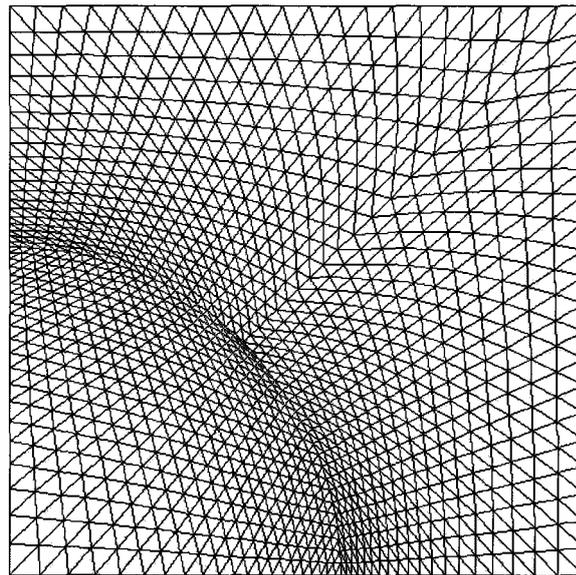


Figure 3.13 : Maillage en élément finis de la structure indéformée pour une fraction volumique de 20 %.

La Figure 3.14 compare le comportement simulé et mesuré du PMMA modifié pour différentes fractions volumique à température ambiante et à chaque vitesse de déformation. La réponse macroscopique montre que l'augmentation de la fraction volumique des particules conduit à une chute de la limite d'élasticité d'une part, et de l'amplitude de l'adoucissement d'autre part.

Les courbes contraintes déformations expérimentales et numériques sont en général en bon accord, sauf aux grandes vitesses de déformations (10^{-2} /s) et aux fortes déformations de plus de 20%. On observe aussi que les paramètres obtenus semblent reproduire le comportement

du RT-PMMA aux faibles vitesses pour toutes les fractions volumiques comme sur la Figure 3.14 c.

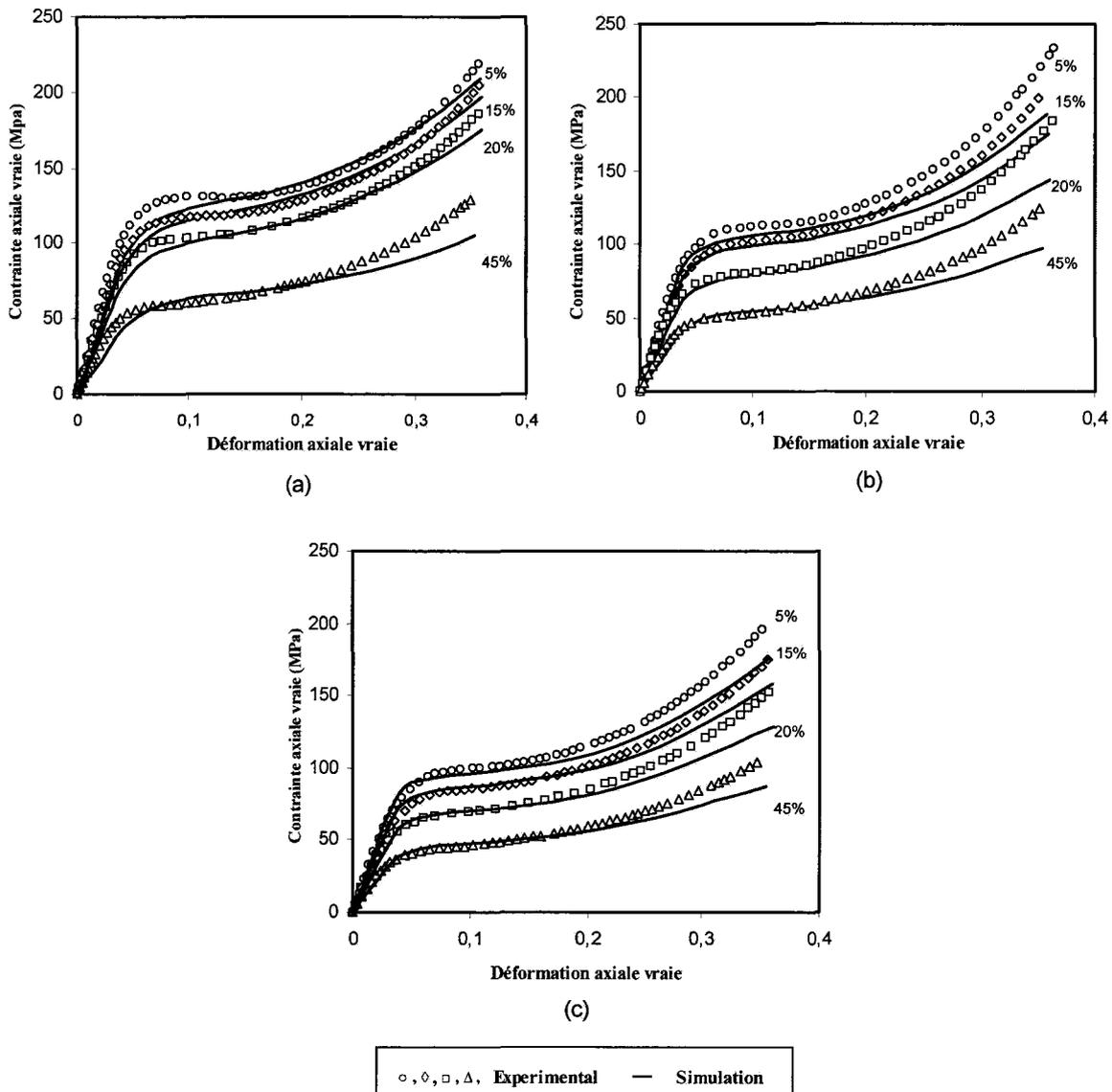


Figure 3.14 : Contrainte de compression en fonction de la déformation des différents RT-PMMA (5%, 15%, 20%, 45%) testés à température ambiante et à vitesse de déformation constante de (a) 10^{-2} /s, (b) 10^{-3} /s, (c) 10^{-4} /s : comparaison entre simulations et mesures.

L'écart entre la courbe simulée et expérimentale devient plus important aux grandes déformations pour les petites vitesses. Cet écart est dû d'un côté à la fonction d'énergie de déformation choisie pour modéliser le comportement de la particule d'élastomère, car celui-ci peut être mieux reproduit par une fonction à trois constantes. Et d'un autre aux hypothèses simplificatrices pour l'homogénéisation périodique.

Le seuil d'écoulement est sous-estimé là aussi pour les grandes vitesses 10^{-2} /s. Il semble que la translation du modèle d'une petite vitesse (10^{-5} /s) à une grande vitesse (10^{-2} /s) pourrait être à l'origine de cette différence.

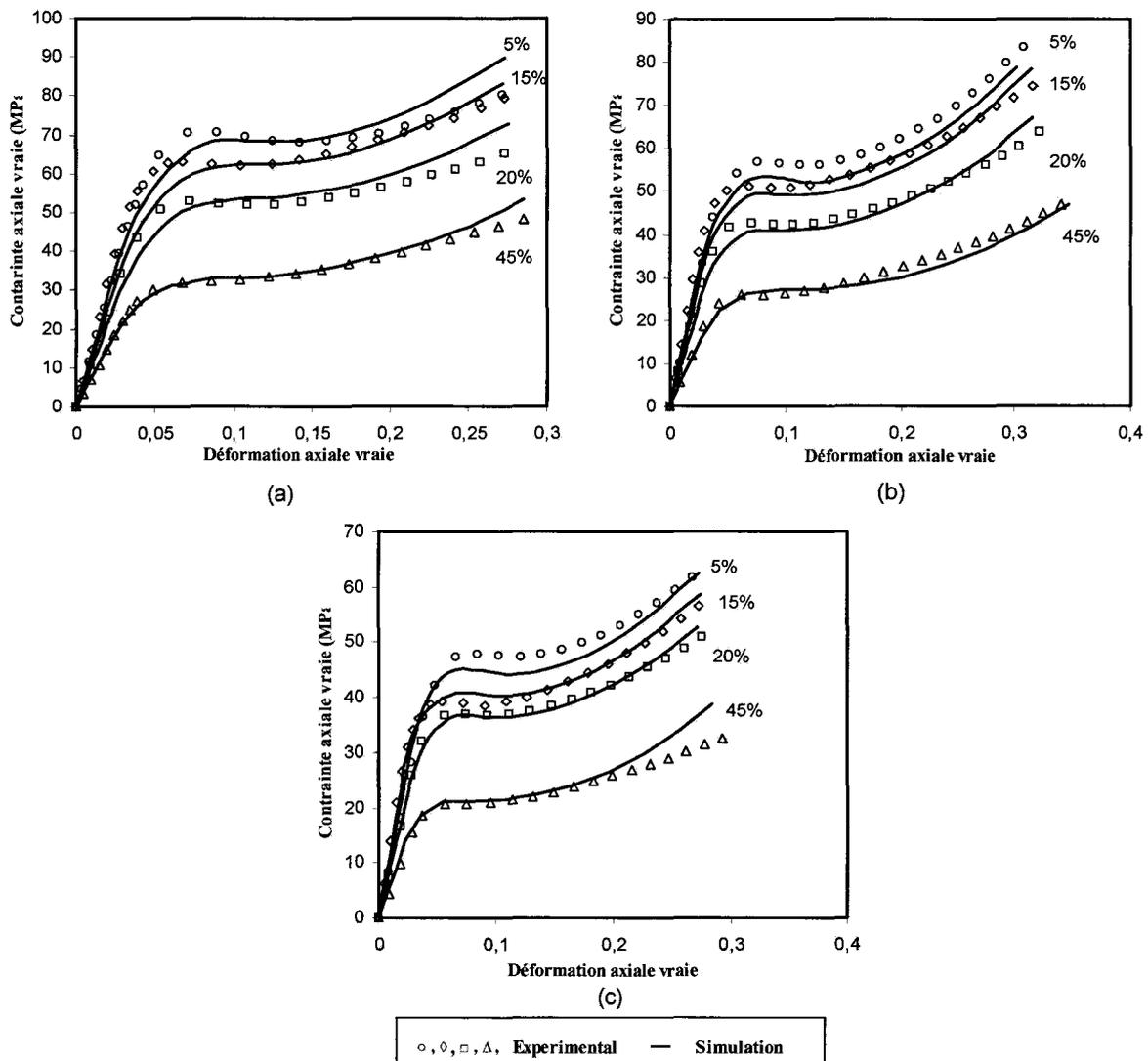


Figure 3.15 : Courbes contrainte-déformation pour le RT-PMMA aux différentes fractions volumiques sollicités à une température de 60 °C et à vitesse de déformation de (a) 10^{-2} /s, (b) 10^{-3} /s, (c) 10^{-4} /s : confrontation de l'expérimental avec le calcul numérique.

Les courbes résultantes des simulations et des essais expérimentaux pour les différents mélanges de PMMA et des particules d'élastomère dans les mêmes conditions de vitesse de déformation et aux températures plus élevées 60°C et 80°C sont représentées respectivement sur la Figure 3.15 et 3.16. On observe une tendance semblable des courbes pour les températures plus élevées avec un adoucissement plus prononcé pour la température de 80 °C.

Une bonne concordance de la réponse expérimentale et simulée est obtenue excepté pour les faibles fractions volumiques de particules.

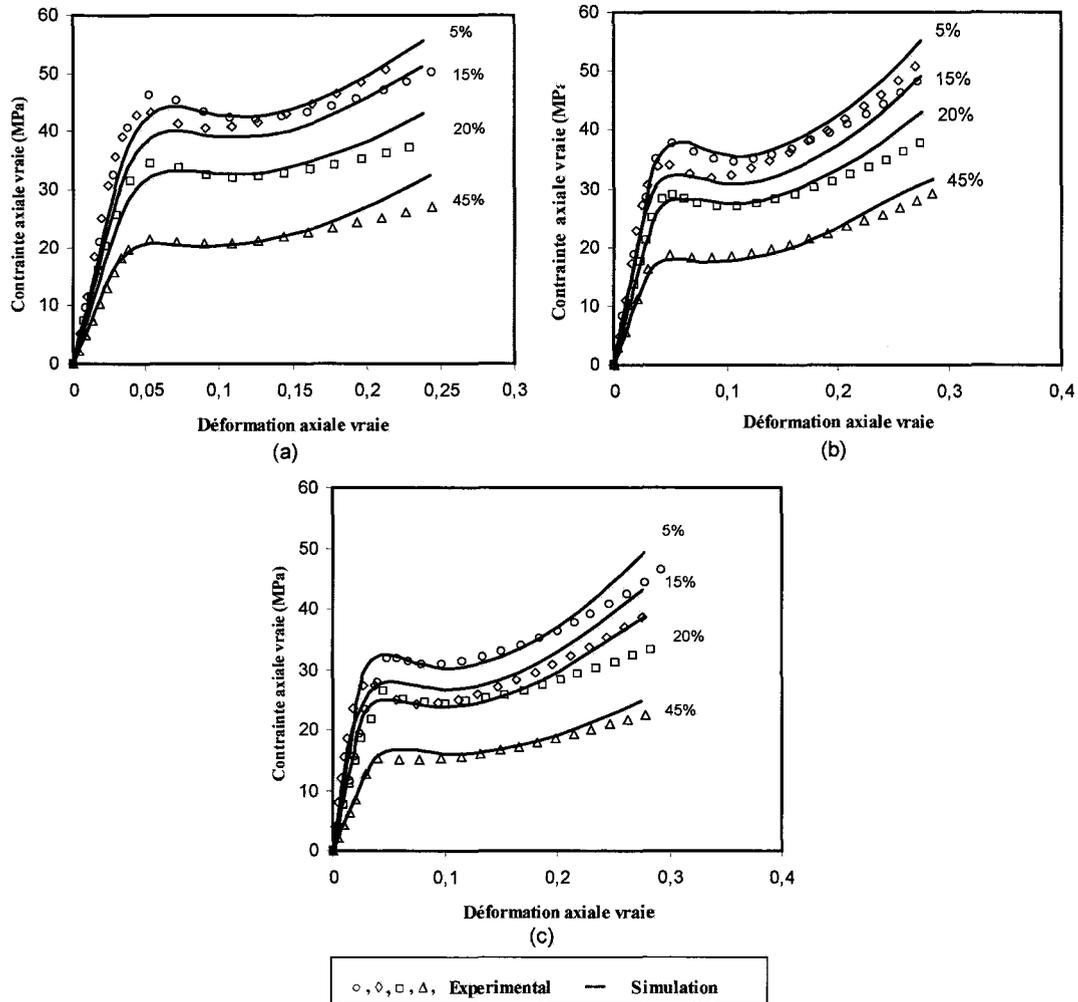


Figure 3.16 : Réponse expérimentale et simulée d'un essai de compression à une température de 80 °C et différentes vitesse de déformation (a) 10^{-2} /s, (b) 10^{-3} /s, (c) 10^{-4} /s pour les différents RT-PMMA.

Les trois figures représentant l'effet de la fraction volumique de particules sur le comportement macroscopique du composite montrent comment le modèle hyperélastoviscoplastique est capable de saisir la sensibilité du comportement des polymères renforcés par l'ajout de particules d'élastomères. Un tel effet est bien mis en évidence pour les trois températures d'essais. Ils montrent également que la procédure d'homogénéisation périodique est une des manières les plus fiables pour la prédiction du comportement des matériaux complexes tel que les composites polymères (exemple RT-PMMA).

Par ailleurs, la Figure 3.17 illustre une synthèse des résultats précédents, où nous avons représenté l'évolution de la limite d'élasticité expérimentale et calculée en fonction de la vitesse de déformation pour les différents mélanges étudiés aux trois températures d'essais. L'augmentation de la limite élastique linéairement avec l'augmentation de la vitesse de déformation confirme la dépendance déjà observée du comportement des polymères à la vitesse de déformation. Ce résultat montre encore une fois que la méthode d'homogénéisation combinée avec le modèle hyperélastoviscoplastique est capable de décrire le comportement typique de ces composites polymères. La dépendance à la vitesse de déformation est prédite avec succès en utilisant la technique de modélisation présentée dans ce travail.

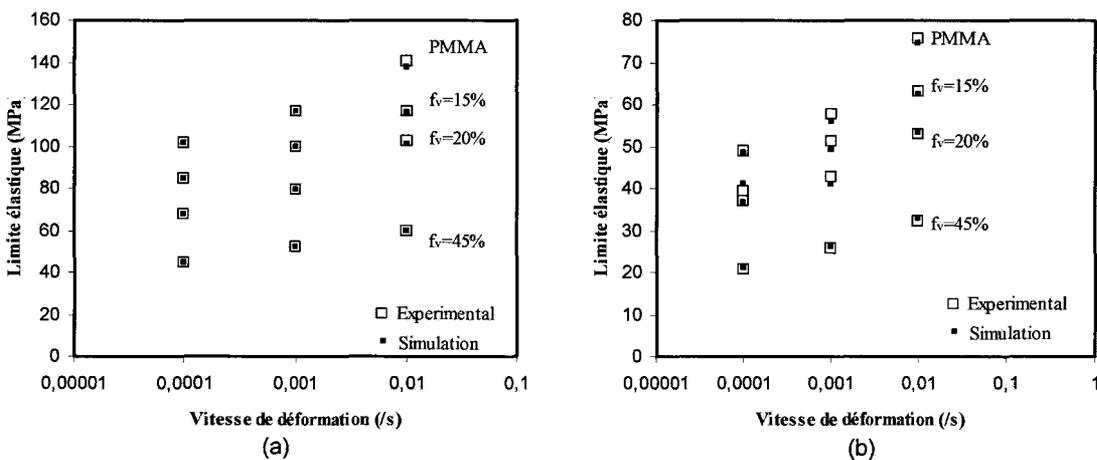


Figure 3.17 : Limite élastique macroscopique en fonction de la vitesse de déformation à partir des résultats présentés précédemment : mesures et simulations pour les mélanges étudiés comparés au PMMA pure à deux températures (a) ambiante 25°C , (b) 60°C.

Au vue de ces résultats, nous pouvons affirmer que le modèle hyperélastoviscoplastique ainsi que la méthode d'homogénéisation périodique choisie sont bien validés en compression sur un matériau modèle tel que le PMMA choc à des conditions de sollicitations différentes. Les prédictions du modèle semblent donner de meilleurs résultats pour les faibles vitesses et des températures plus élevées que l'ambiante.

3.5 Conclusion

Comme cela a été présenté tout au long de ce chapitre, il est possible de caractériser le comportement des composites polymères à l'aide d'une approche micromécanique.

Le comportement mécanique en grandes déformations du PMMA et du PMMA choc est analysé au moyen d'essais de compression uniaxiale pour éviter tout type d'endommagement. L'objectif est d'identifier les paramètres intervenant dans la description hyperélastoviscoplastique adopté ici. A partir de cette identification, nous pouvons prédire le comportement fortement non linéaire du polymère et du composite.

Le modèle hyperélastoviscoplastique proposé dans cette étude a été donc validé expérimentalement sur un matériau modèle, le RT-PMMA. La technique d'homogénéisation utilisée, par calcul de moyenne sur un VER des contraintes et déformations microscopiques, permet de mettre en évidence l'influence de certains paramètres et en particulier la fraction volumique des particules et la vitesse de déformation sur le comportement macroscopique du composite ainsi que, de montrer la pertinence de l'approche d'homogénéisation périodique numérique.

Nous pouvons maintenant envisager l'analyse numérique et expérimentale du comportement du composite avec la prise en compte de l'endommagement par cavitation dans le chapitre suivant.

Chapitre 4

Homogénéisation du comportement des RT-PMMA avec prise en compte de l'endommagement

4.1 Introduction

Nous avons présenté au chapitre précédent le modèle ainsi que la méthode micro-macro pour déterminer le comportement en compression d'un composite à matrice polymère et une deuxième phase dispersée d'élastomère. Le but de la démarche adoptée dans ce chapitre est la validation de l'approche micromécanique en traction en prenant en compte l'endommagement par cavitation. Comme nous l'avons indiqué au chapitre 3, l'étude de la compétition des mécanismes de déformation lors d'une sollicitation mécanique telle que la traction est importante dans la compréhension de l'efficacité du renforcement. Une modélisation pertinente du comportement mécanique global de tels matériaux hétérogènes en prenant en compte les mécanismes au niveau microstructural est nécessaire pour une description convenable du couplage entre l'endommagement et l'écoulement viscoplastique. Pour cela, après une brève revue des modèles les plus connus pour la cavitation des élastomères, une première partie de ce chapitre portera sur l'analyse du comportement du composite sans endommagement suivi par la modélisation du VER en considérant un vide sphérique dans la particule caoutchoutique, avec pour objectif l'étude de l'influence de la fraction volumique des vides sur la réponse macroscopique des systèmes étudiés d'une part et l'effet de ce vide sur le cisaillement viscoplastique dans la matrice et la pression hydrostatique dans la particule d'autre part. La deuxième partie portera par contre sur la modélisation du comportement du composite et de l'apparition de la cavitation au cours du chargement à partir de trois critères de cavitation de la littérature. Nous allons aussi confronter les prédictions du comportement macroscopique obtenues à partir de l'approche par éléments finis utilisée avec les mesures expérimentales que nous avons réalisées en traction, en faisant varier la vitesse de déformation. Le but de cette confrontation dans la première partie (section 4.3) est de valider le modèle hyperélastique-élastoviscoplastique en traction à température où le seul mode de déformation est le cisaillement, et d'étudier la cavitation à température ambiante dans la deuxième partie de ce chapitre (section 4.4).

4.2 Rappel bibliographique de la modélisation de l'endommagement par cavitation

De nombreuses études ont été réalisées sur les mécanismes de déformation des polymères chargés, et les relations qui existent entre les propriétés des matériaux et leur endommagement.

Lorsqu'un matériau est soumis à une contrainte uniaxiale, la déformation se localise principalement autour des hétérogénéités. Les nodules de renfort jouent le rôle de concentrateurs de contraintes. La concentration de contraintes est maximale à l'équateur de la particule et diminue progressivement si on s'éloigne de celle-ci. La présence d'une seconde phase élastomère au sein de la matrice amorphe fragile peut amplifier les modes de déformation propres à la matrice. Elle peut aussi amorcer de nouveaux modes de déformation et modifier les conditions de propagation des fissures soit par la création des microcraquelures au voisinage des renfort ou par pontage des fissures qui apparaisse seulement si les nodules sont ductile, de taille importante et avec une adhésion interfaciale suffisamment forte [137].

Sous l'effet du champ de contraintes triaxial qui se développe, une cavitation peut avoir lieu à l'intérieur des nodules. Après cette première étape, les contraintes se reconcentrent aux limites des cavités créées, ce qui amorce une déformation plastique de la matrice par cisaillement. Dans ce cas là, l'étude des polymères renforcés par adjonction d'élastomère fait d'abord appel au problème de la naissance d'une cavité dans l'élastomère, puis à la croissance de cette cavité par écoulement plastique dans la matrice [138].

La cavitation dans les élastomères a fait l'objet de différentes études analytiques ou numériques basées sur des approches énergétiques et d'équilibre de contrainte. Tous ces modèles consistent à trouver le cas limite d'apparition d'une cavité sphérique ou la croissance d'un microvides préexistant que se soit pour l'étude de ce phénomène dans le cas d'un cylindre en caoutchouc (Gent 1959) [35] ou une sphère creuse (Ball 1982 [139], Hou-Abeyratne 1992 [140], Lazzeri-Bucknall 1993 [53]). D'un autre coté plusieurs auteurs ont étudié la compétition de la cavitation et la plasticité par cisaillement dans un élastomère noyée dans une matrice vitreuse élastique (Bucknall & al. 1994 [32], Dompas 1994 [51], Fond 1996 [21]), où une matrice viscoplastique (Huang-Kinloch 1992 [141], Steenbrink-Van der Giessen 1997-1999 [142, 135], Zairi-Nait Abdelaziz 2005 [25]).

Nous nous intéressons ici aux modèles les plus utilisés et généralement adaptés aux mesures expérimentales qui ont données lieu à des résultats intéressants au niveau de l'étude de la

cavitation des élastomères et ses effets sur le comportement macroscopique des composites à matrice polymère :

Ball (1982) [139] suppose dans son analyse l'apparition d'un vide sphérique au centre d'une sphère de matériau élastique non linéaire sous sollicitation purement hydrostatique. La traction critique P_{cr} correspondant à l'apparition d'une cavité est obtenue après résolutions des équations non linéaires, et en considérant une densité Néo-hookéenne sous la forme :

$$P_{cr} = 5\mu/2 \quad , \quad E = 3\mu \quad 4.1$$

Où μ est le module de cisaillement du matériau.

Ce critère est une bonne approximation des résultats expérimentaux de Gent-Lindley 1959 [35].

L'auteur a montré que lorsque la tension de surface est non nulle, la valeur de la pression correspondant au cas limite d'une cavité de rayon nulle est infinie. Par conséquent il est impossible de caractériser avec ce modèle le phénomène d'apparition du vide en prenant en compte l'énergie de tension de surface.

Ce modèle a été repris et appliqué à d'autres densité d'énergie pour différents cas de chargement, comme dans les travaux de Chou-Wang et Horgan (1989) [143].

Hou-Abeyaratne (1992) [140] appliquent le principe des puissances virtuelles au problème de la stabilité de forme de cavité sous sollicitation triaxiale définie en contraintes $(\sigma_1, \sigma_2, \sigma_3)$.

L'hypothèse de base est cinématique : tout domaine initialement sphérique centré sur la cavité devient ellipsoïdal. Le modèle s'applique aux matériaux néo-hookéens incompressibles. Les auteurs extraient de leurs solutions approchées une surface seuil de cavitation appelé aussi critère de stabilité par d'autres auteurs :

$$S_c \rightarrow (4\sigma_1 - \sigma_2 - \sigma_3)(4\sigma_2 - \sigma_3 - \sigma_1)(4\sigma_3 - \sigma_1 - \sigma_2) - (5\mu)^3 = 0 \quad 4.2$$

Cette solution est insuffisante dans le cas de la croissance d'une cavité de taille initiale nulle.

Dans le cas d'un chargement purement hydrostatique ($\sigma_1 = \sigma_2 = \sigma_3 = P$), le modèle de Hou & Abeyaratne se simplifie à une pression critique de Gent (Eq. 4.1).

Lazzeri et Bucknall (1993) [53] proposent un critère pour expliquer la cavitation dans une particule d'élastomère et l'effet de la cavitation sur le comportement plastique des polymères renforcé au choc. En supposant le vide comme une sphère se trouvant au centre d'une particule d'élastomère sphérique et l'énergie de déformation de la particule juste avant

et après le déclenchement de la cavité, ils expriment l'état limite de cavitation par la déformation volumique critique suivante :

$$\varepsilon_{vc} = 4 \left(\frac{4\gamma}{3k_r D} \right)^{\frac{3}{4}} + \frac{3\mu_r F(\lambda_f)}{2k_r} \quad 4.3$$

où γ est l'énergie de surface, k_r et μ_r sont respectivement le module de compressibilité et de cisaillement de la particule, D le diamètre de la particule, $F(\lambda_f)$ une fonction de l'élongation à la rupture souvent prise égale à 1.

Le rayon de la particule est supposé constant durant l'expansion de la cavité de sorte qu'aucun travail externe additionnel ne soit effectué sur la particule par la matrice. Ce modèle explique les effets de la taille de la particule, de son module sur la transition ductile fragile et les changements de la cinétique de déformation suite à la cavitation.

Les deux auteurs adoptent ensuite le modèle de Gurson pour décrire le comportement seuil des polymères et comprendre la cinétique de l'écoulement. Ce sont les premiers qui ont essayé d'introduire un critère d'écoulement pour les polymères renforcés par des particules d'élastomère. Dans le même esprit Kody et Lesser [144] ont confronté leurs résultats expérimentaux sur une résine époxy renforcée sous un état de contrainte multiaxiale aux surfaces macroscopiques seuil déduite à partir du modèle de Lazzeri-Bucknall. Ils trouvent une divergence entre les prédictions du modèle et les données expérimentales. Cette différence peut être expliquée par le fait qu'une fraction significative des particules en caoutchouc a pu ne pas avoir cavité, alors que le modèle considère que toutes les particules cavitent.

Dans ses travaux de 1994 [32] Bucknall et ses collaborateurs considèrent, l'effet de l'introduction des termes additionnels pour l'absorption d'énergie de la matrice polymère et examinent la relation entre la cavitation et les propriétés du caoutchouc. Ayre et Bucknall [145] à leur tour testent la validité du critère énergétique expérimentalement et mènent leur étude sur le PMMA renforcé par des particules d'élastomère en traction, compression, et flexion à différentes températures d'essais pour vérifier les conditions critiques pour la cavitation.

Dompas et Groeninckx en 1994 [51] proposent un critère de cavitation en considérant que la cavitation peut être produite seulement si l'énergie gagnée est supérieure à l'énergie nécessaire pour créer une nouvelle surface. Selon eux la cavitation aura lieu si l'inégalité suivante est vérifiée :

$$U_{total} = U_{strain} + U_{surface} < 0 \quad 4.4$$

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

L'atteinte d'un niveau de dépression critique, dépendant de la taille de la particule d'élastomère, constitue donc aussi la deuxième condition à satisfaire afin de pouvoir développer au sein des particules une cavité. La relation entre la taille de la particule nécessaire pour la cavitation et la déformation de volume critique peut être définie par :

$$\varepsilon_{vc} = \left(\frac{12(\gamma + \Gamma_{sc})}{k_r D} \right)^{\frac{3}{4}} \quad 4.5$$

où k_r le module de compressibilité, D le diamètre de la particule, γ , l'énergie de tension de surface de l'élastomère, et Γ_{sc} l'énergie associée à la rupture des chaînes de polymère.

A partir de cette relation, on peut dire que les plus grandes particules cavitent plus tôt. En d'autres termes, la résistance à la cavitation de la particule augmente quand la taille de la particule diminue.

Fond (1996) [21] a lui aussi développé un modèle basé sur un bilan d'énergie, mais qui prend de plus en compte les variations d'énergie élastique dans la matrice. En se basant sur le formalisme de Griffith pour la déchirure interne des particules d'élastomère et sur le résultat d'Eshelby [92] pour les particules noyées dans la matrice élastique, il aboutit à l'expression d'une contrainte critique dépendant de la taille de la particule. Les auteurs ont mis également en évidence l'effet dimensionnel correspondant. La contrainte hydrostatique critique de la cavité s'écrit sous la forme :

$$\sigma_m = 2.6 \frac{(1 + \nu_m)(4\mu_m + 3k_r)}{9(1 - \nu_m)} \left(\frac{2}{k_r d_0} \right)^{\frac{3}{4}} \gamma^{\frac{1}{2}} (\Gamma + \gamma)^{\frac{1}{4}} \quad 4.6$$

avec : ν_m et μ_m le coefficient de poisson et le module de cisaillement de la matrice, k_r le module de compressibilité de la particule d'élastomère de diamètre initiale d_0 , Γ et γ respectivement l'énergie de rupture et l'énergie surfacique de la particule (les énergies dissipées). Le terme Γ est associé à la surface créée dans l'état non déformé, tandis que le terme γ est associé à celle de l'état déformé. Dans les travaux de Géhant-Fond et Schirrer en 2003 [138], l'extension du modèle au cas d'une matrice élastoplastique a été réalisée avec succès en appliquant la méthode des éléments finis à une structure périodique.

Les modèles présentés mettent en avant le rôle que peut jouer la pression hydrostatique sur l'apparition de la cavitation dans l'élastomère. De même la taille de la particule apparaît comme déterminante dans l'expression de l'état limite des trois derniers modèles évoqués ci-dessus (effet dimensionnel). Ils ont tous les trois en commun l'énergie de tension de surface. De plus Dompas et Fond considèrent l'énergie de rupture des chaînes macromoléculaires comme terme dissipatif dans l'expression de l'énergie totale.

Malgré les résultats de ces modèles, la cavitation des élastomères dispersés dans une matrice polymère reste un problème qui préoccupe la majorité des chercheurs. Des questions restent posées notamment : est ce que la cavitation précède la plasticité ou non et quelle est le phénomène qui favorise l'autre et domine la déformation ?

Des auteurs tel que Steenbrink et al. [135, 142] et Zairi et al. [25] ont couplé l'endommagement par cavitation en introduisant le modèle de Gurson dans une loi constitutive viscoplastique.

Steenbrink et al. 1997 [142] ont repris le modèle de Boyce [14] modifié par Wu et Van der Giessen [66] pour étudier les mécanismes de déformation des polymères vitreux (le polycarbonate). Il s'avère qu'après un début de cavitation au niveau des renforts, l'influence des particules d'élastomère devient négligeable. Etudier alors le matériau revient à l'assimiler à un polymère vitreux poreux, dans lequel la déformation plastique se localise dans les ligaments entre particules. Leurs travaux sont essentiellement basés sur des calculs de cellule dans un premier temps. Ils considèrent une cellule unique axisymétrique dans laquelle ils placent une cavité sphérique au centre. Son rayon est déterminé afin que le volume de cette cavité corresponde au pourcentage initial de porosité.

Les calculs de cellule permettent de faire varier la triaxialité et de comparer la réponse du matériau face à ce changement de contrainte. Leur étude permet de montrer des résultats intéressants quant aux modes de déformation des polymères vitreux poreux. Aux faibles taux de triaxialité, on observe que la déformation plastique se localise très tôt dans une bande de cisaillement situé à 45° par rapport à l'équateur de la cavité. La localisation de la plasticité ainsi située va créer un allongement de la cavité. Pour des triaxialités plus importantes, la localisation de la déformation par bandes de cisaillement se produit pour un angle de -30° . Au début de la déformation plastique les bandes de cisaillement sont confinées très près de la cavité, puis quand la déformation plastique augmente, elle se propage aussi bien dans la direction principale de sollicitation que dans la direction latérale.

De la même manière Steenbrink et al. ont étudié numériquement en 1999 [135] la croissance de cavité dans la particule d'élastomère d'un vide préexistant où ils ont observé que : les



bandes de cisaillement commencent à l'équateur bien avant l'écoulement macroscopique. Pour les plus fortes triaxialités et un faible module de la particule, la formation de bandes de cisaillement est favorisée. Finalement les bandes de cisaillement facilitent la croissance du vide et mènent ainsi à une déformation macroscopique adoucissante additionnelle.

Zairi et al [25] ont combiné le modèle de Bodner-Partom modifié et le modèle de Gurson pour prendre en compte l'influence des mécanismes d'endommagement et de déformation des les polymères vitreux renforcés. En raison de la dilatation par croissance de vides, la vitesse de déformation viscoplastique est à la fois déviatorique et dilatationnelle. La confrontation de la réponse numérique aux données expérimentales a montré l'aptitude du modèle à pouvoir appréhender le comportement non linéaire des polymères poreux. Ces travaux ont confirmé que la cavitation facilite la déformation plastique et que le cisaillement est prédominant dans les mécanismes de déformation.

4.3 Analyse du comportement et de la cavitation des RT-PMMA

Dans cette partie l'objectif est de déterminer le comportement mécanique du composite polymère (RT-PMMA) en traction.

La prise en compte et la prédiction de l'endommagement sera aussi étudiée. La combinaison du modèle hyperélastoviscoplastique avec l'endommagement (croissance des vides sphériques préexistants) permet la prise en compte de l'évolution des déformations viscoplastiques permettant une meilleur prédiction du comportement du composite.

Une particule endommagée peut être considérée comme une particule comportant un vide sphérique au centre, ce qui permet de simuler la croissance d'une cavité et étudier son influence sur le comportement macroscopique.

4.3.1 Définition du problème

Pour valider la méthode proposée ainsi que pour analyser sa portée, il convient de l'appliquer à d'autre cas de chargement. Ainsi, on a simulé l'essai de traction du RT-PMMA avec les calculs de la cellule unique.

Nous réaliserons des modélisations numériques du comportement du composite en utilisant trois modèles de cellule (Figure 4.1). Le premier pour le cas d'une particule sans

endommagement, le second pour le cas du polymère vitreux poreux et le troisième pour le cas d'une particule contenant une cavité sphérique au centre.

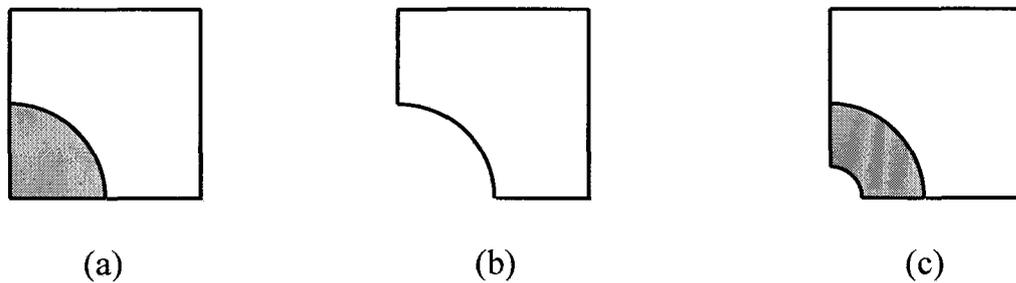


Figure 4.1 : Différents modèles du VER représentant les morphologies étudiées (a) particule sans cavitation, (b) PMMA poreux (vide complet), (c) particule avec cavité sphérique.

Le choix de la cellule unique étant accompli, l'analyse micromécanique du comportement est réalisée à l'aide de la description hyperélastoviscoplastique décrite dans la section 3.2 du chapitre précédent.

La méthode d'homogénéisation numérique adoptée nous permet finalement de déterminer les grandeurs globales des déformations et contraintes macroscopiques issues de l'analyse micromécanique à partir des relations de moyennes données au chapitre précédent (Eq. 3.23).

4.3.2 Etude expérimentale et identification des lois de comportement

Les processus d'endommagement plastique des matériaux polymères en particulier lors d'essais de traction entraînent des variations de volume dont la contribution à la déformation totale peut constituer une fraction importante. La mesure précise des variations de volume au cours de la déformation plastique est une information qui permet la caractérisation de l'endommagement macroscopique moyen. Cela est rendu possible grâce à la technique vidéométrique qui est utilisée.

4.3.2.1 Matériau et préparation des éprouvettes

A partir de plaques de mélange décrit au chapitre précédent, de 4 mm d'épaisseur, des éprouvettes de 90 mm de longueur, 10 mm de largeur sont découpées (Figure 4.2 a). Nous avons réalisés un fraisage dans la partie médiane afin de localiser la déformation au centre de celle-ci et d'éviter les risques de bandes de cisaillement macroscopiques lors de la traction.

Aussi bien pour les éprouvettes de PMMA que pour les éprouvettes des différents mélanges, sept taches d'encre noire (ou blanc) indélébile, sont appliquées sur la plus grande face de l'éprouvette, selon la géométrie représentée à la Figure 4.2 b. Cinq de ces taches sont alignées selon la direction axiale de l'éprouvette, les deux autres étant alignées avec la tache centrale de l'ensemble précédent selon la direction transversale.

Un blanchiment dû à la cavitation des particules d'élastomères est généralement observé dans cette même partie centrale de l'éprouvette et a tendance à changer le matériau de transparent à opaque, ce qui gêne la mesure vidéométrique. Pour éviter ce problème, on enduit l'arrière de l'éprouvette d'une couche de peinture noire.

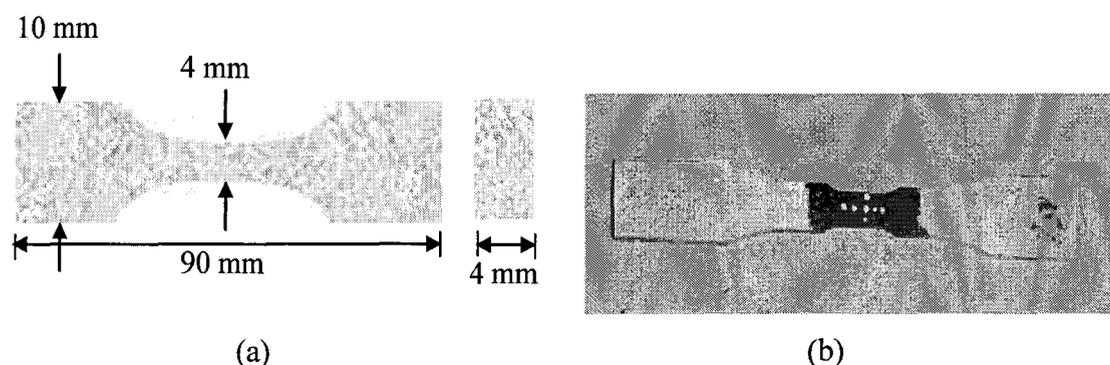


Figure 4.2 : (a) Géométrie de l'éprouvette de traction, (b) Eprouvette de traction marquée de sept taches.

4.3.2.2 Dispositif expérimental

Les essais de traction sont réalisés sur une machine de traction universelle Instron 5867 classique. Le système Vidéotraction utilisé est celui élaboré initialement par G'sell [146]. La technique a été développée et améliorée plus tard toujours au laboratoire de physique du solide par l'équipe de G'sell [147]. Le système repose sur la mesure précise de la géométrie locale d'une éprouvette au cours de la déformation. Cela est possible grâce à une caméra vidéo reliée à un micro-ordinateur doté d'un système d'analyse d'images (Figure 4.3). Cette mesure permet de remonter aux valeurs vraies de la contrainte, de la déformation et de la vitesse de déformation. Cette méthode permet en outre de piloter en retour l'actionneur de la machine de traction de manière à conserver une vitesse de déformation constante au cours de l'essai. C'est grâce à une régulation informatique qu'un ordinateur peut commander la traverse pour obtenir une vitesse de déformation vraie constante. Pour cela, il détermine la déformation du matériau en temps réel à l'aide de l'image fournie par la caméra.

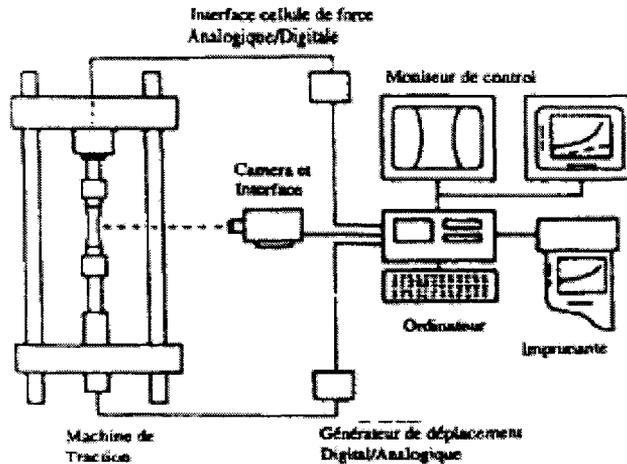


Figure 4.3 : Schéma représentatif du principe du système vidéotraction.

En fait la caméra suit l'évolution des sept taches de l'éprouvette. Un logiciel d'analyse d'images repère les taches par les coordonnées de leurs barycentres. Les variations de distances entre les taches donnent ainsi accès aux déformations, la déformation volumique est obtenue en sommant les déformations dans les trois directions.

L'inconvénient majeur de cette technique malgré qu'elle permet d'évaluer en temps réel la variation de volume, réside dans le fait que de sérieux problèmes d'acquisition et de traitement en temps réel du signal apparaissent pour des vitesses de sollicitation rapides et lorsque les évolutions de formes (instabilités plastiques) sont importantes.

4.3.2.3 Essais mécaniques et mesure de la variation de volume

Des essais de traction ont été réalisés sur le PMMA à des vitesses de déformations de l'ordre de (10^{-4} /s, 5.10^{-4} /s, 5.10^{-3} /s) à une température de 80°C. Ces essais sont destinés à la détermination des paramètres de la loi de comportement d'une part et la validation du modèle viscoplastique en traction d'une autre part.

Dans le but de valider la description hyperélastoviscoplastique et la méthode d'homogénéisation des résultats d'essais de traction sur les différents systèmes RT-PMMA ont été utilisés. Ces essais ont été réalisés par Zairi [61] au sein de notre équipe, pour des fractions volumiques de particules de (15%, 25%, 35%, 45%) à la même température de 80°C et à des vitesses de déformation de 5.10^{-4} /s, 10^{-3} /s, 5.10^{-3} /s.

D'autres essais destinés à valider le modèle hyperélastoviscoplastique couplé au critère d'apparition de cavité (section 4.4), ont été menés sur un mélange de PMMA et 30 % en

fraction volumique de particules d'élastomère (Polyacrylate de butyle) [61]. Ce matériau est censé présenter des propriétés optimales [148].

Les mors et les montages mécaniques utilisés avec le système vidéotraction qui permettent de tenir les éprouvettes et autorisent la prise de vue à l'aide de la caméra sont illustrés sur la Figure 4.4. Ce montage permet par ailleurs l'utilisation d'une enceinte thermique pour d'éventuels essais en température.

Comme nous l'avons signalé au chapitre 3, les essais en température ont été réalisés grâce à une enceinte thermostatée. Sa porte vitrée permet l'utilisation du système vidéotraction. Le même protocole de chauffage que les essais en compression a été suivi.

L'essai de vidéotraction fournit directement les courbes représentant l'évolution de la contrainte vraie en fonction de la déformation vraie à partir de mesures locales des éprouvettes en cours de déformation.



Figure 4.4 : Montage mécanique et mors utilisés avec le système vidéotraction.

Mesure de la variation de volume

Le logiciel de traitement de données analyse et enregistre en permanence les données suivantes : la force axiale appliquée à l'éprouvette, le temps, la position médiane de la distance qui sépare le barycentre de deux taches verticales voisines ainsi que la position moyenne des barycentres des trois taches transversales, la déformation axiale, la déformation transversale, et la contrainte axiale.

La déformation axiale et transversale au niveau de la zone située à proximité du centre de la partie utile de l'éprouvette est calculée à partir des positions après et avant étirage des taches par interpolation polynomiale en utilisant la déformation vraie (G'sell et al. [147]) :

$$\varepsilon_{vraie} = \ln \frac{L}{L_0} \quad 4.7$$

ε_{vraie} est la déformation vraie, L la longueur actuelle et L_0 la longueur initiale de la zone de référence.

La contrainte axiale vraie σ_V est définie par la relation :

$$\sigma_{vraie} = \frac{F}{S} \quad 4.8$$

Où F correspond à la force mesurée et S la section instantanée.

Compte tenu des définitions des déformations vraies, la déformation volumique ε_V est reliée à la dilatation d'un élément de matière sous l'effet de la déformation appliquée :

$$\varepsilon_V = \ln \left(\frac{V}{V_0} \right) = \varepsilon_1 + \varepsilon_2 + \varepsilon_3 \quad 4.9$$

Où V et V_0 représentent les valeurs des volumes courant et initial de l'élément de matière considérée. L'hypothèse d'isotropie ($\varepsilon_2 = \varepsilon_3$) est supposée.

Les grandeurs ainsi déterminées nous permettent d'obtenir facilement la contrainte axiale vraie par la relation :

$$\sigma = (F/S_0) \exp(-\varepsilon_1) \exp(-\varepsilon_2) \quad 4.10$$

Où S_0 est la section initiale de l'éprouvette, mesurée avant le début de l'essai de traction.

La déformation volumique plastique est définie par :

$$\varepsilon_V^p = \varepsilon_V - \varepsilon_V^e \quad 4.11$$

Avec

$$\varepsilon_V^e = (1 - 2\nu) \frac{\sigma_{vraie}}{E} \quad 4.12$$

Où ε_V^e est la déformation volumique élastique, ν et E sont respectivement le coefficient de Poisson et le module de Young mesuré. Mais la mesure de la variation de volume n'est pas suffisamment sensible pour détecter l'apparition. Cependant elle reproduit de manière quantitative l'évolution de la croissance du vide généré [38, 21].

4.3.3 Homogénéisation du comportement des RT-PMMA sans endommagement :

Nous avons utilisé pour la simulation numérique le code de calcul par éléments finis Ansys. Un exemple de discrétisation en éléments finis est donné sur la Figure 4.5 pour une fraction volumique de particules de 15%.

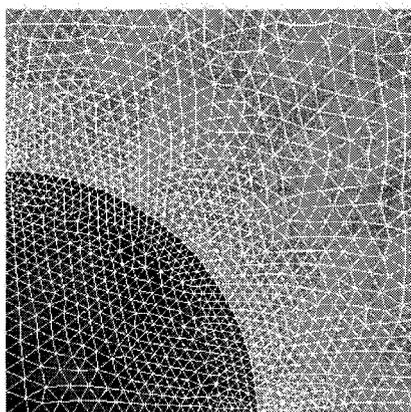


Figure 4.5 : Exemple de maillage de la cellule unique sans la cavitation.

Le Tableau 4.1 regroupe l'ensemble des paramètres qui ont été associées à la loi viscoplastique pour la phase vitreuse. Les paramètres du modèle viscoplastique ont été obtenus à partir de données expérimentales du PMMA à une température de 80 °C et à différentes vitesses de déformation pour éviter le caractère fragile du polymère à température ambiante. Les propriétés de l'élastomère, module de Young, coefficient de Poisson, le module de cisaillement, et le module de compressibilité ont été relevés de la littérature des travaux de Fond [27] et sont respectivement E , ν , μ , K (1 MPa ; 0.4999167 ; 0.333 MPa ; 2000 MPa). Le paramètre d est ensuite déduit à partir de $d = 2 / K$ pour la densité d'énergie choisie.

E [MPa]	ν	σ_0 [MPa]	m	γ [s^{-1}]
1200	0.3	16	0.268	0.101

Tableau 4.1 : les paramètres du modèle viscoplastique.

Afin de valider le modèle viscoplastique en traction, les résultats des simulations numériques sont comparés aux courbes expérimentales du polymère vitreux. La Figure 4.6 montre la réponse typique des polymères vitreux sous une sollicitation de traction avec un crochet et un adoucissement bien prononcé pour deux vitesses de déformations différentes. Le modèle viscoplastique couplé à l'écroutissage multilinéaire isotrope est capable de modéliser

l'écoulement plastique du polymère et reproduit la dépendance du comportement à la vitesse de déformation.

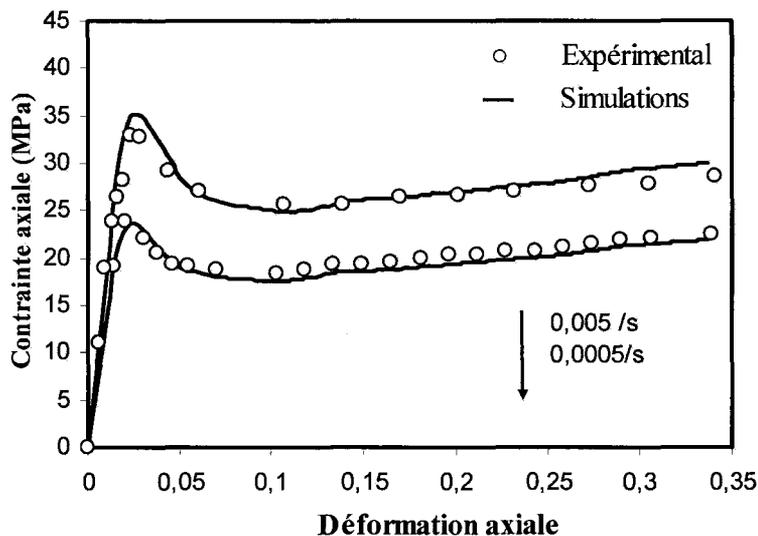


Figure 4.6 : Courbes contraintes-déformations d'un essai de traction à différentes vitesses de déformation pour le PMMA pure.

La Figure 4.7 permet de montrer également la dépendance du comportement global du composite polymère à la vitesse de déformation pour une fraction de particules de 15%. Bien qu'il existe une sous estimation de la limite élastique pour la plus grande vitesse, les résultats numériques sont en bon accord avec les données expérimentales.

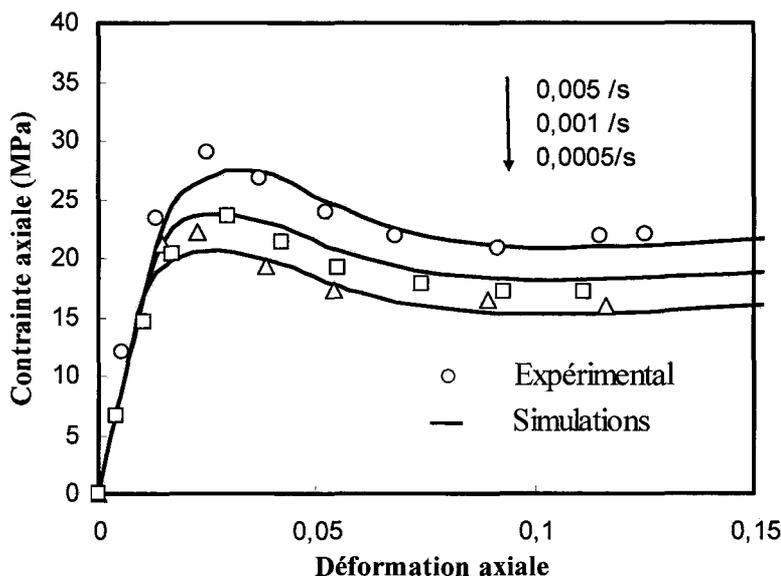


Figure 4.7 : Réponse macroscopique à différentes vitesses de déformation pour le RT-PMMA à une fraction volumique de particules de 15% : résultats numériques et expérimentaux [61].

Les résultats du modèle hyperélastoviscoplastique et la procédure d'homogénéisation pour différentes fractions volumiques de particules à des vitesses de déformation de l'ordre de (5.10^{-3} , 10^{-3} , et 5.10^{-4}) s^{-1} sont reportés sur la Figure 4.8. Nous observons l'effet de l'augmentation de la fraction volumique des particules par la diminution marquée de la limite élastique et de l'amplitude de l'adoucissement.

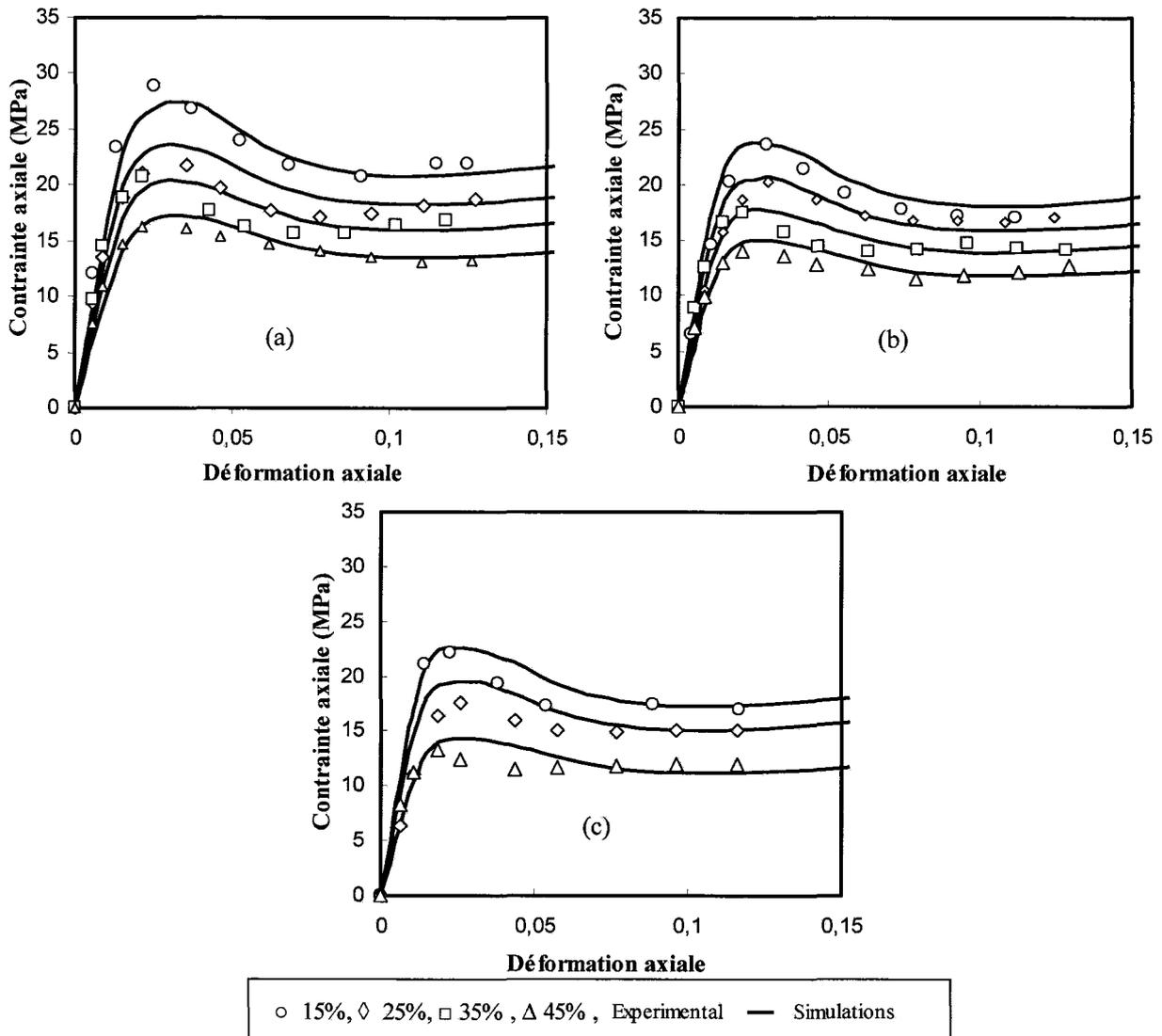


Figure 4.8 : Courbes contrainte-déformation numériques et expérimentales [61] du RT-PMMA à différentes fraction volumique de particules sollicité à $80^{\circ}C$ et trois vitesses de déformation : (a) $5.10^{-3} s^{-1}$, (b) $10^{-3} s^{-1}$, (c) $5.10^{-4} s^{-1}$.

Ces résultats ont confirmé la pertinence de l'approche numérique pour un autre type de sollicitation qui est la traction.

La méthode d'homogénéisation couplée au modèle hyperélastoviscoplastique semble efficace pour décrire le comportement macroscopique de ces composites particulaires. La dépendance à la vitesse de déformation et la fraction volumique de particules est relativement bien prise en compte.

4.3.4 Influence de la fraction volumique des vides pour le PMMA poreux

Jusqu'à maintenant on a abordé le problème de déformation des polymères vitreux renforcés sans tenir compte de l'endommagement par cavitation. Cependant, les résultats de la littérature utilisant le concept de la cellule unique évoqué précédemment, ont montré la sensibilité de ces matériaux à ce type d'endommagement, ainsi que ses effets adoucissants [33, 135, 141, 142].

Afin de cerner cette influence, de la modéliser, nous nous plaçons dans un premier temps dans le cas d'une matrice poreuse, en considérant une cellule à l'intérieur de laquelle est placée une cavité sphérique unique dont le volume correspond au pourcentage volumique de cavités dans le matériau.

A partir des paramètres du modèle viscoplastique du Tableau 4.1 pour la matrice polymère vitreuse, on a simulé l'essai de traction du PMMA poreux à une vitesse de déformation constante et à différentes fractions volumiques des vides. Le type de maillage utilisé pour les calculs par éléments finis est représenté dans la Figure 4.9.

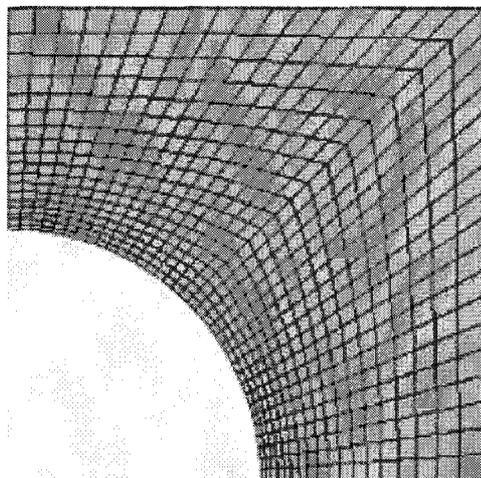


Figure 4.9 : discrétisation en élément finis de la cellule élémentaire.

Les prédictions en terme de réponse contrainte-déformation et de variation de volume reportées sur la Figure 4.10, indiquent clairement que la localisation des contraintes diminue

avec l'augmentation de la fraction volumique des vides. Il y a notamment une diminution du niveau de déformation pour les fractions les plus élevées accompagnée d'une diminution de la limite d'élasticité.

Les calculs pour les fractions volumiques de 25 à 30% s'arrêtent à des niveaux plus faibles de déformation globale à cause de la déformation excessive des ligaments de la matrice comme le montre la Figure 4.10 a.

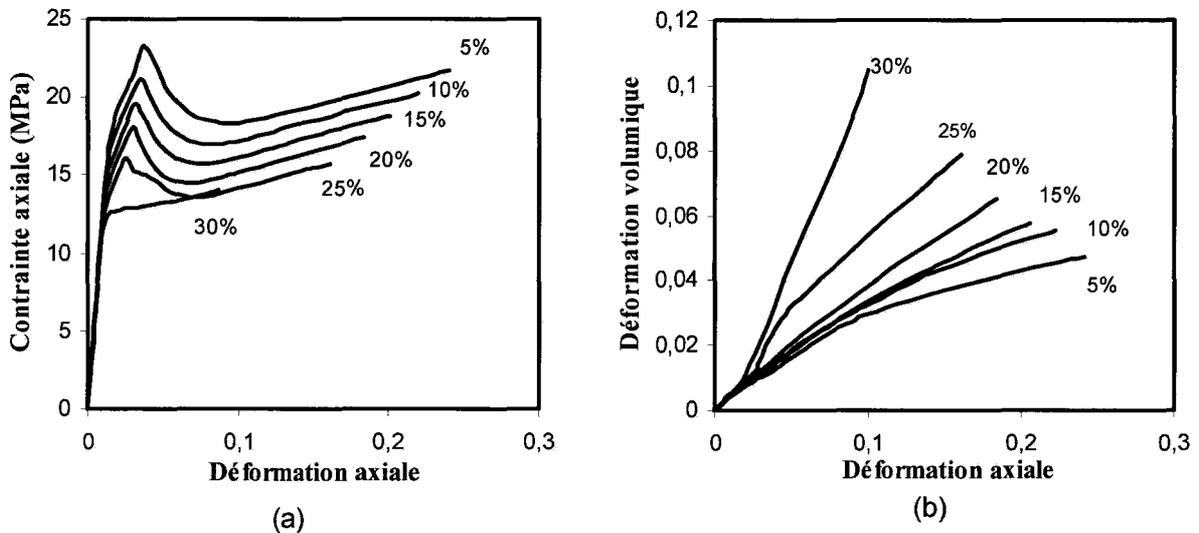


Figure 4.10 : (a) Réponse macroscopique du VER et (b) Déformation volumique en fonction de la déformation axiale (augmentation de la variation de volume) pour un essai de traction de PMMA à une vitesse de déformation de 10^{-3} s^{-1} avec différentes fractions de vides.

On observe que les faibles fractions volumiques (5-20%) n'affectent pas l'adoucissement et le durcissement typique des polymères par le cisaillement de la matrice. Par contre le passage de 25 % à 30 % affecte les mécanismes de déformation. Dans le dernier cas (30%), la déformation se localise dans le ligament (Figure 4.11 b), par contre pour les faibles fractions volumiques de vides la déformation est propagée dans tout le VER (Figure 4.11 a). Ce remarquable changement dans le comportement a été également observé par d'autres auteurs pour le polycarbonate [33].

Plus la fraction volumique des vides augmente et plus la déformation volumique devient plus importante par rapport à la déformation globale (Figure 4.10 b).

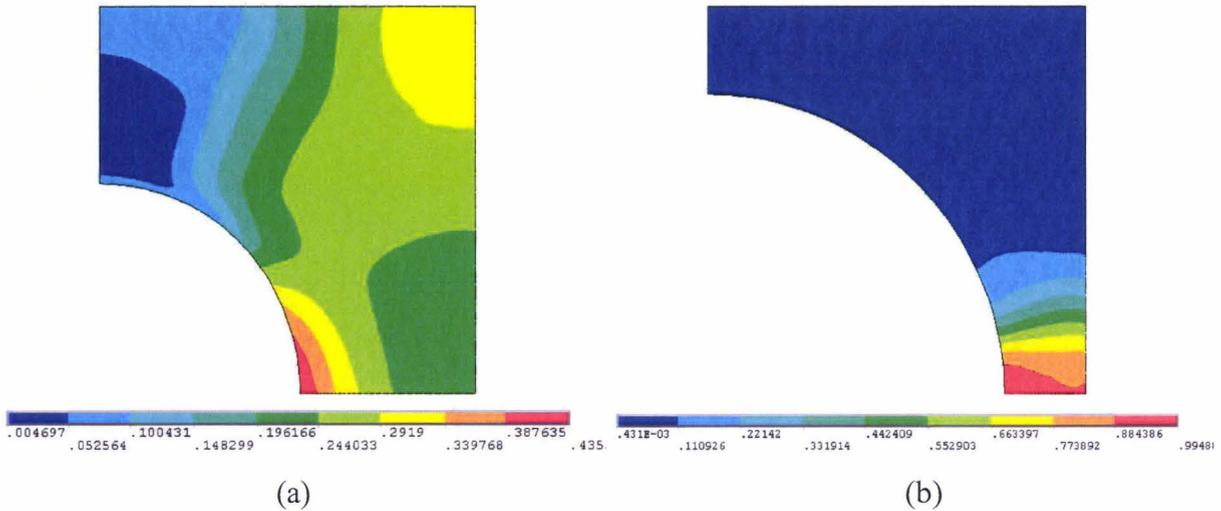


Figure 4.11 : Distribution de la déformation totale pour le cas de : (a) 10%, et (b) 30% de fraction volumique des vides.

On peut voir aussi que la stabilité du comportement macroscopique des polymères vitreux gouverné par le comportement intrinsèque adoucissant post écoulement et le durcissement est du à la compétition des deux mécanismes, une cavitation qui favorise le cisaillement de la matrice qui facilite la croissance du vide à son tour. Dans la section suivante on s'intéresse aux effets de la cavitation de l'élastomère sur le comportement macroscopique d'un coté et sur l'état de contrainte dans la particule elle-même.

4.3.5 Cavitation dans le polymère renforcé

On se propose ici d'examiner le phénomène de cavitation dans notre système de PMMA modifié par des particules d'élastomères. On considère la cellule unique contenant une particule sphérique dans laquelle on a placé un vide sphérique au centre avec différents rayons afin d'étudier l'influence de la taille du vide sur le comportement global du composite polymère. Ce choix a été fait pour garder l'hypothèse d'axisymétrie adopté dans la procédure d'homogénéisation.

A partir du jeu de paramètres pour la matrice, et les propriétés de l'élastomère utilisé dans la section 4.3.3, des analyses par éléments finis ont été réalisés pour trois différents rayons initiaux de vides r_c (rayon de la cavité) donnés par le rapport entre les rayons initiaux de la cavité et de la particule respectivement r_c / r (0, 0.33, 0.66, 1). Un exemple de maillage de la cellule avec cavité utilisé pour les simulations numériques est présenté dans la Figure 4.12.

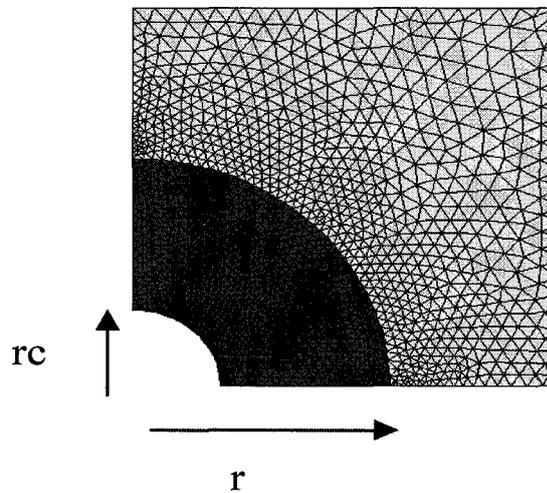


Figure 4.12 : Exemple de maillage de la cellule élémentaire avec vide sphérique de rayon correspondant à $r_c/r=0.33$.

Sur la Figure 4.13, le comportement macroscopique du composite contenant une particule endommagée est comparé au matériau sain. L'augmentation de la fraction initiale des vides mène à une diminution de la limite élastique. Pour des déformations importantes, les réponses convergent vers une courbe unique excepté lorsque il n'y a pas de vide initial.

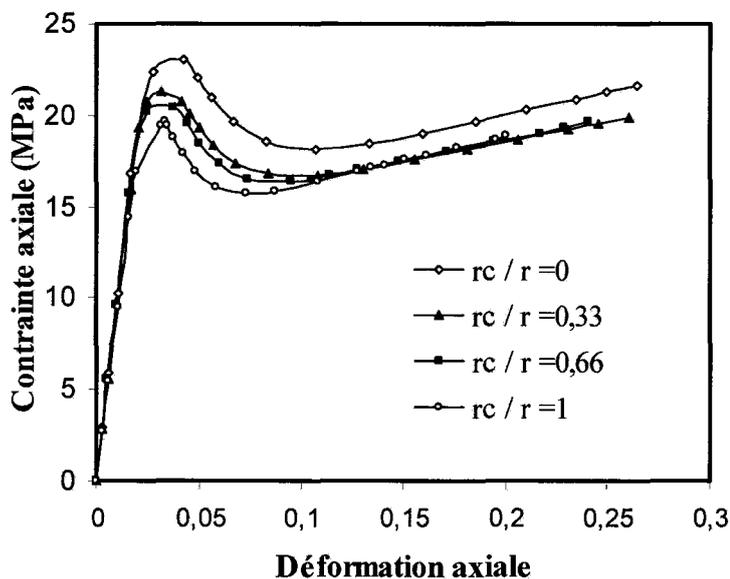


Figure 4.13 : Réponse contrainte déformation macroscopique à différentes fraction du vide.

Dans la littérature, différents points de vue expliquent la contribution de la cavitation dans le processus de déformation. Tandis que quelques chercheurs affirment que la formation des

vides favorise le cisaillement plastique [33, 19], d'autres le considèrent comme un processus énergétique secondaire dans le mécanisme de déformation [21, 142].

4.3.5.1 Bandes de cisaillement

Les observations et les résultats expérimentaux dans l'étude de Zairi et al. [25] ont montrés que pour ce type de matériaux de matrice polymère renforcée au choc par des particules d'élastomère de type core-shell, le seul mécanisme d'endommagement est la cavitation des particules en compétition avec les bandes de cisaillement dans la matrice. Le cisaillement apparaît avant l'écoulement et est le mécanisme dominant. Par contre la cavitation apparaît au seuil d'écoulement. Pour analyser l'influence de la cavitation sur le cisaillement plastique, on a examiné la concentration des déformations plastiques de cisaillement aux différentes fractions des vides étudiés. Les résultats numériques reportés dans la Figure 4.14 confirment que les bandes de cisaillement sont initiées à l'équateur de la particule avant l'écoulement macroscopique et se propagent après avec un angle de 45° à partir de la direction principale de chargement.

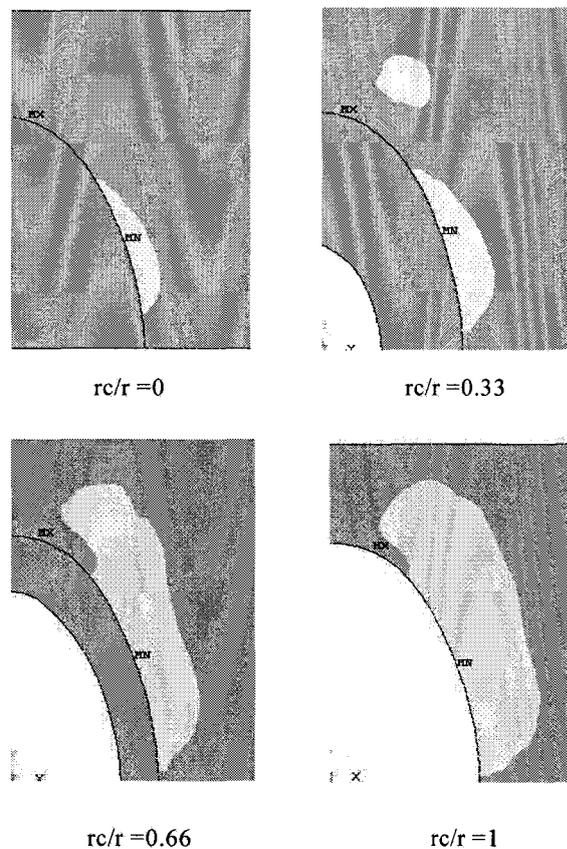


Figure 4.14 : Résultats numériques de la distribution de la déformation plastique de cisaillement correspondant à différentes fractions de vides au même niveau de déformation globale.

La Figure 4.14 montre que plus le rayon initial de la cavité est grand et plus la zone de déformations plastiques de cisailage est importante.

4.3.5.2 Pression hydrostatique

L'analyse de l'évolution de la pression hydrostatique dans les particules d'élastomères peut contribuer à une meilleure compréhension du phénomène de cavitation. Une étude de sensibilité est ainsi menée en faisant varier le module de compressibilité et la fraction volumique des particules et des vides.

Géhant et al [138] ont démontré, à partir du critère d'apparition de cavité de Fond [21] et une analyse élastoplastique par éléments finis, que la pression hydrostatique diminue avec l'augmentation de la fraction volumiques des particules. La Figure 4.15 montre les contraintes hydrostatiques moyennes dans la particule en fonction de la déformation du VER dans le cas sans cavité et pour les différents rayons de vides.

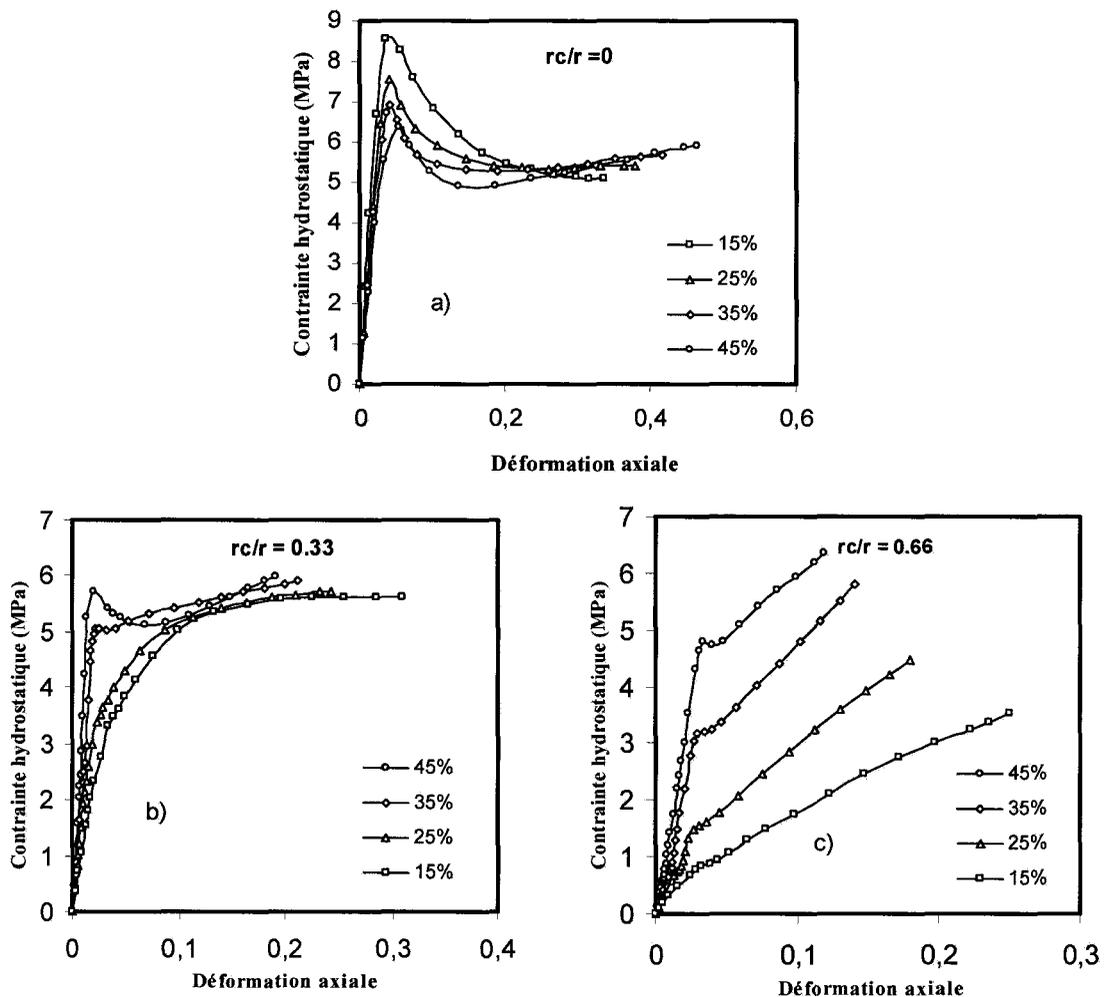


Figure 4.15 : Contrainte hydrostatique dans la particule fonction de la déformation à différentes fractions volumiques de particules pour $rc/r = 0, 0.33, 0.66$.

Ces résultats ont été obtenus en faisant la moyenne des contraintes hydrostatique dans la particule, car au sein de la particule la contrainte hydrostatique est quasi-uniforme. On peut noter qu'en absence d'endommagement (Figure 4.15 a), l'évolution de la contrainte hydrostatique présente la même allure que celle de la contrainte dans le composite (Figure 4.13). Quand la fraction volumique augmente, les niveaux de pression à déformation constante diminuent.

Le maximum de la contrainte hydrostatique est atteint pour une déformation macroscopique de 5%, indépendamment de la fraction volumique.

Pour les particules contenant un vide (Figure 4.15 b et c) une tendance opposée est observée concernant l'évolution de la contrainte hydrostatique (le niveau de pression décroît lorsque la fraction volumique de particules diminue). Si le tenseur de contrainte est purement sphérique dans le cas de la particule saine, il subit une déviation lorsque l'on introduit un vide. Ce point est clairement montré sur la Figure 4.16 qui donne l'évolution du rapport σ_1 / σ_2 (ici $\sigma_2 = \sigma_3$) en fonction de la déformation axiale globale.

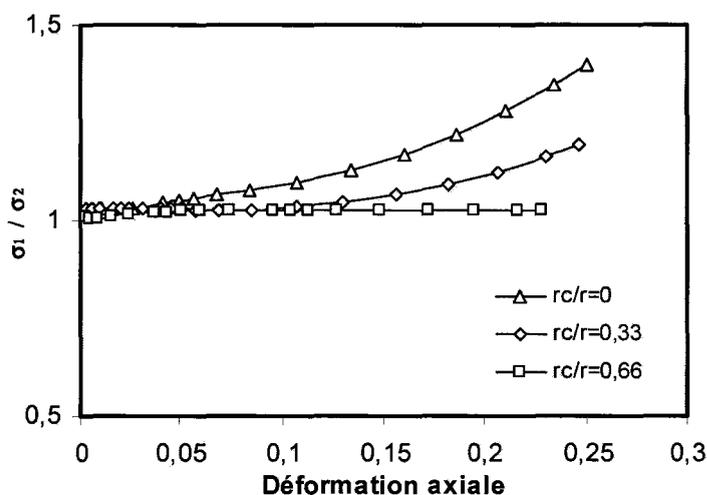


Figure 4.16 : Le rapport σ_1 / σ_2 dans la particule pour différentes fractions de vides à une fraction volumique de particules de 15% et un module de compressibilité de 2500 MPa.

L'influence du module de compressibilité sur l'évolution de la contrainte hydrostatique dans la particule, a été également examinée. En considérant une valeur constante de 15 % pour la fraction volumique des particules, une étude de sensibilité au module de compressibilité a été menée. La Figure 4.17 montre que la contrainte hydrostatique dans la particule augmente avec le module de compressibilité, quel que soit le cas étudié : particule saine ou endommagée.

D'un autre côté, nous observons que pour la particule saine l'évolution de la contrainte hydrostatique montre un pic et une diminution asymptotique, contrairement à la particule endommagée où aucun pic n'est observé. En effet dans ces cas, la contrainte hydrostatique augmente avec la déformation axiale pour atteindre approximativement la même valeur que celle de la particule saine aux grandes déformations.

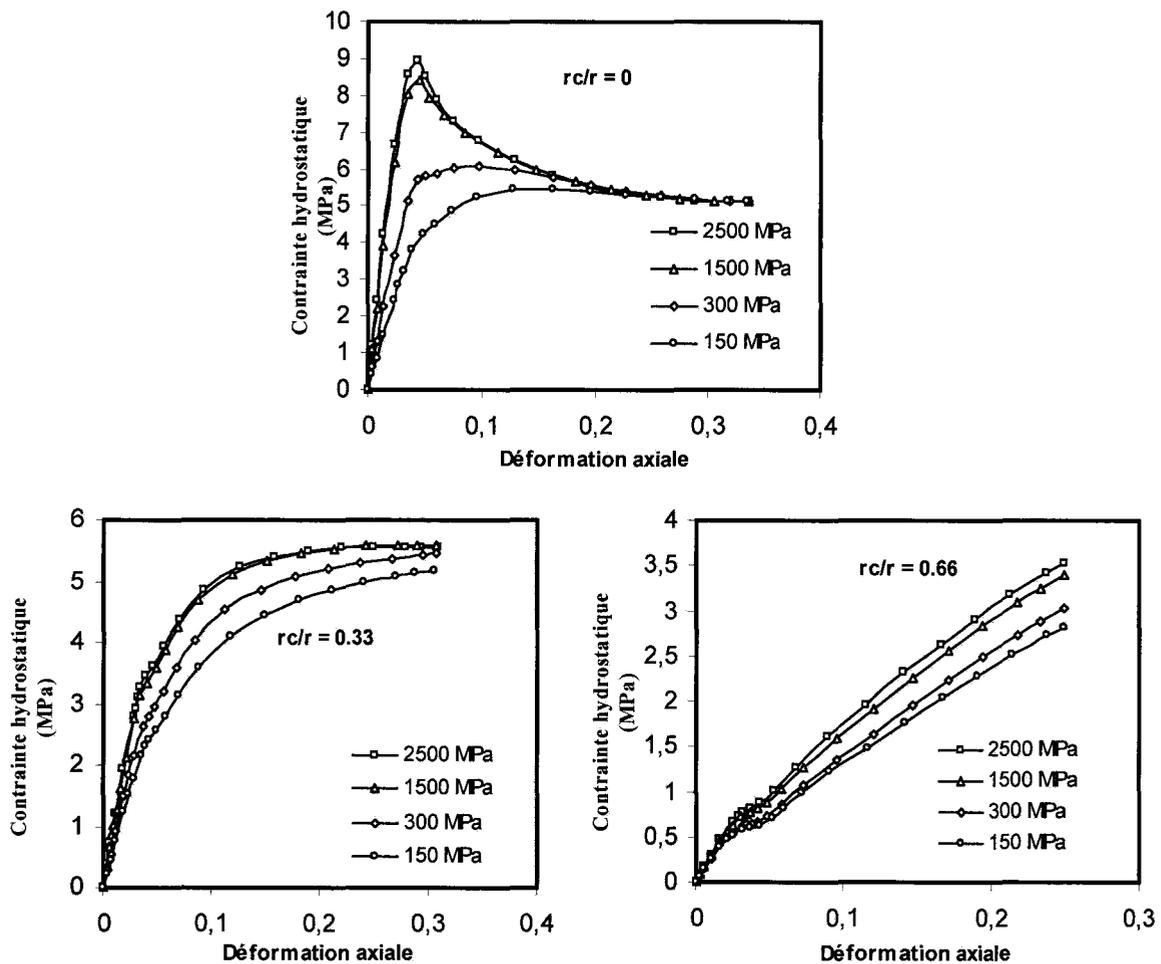


Figure 4.17 : Evolution de la contrainte hydrostatique dans la particule de caoutchouc pour plusieurs valeurs du module de compressibilité.

Quand la cavitation apparaît dans la particule d'élastomère, la première conséquence est la diminution de la contrainte hydrostatique comme le montre la Figure 4.18, où l'évolution de la contrainte hydrostatique dans la particule non endommagée en fonction de la déformation globale est comparée aux particules cavitées pour deux différents rayons de vide. La contrainte hydrostatique diminue avec l'augmentation du rayon du vide.

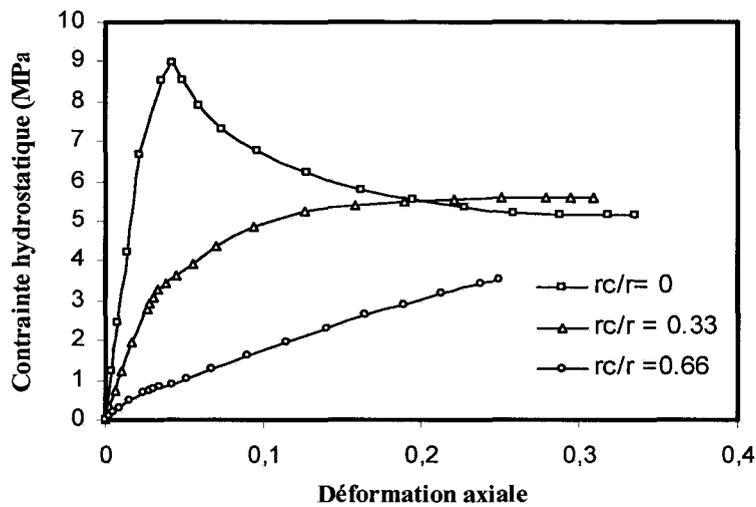


Figure 4.18 : Evolution de la contrainte hydrostatique pour différentes valeurs du rapport rc/r à un module de compressibilité ($K=2500$ MPa) et une fraction volumique de 15%.

4.4 Analyse de l'endommagement dans les polymères renforcés à partir d'un critère d'apparition de cavité

Ainsi que nous l'avons constaté au cours de la partie précédente, l'approche numérique utilisée jusque maintenant pour la modélisation du comportement macroscopique du composite et de la cavitation est basée sur le calcul de la cellule classique avec une inclusion unique contenant un vide sphérique au centre.

Le principal but de cette partie est la modélisation micromécanique du comportement du matériau endommagé. Nous cherchons à quantifier l'influence de la cavitation sur la réponse macroscopique du composite polymère d'une part, et sur l'initiation de l'écoulement plastique.

Nous nous proposons ici d'aborder le problème de la cavitation de la particule d'élastomère sous l'angle de critères locaux consistant à modifier les propriétés du renfort pour simuler le vide. On suppose, en effet, que la cavitation ne surviendra que quand l'état de la contrainte hydrostatique est supérieur ou égale à une limite liée à la contrainte critique du modèle considéré. La construction du modèle avec le critère d'endommagement est basée sur la formulation hyperélastoviscoplastique proposée dans ce travail et trois modèles de cavitation existants dans la littérature en terme de contrainte critique (Gent [35](eq.4.1), Hou-Abeyratne [140] (eq. 4.2), Fond [21] (eq. 4.3)) cités dans la section 4.2.

4.4.1 Cavitation, modélisation micromécanique

Le critère d'endommagement intégrant le modèle constitutif que nous proposons dans cette étude peut être écrit comme suit :

$$\sigma_I \geq \sigma_C \quad 4.13$$

σ_I et σ_C représentent respectivement la contrainte hydrostatique (critère de Gent et Fond) dans la particule et la contrainte critique pour chaque modèle. Pour le critère de Hou & Abeyaratne $\sigma_I = (4\sigma_1 - \sigma_2 - \sigma_3)(4\sigma_2 - \sigma_3 - \sigma_1)(4\sigma_2 - \sigma_3 - \sigma_1)$.

Le critère local consiste à comparer les contraintes calculées en chacun des points de la particule à une contrainte limite au-delà de laquelle la cavitation prend naissance.

Pour ce faire, on considère un maillage avec différentes surfaces dans la particule correspondant à différentes tailles de vide (Figure 4.19). Le critère ne nécessite que la connaissance, à chaque pas de chargement, des contraintes en chaque nœud de la particule. La condition doit donc être vérifiée systématiquement à chaque pas de chargement. Si elle est remplie, signifiant que la limite a été atteinte, alors les rigidités des éléments en question sont dégradées. On élimine les éléments jusqu'à la dégradation totale du renfort caoutchoutique.

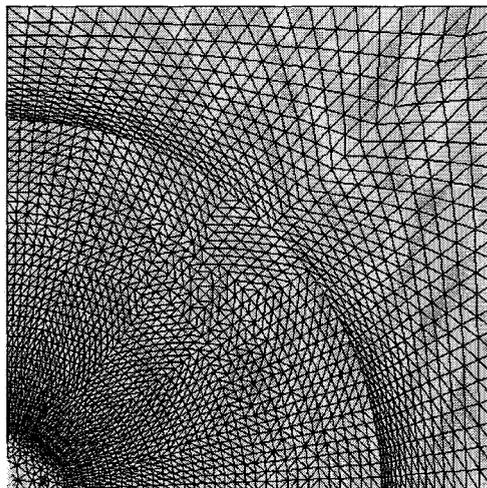


Figure 4.19 : Discretisation par élément finis de la cellule pour une fraction de 30%.

Par ailleurs, nous avons constaté que la contrainte hydrostatique est quasi uniforme dans toute la particule. Une fois la contrainte limite atteinte en un point en général (au centre de la particule), elle est atteinte en tout point. La cavitation est gouvernée par une contrainte hydrostatique critique, selon l'hypothèse posée. La modélisation de l'endommagement est progressive du cas d'une particule saine jusqu'à la dégradation totale de la particule en passant d'une surface à une autre (tester le critère dans une surface, s'il est atteint on dégrade

tous les éléments et on vérifie ensuite le critère dans la surface suivante). Nous donnons, sur la Figure 4.20, l'algorithme utilisé pour simuler l'endommagement progressif de la particule. Les trois critères sont intégrés dans le modèle hyperélastique-élastoviscoplastique pour la modélisation du comportement micromécanique avec l'endommagement par cavitation de la particule. L'implantation numérique de l'endommagement dans le code d'éléments finis a été réalisée.

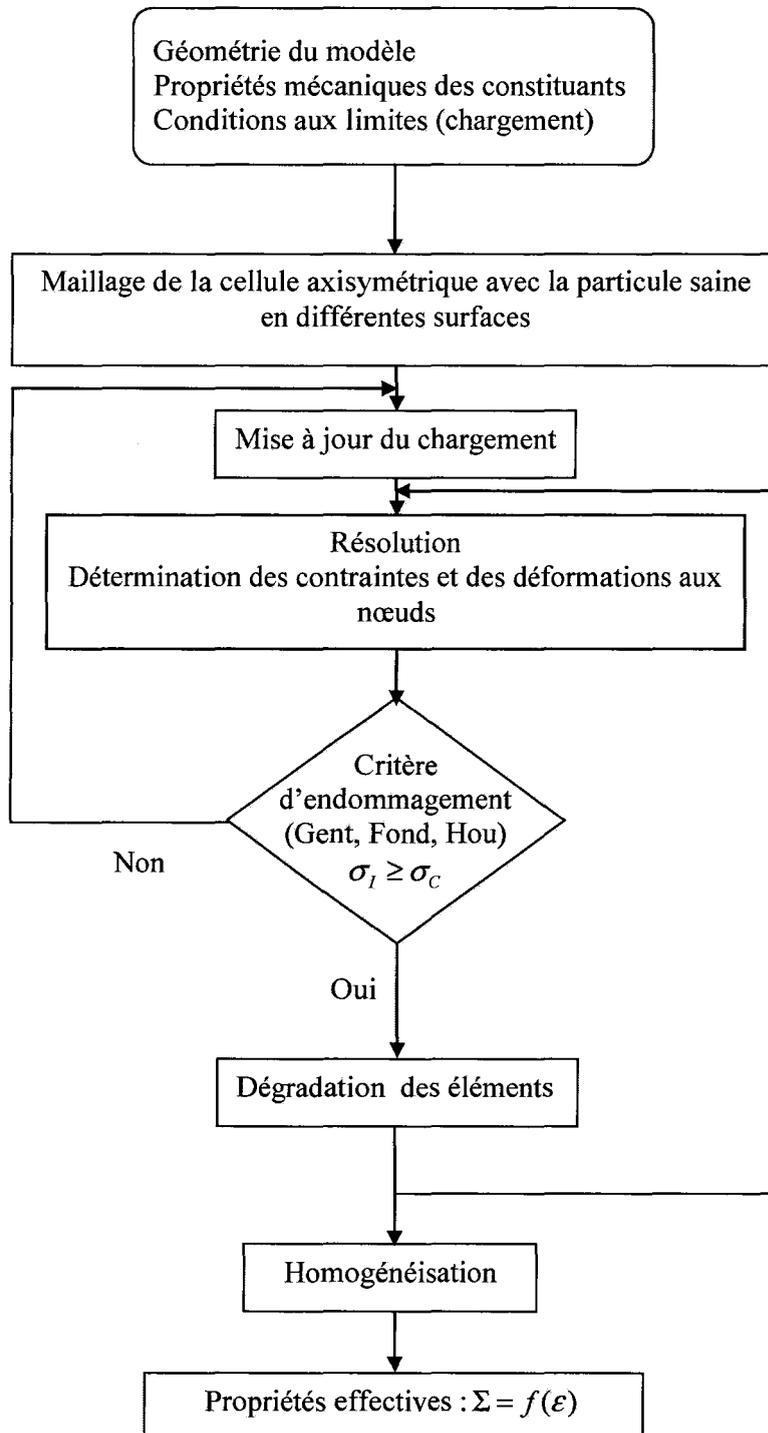


Figure 4.20 : Algorithme d'homogénéisation avec prise en compte de l'endommagement.

Nous nous limitons dans cette partie à la simulation des tests à température ambiante, température à laquelle le mécanisme de cavitation apparaît et joue un rôle important pour la transition fragile ductile du PMMA. Nous examinons le comportement macroscopique d'un RT-PMMA (30% de fraction de particules).

Afin de déterminer les paramètres de la loi viscoplastique décrivant le comportement de la matrice, on a utilisé des courbes de contraintes déformations à différentes vitesses de déformations. Ces courbes ont été déduites en utilisant le passage de la compression à la traction selon Haward et al. [6] pour éviter le caractère fragile du PMMA. Le jeu de paramètres obtenus utilisés pour les simulations est représenté dans le tableau 4.2.

E [MPa]	ν	σ_0 [MPa]	m	γ [s^{-1}]
2078	0.4	63.6589	0.443	0.1

Tableau 4.2 : Paramètres du modèle viscoplastique pour la température ambiante.

Nous avons également choisi les coefficients pour le modèle hyperélastique à partir de la littérature [27] qui sont respectivement le module de cisaillement et le module de compressibilité μ_r, d (0.333 MPa ; 2000 MPa).

A partir de ces paramètres et de l'équation définissant le critère d'apparition de cavité choisie, la contrainte critique calculée est donnée dans le tableau suivant :

Critère de Gent ($\sigma_c = 5\mu_r / 2$)	Critère de Hou & Abeyaratne ($\sigma_c = (5\mu_r)^3$)	Critère de Fond		
		$\sigma_c = 2.6 \frac{(1+\nu_m)(4\mu_m + 3k_r)}{9(1-\nu_m)} \left(\frac{2}{k_r d_0}\right)^{\frac{3}{4}} \gamma^{\frac{1}{2}} (\Gamma + \gamma)^{\frac{1}{4}}$		
0.833 MPa	4.6157 MPa	Kr=2500MPa	Kr=2000MPa	Kr=500MPa
		8.92 MPa	9.02 MPa	12.55 MPa

Tableau 4.3 : Contrainte critique calculée pour chaque critère

Pour calculer la contrainte critique du modèle de Fond le diamètre de la particule est fixé à 240nm. Par contre, pour l'énergie de rupture et l'énergie surfacique, des valeurs extraites des travaux de Schirrer et al. [38] et Fond et al. [21] ont été utilisé et sont respectivement ($\Gamma = 0.05 J.m^{-2}$, $\gamma = 0.03 J.m^{-2}$).

Enfin les simulations de test de traction sont réalisées pour trois vitesses de déformation.

4.4.2 Résultats et discussion

Nous comparons dans ce paragraphe, les prédictions du modèle avec les résultats expérimentaux pour un RT-PMMA à température ambiante et à différentes vitesses de déformation ($5 \cdot 10^{-3}$ /s, 10^{-3} /s, 10^{-4} /s). Avant cette comparaison la répartition de la contrainte hydrostatique dans la particule est donnée sur la Figure 4.21, et confirment l'uniformité de cette grandeur.

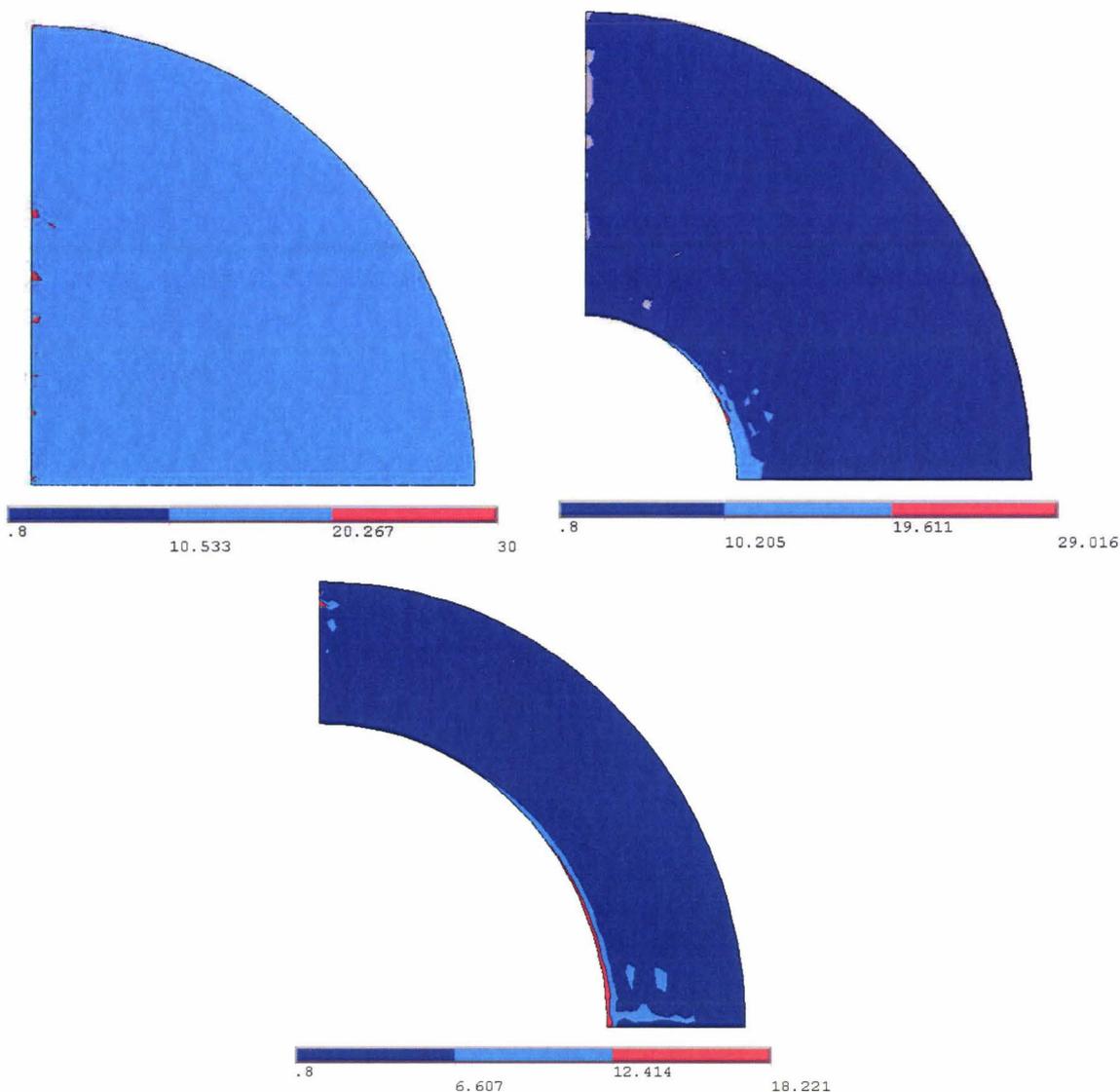
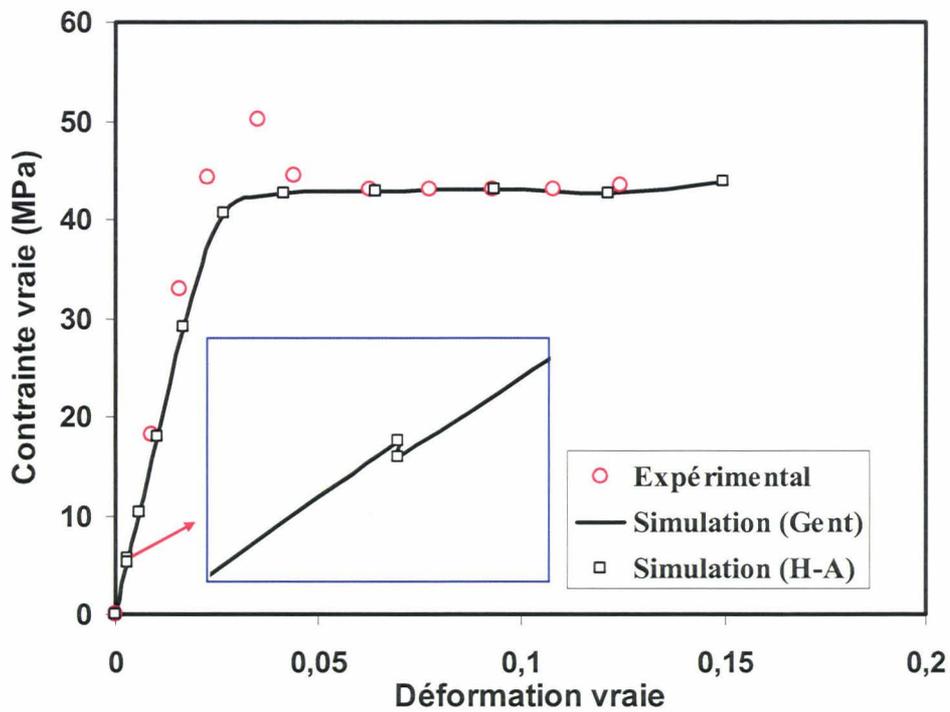


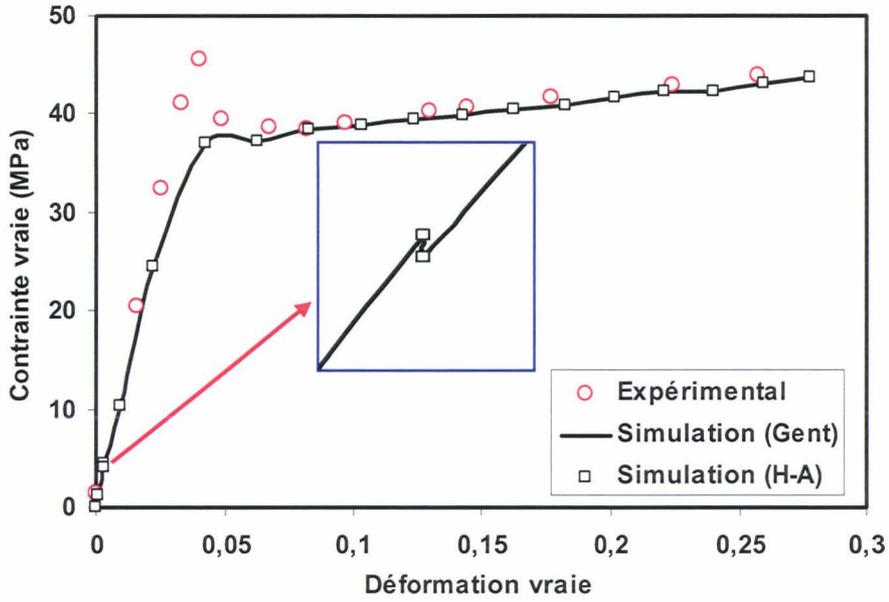
Figure 4.21 : Distribution de la contrainte hydrostatique dans l'élastomère pour une particule saine et une particule avec deux taille de vide différentes pour une vitesse de déformation de 10^{-3} /s.

Dans la confrontation présentée en Figure 4.22, nous avons utilisé le critère de Gent et Hou & Abeyaratne pour simuler l'endommagement du composite. Nous observons que les prédictions montrent que l'apparition du vide a lieu très tôt dans le domaine élastique (à une déformation globale de 0.3% environ quelque soit la vitesse de déformation). Les deux modèles conduisent au même résultat, car la particule est dans un cas de chargement purement hydrostatique, comme il a été indiqué dans la section 4.2.

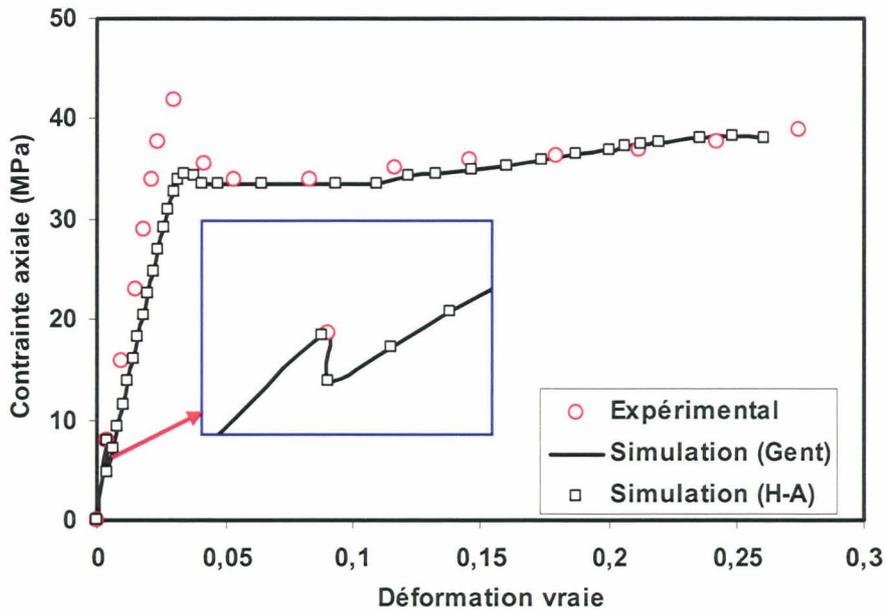
Ceci est prouvé sur la Figure 4.23 qui montre l'évolution du rapport de triaxialité dans la particule. Bien que ces deux modèles fonctionnent assez bien pour des élastomères en masse, ils sous-estiment clairement le niveau de contrainte à laquelle apparaît la cavité dans la particule comme le montre nos résultats. Ceci est vraisemblablement dû à la non prise en compte de la tension de surface dans le critère.



(a)



(b)



(c)

Figure 4.22 : Prédictions du modèle (Critère de Gent et Hou & Abeyratne) comparées aux données expérimentales [61] à température ambiante et différentes vitesses : (a) $5 \cdot 10^{-3}$ /s, (b) 10^{-3} /s, (c) 10^{-4} /s.

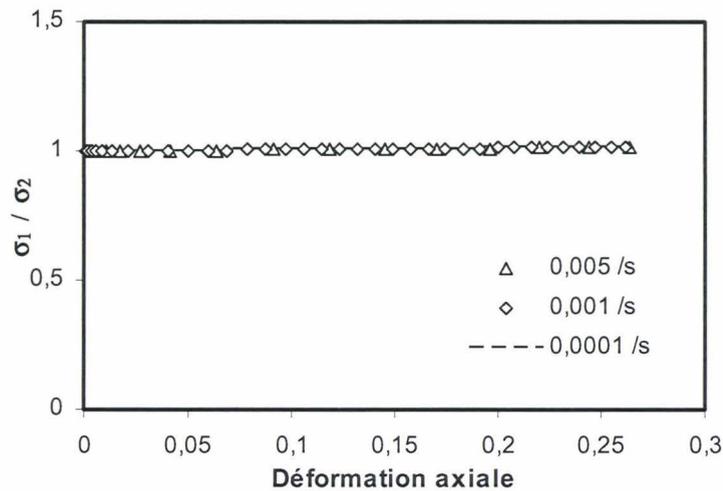
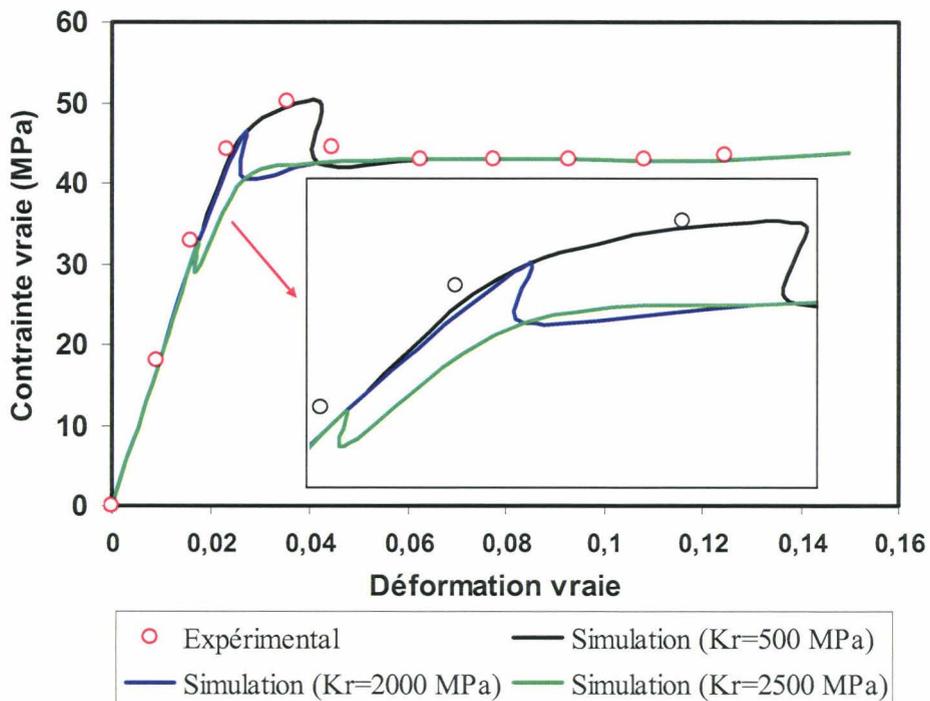


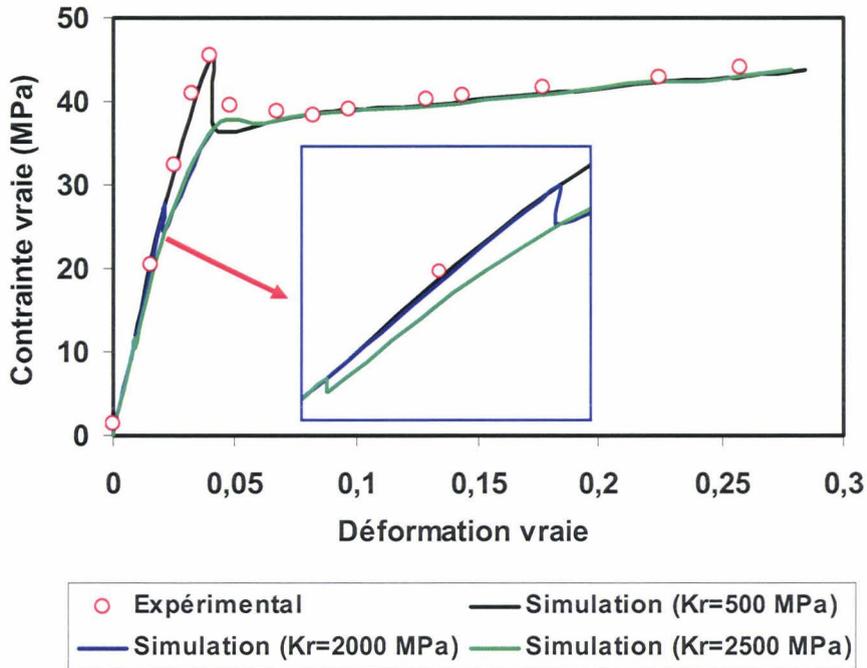
Figure 4.23 : Evolution du rapport de triaxialité σ_1 / σ_2 dans la particule en fonction de la déformation globale pour différentes vitesses de déformation.

Les mêmes résultats expérimentaux sont maintenant comparés aux simulations utilisant, cette fois ci le critère de Fond sur la Figure 4.24.

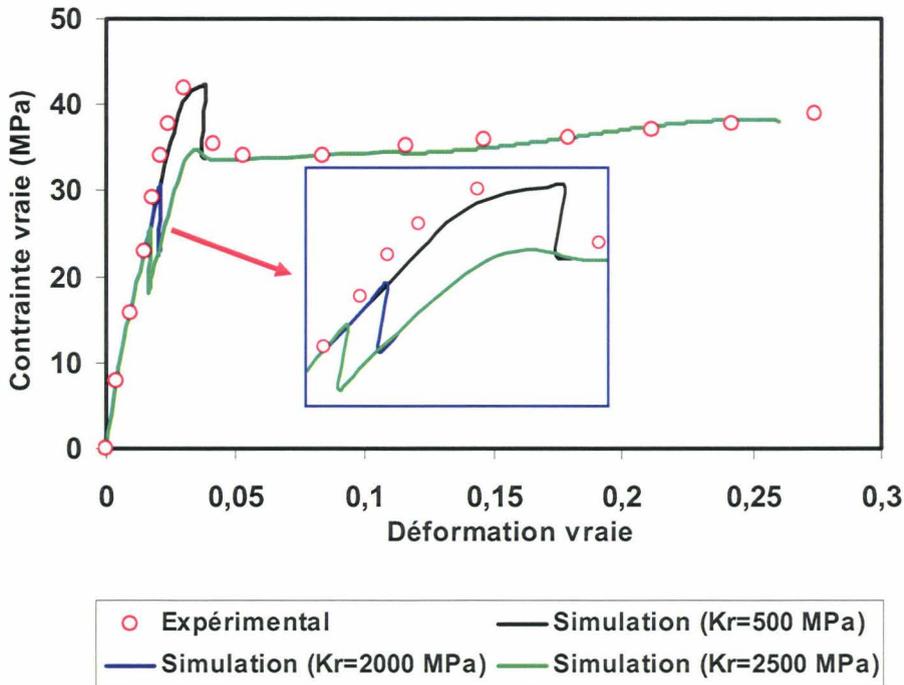
Le niveau de contrainte à laquelle apparaît la cavitation va dépendre du module de compressibilité K_r . Pour une valeur du module de 2500 MPa, la déformation critique à cavitation est de 1%. Elle passe à 2 % lorsque K_r vaut 2000 MPa.



(a)



(b)



(c)

Figure 4.24 : Réponse macroscopique d'un composite obéissant au critère de Fond pour différents modules de compressibilité comparée aux résultats expérimentaux [61] pour les vitesses de déformation de : (a) $5 \cdot 10^{-3}$ /s, (b) 10^{-3} /s, (c) 10^{-4} /s.

La valeur optimale de K_r qui donne le meilleur accord entre expérimental et simulation est 500 MPa. Dans ce cas la déformation critique est de l'ordre de 4 %. Cette déformation critique dépend aussi de la vitesse. Pour K_r égale à 500 MPa, elle est de 4.19 % à $5 \cdot 10^{-3}$ /s, 4,1 % à 10^{-3} /s, et 3.84% à 10^{-4} /s. Bien entendu, cette étude de sensibilité aurait été plus riche si nous disposions des propriétés de la particule de type core-shell. La formulation utilisée ici étant valable pour une particule de caoutchouc pure.

Sur la Figure 4.25, nous montrons l'aptitude du modèle à reproduire le comportement endommageable du composite polymère et la sensibilité à la vitesse de déformation. Un accord très satisfaisant est obtenu que ce soit pour la réponse en terme de contrainte que pour la mesure de l'endommagement (variation de volume).

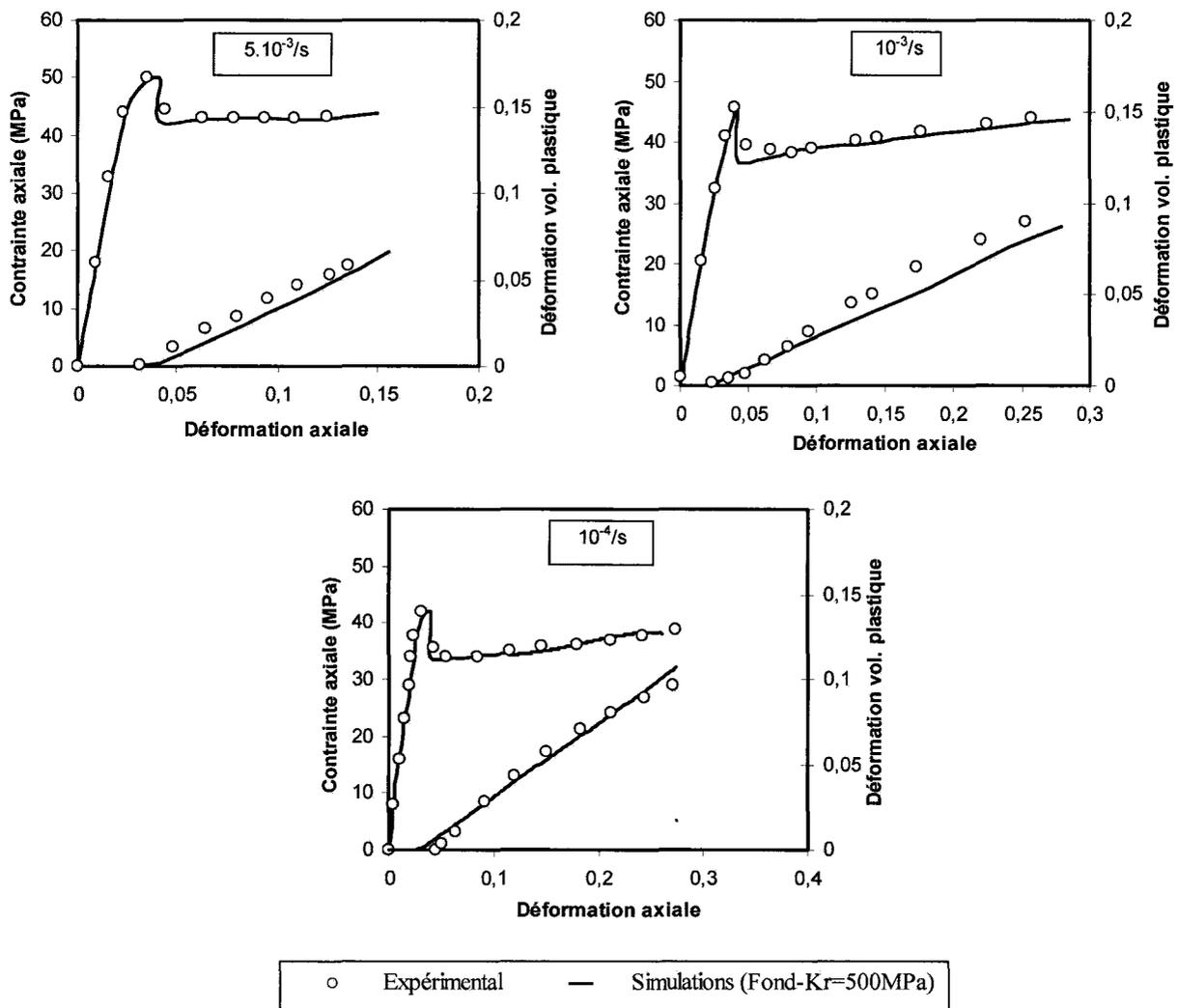


Figure 4.25 : Evolution des contraintes et des déformations volumiques plastiques en fonction de la déformation : expérimentale [61] et numérique.

4.5 Conclusion

Les analyses par éléments finis sur le RT-PMMA ont été réalisées pour la prédiction du comportement macroscopique de ce composite polymère.

Une fonction de densité d'énergie de type Néo-Hookéen a été choisie pour la description du comportement hyperélastique de la particule caoutchoutique. Le modèle parfaitement viscoplastique a été combiné avec l'écroutissage multilinéaire isotrope pour décrire la sensibilité à la vitesse de déformation de la limite élastique et de l'adoucissement post-écoulement suivie du durcissement de la matrice polymère vitreuse. Une technique d'homogénéisation a été appliquée avec succès pour la prédiction du comportement macroscopique du composite et l'influence de la fraction volumique de particule a été largement mise en évidence.

L'effet de la particule cavité (ou endommagée) sur la réponse globale a été également étudié. Un des résultats les plus importants des simulations numériques est la diminution du niveau de contrainte à l'échelle macroscopique quand la fraction volumique des vides dans la particule augmente. Pour les fractions les plus élevées des vides, il y'a une augmentation de la concentration de contrainte qui favorisent la formation des bandes de cisaillement. Les résultats que nous avons obtenus mettent en lumière l'importante influence de la contrainte hydrostatique sur la réponse globale du composite. La contrainte hydrostatique qui gouverne l'initiation de la cavitation, est fortement dépendante de la fraction volumique des vides.

La contrainte hydrostatique dans la particule d'élastomère est également influencée de manière significative par le module de compressibilité de l'élastomère. La cavitation dans la particule et la plasticité dans la matrice ont un rôle dans la redistribution des contraintes du fait de la réduction de concentration de contraintes.

Les résultats ont clairement montré que le comportement en déformation des polymères vitreux change considérablement par l'ajout de particules qui cavitent. La cavitation dans la phase caoutchoutique facilite le cisaillement plastique à la place des craquelures et, par conséquent rend le comportement global plus ductile.

La méthodologie adoptée s'est ensuite enrichie par l'introduction de l'endommagement micromécanique par cavitation. Trois critères d'endommagement ont été étudiés. Le critère de Fond semble le plus à même de prédire le comportement macroscopique du fait de la sensibilité au module de compressibilité et à la tension de surface. Nous avons insisté plus particulièrement dans la dernière partie sur l'apparition de la cavité et sa croissance car c'est le mécanisme à l'origine de la ductilité de notre matériau à température ambiante.

Cependant, pour optimiser la ductilité et le renforcement du matériau pour des chargements spécifiques, il est nécessaire d'ajuster la fraction volumique et les propriétés des particules de caoutchouc avec les caractéristiques mécaniques de la matrice polymère.

Finalement, une identification complète et exacte des paramètres de l'élastomère utilisé est nécessaire pour la prédiction du comportement du matériau endommagé, paramètres dont nous ne disposons pas et qu'il a fallu extraire de la littérature.

Conclusions et Perspectives

Conclusions et perspectives

Les propriétés mécaniques à l'échelle macroscopique de nombreux matériaux multiphasiques sont généralement gouvernées par leur microstructure, qui est caractérisée par le comportement mécanique, la géométrie, la taille et la forme des constituants. L'optimisation de ces propriétés globales peut être réalisée par l'adaptation de la microstructure. Ceci fait appel à des techniques d'homogénéisation typiquement utilisée pour le passage micro-macro à partir des relations de moyennes.

Ces approches alliées à des modèles et lois de comportement notamment dans le cas non linéaire en grandes déformations ont montré leurs potentialités.

L'objectif de ce présent travail était la prédiction du comportement macroscopique d'un matériau composite à matrice polymère amorphe et renfort caoutchoutique en considérant l'endommagement microscopique par une approche d'homogénéisation, afin de juger de son influence sur les propriétés globales. En effet la réflexion sur la prédiction du comportement des polymères solides hétérogènes doit être menée sur plusieurs fronts : théorique pour identifier les lois de comportement micromécanique de chaque phase, expérimental pour identifier les paramètres de ces lois et numérique pour prendre en compte l'un et l'autre dans les simulations.

Une recherche bibliographique a permis de faire un bilan d'une part des modèles capables de reproduire le comportement fortement non linéaire des polymères, et d'autre part des méthodes d'homogénéisation les plus adaptées à notre problème. Il existe effectivement très peu d'études, s'attachant à l'homogénéisation du comportement élastoviscoplastique en grandes déformations.

Parmi les lois de comportement, les lois phénoménologiques qui découlent directement d'une observation expérimentale du comportement, et semblent sur ce point davantage répondre au besoins actuels d'identification de lois. Elles sont pour la plus part plus simples à implémenter dans un code de calcul et permettent de reproduire le comportement à l'aide d'un nombre restreint de paramètres. Le modèle de Perzyna a retenu notre attention pour décrire le comportement de la matrice vitreuse. Pour prendre en compte les grandes déformations des polymères et décrire le comportement des particules d'élastomère, un modèle hyperélastique a été choisi.

Les quelques études d'homogénéisations numériques disponibles utilisent l'homogénéisation périodique du comportement de ce type de matériaux mais sans la prise en compte de l'endommagement.

Cependant, il est apparu lors d'une sollicitation en traction des polymères renforcés choc que l'état de contrainte interne peut conduire à la mise en compétition des phénomènes de déclenchement de plasticité et des amorces d'endommagement telle la cavitation de la particule. De ce fait, il devient nécessaire de mettre en place un modèle micromécanique pour décrire cette séquence d'évènement et le développement de ces mécanismes locaux (microscopiques) au sein du composite RT-PMMA.

Ainsi, nous avons dans un premier temps considéré le composite à matrice de polyméthylméthacrylate et de renfort élastomérique sans cavitation pour valider la modélisation proposée.

La méthodologie utilisée dans ce travail a consisté à étudier en premier lieu, le comportement du composite dépendant de la température et de la vitesse de déformation sans prise en compte de l'endommagement. Pour éviter tout type d'endommagement (craquelures dans la matrice et cavitation dans la particule), l'essai de compression a été retenu.

La formulation viscoplastique couplée à l'écroutissage multilinéaire isotrope est capable de reproduire le comportement typique des polymères solides qui montre un adoucissement intrinsèque suivi d'un durcissement en grandes déformations.

L'aptitude du modèle hyperélastoviscoplastique à appréhender l'influence de certains paramètres à savoir la fraction volumique des particules, la température et la vitesse de déformation a été mise en évidence en comparant les résultats de simulations numériques aux données expérimentales. La procédure d'homogénéisation numérique a été appliquée avec succès. Les résultats numériques obtenus ont montré une légère divergence par rapport aux données expérimentales à partir de 25% de déformation, ceci peut être du au choix de la densité Néo-Hookeen pour la partie hyper élastique du modèle. La concordance des résultats numériques et expérimentaux reste très satisfaisante.

Nous nous sommes ensuite intéressés au comportement du composite sous une sollicitation de traction afin d'étudier le composite endommagé. Nous avons dans une première partie utilisés le modèle constitutif proposé et un VER contenant un vide sphérique à son centre pour simuler la cavitation et analyser son influence sur le comportement macroscopique du composite polymère.

Dans le but d'étudier la compétition de la cavitation et du cisaillement plastique, nous avons mené une analyse du comportement du VER endommagé pour différentes tailles de vides. Cette analyse a confirmé les résultats de la littérature en ce qui concerne la cohabitation des deux phénomènes. La cavitation favorise les bandes de cisaillement, qui à leur tour facilite sa croissance.

Le modèle ainsi que la méthode d'homogénéisation ont permis de mettre en évidence l'influence de la taille et la fraction volumique des vides sur le comportement macroscopique.

Par la suite nous avons étudié l'endommagement à partir d'un critère micromécanique que nous avons intégré à la formulation viscoplastique proposée.

Cette approche nous a permis d'analyser l'apparition et la croissance de cavité à partir de trois différents modèles. Les différents résultats obtenus reproduisent les effets de la cavitation, à savoir un effet adoucissant sur la réponse globale.

Le lieu d'apparition de cavité est différent selon qu'on utilise le modèle de Gent ou Fond, d'où l'insuffisance des modèles destinés pour les élastomères en masse dans le cas des particules noyées dans une matrice viscoplastique.

Le modèle de Fond semble donner des résultats intéressants que ce soit pour l'apparition ou la croissance. La cavitation a lieu plus tôt pour les plus petites vitesses.

L'approche numérique novatrice utilisée dans ce travail a prouvé son efficacité, et sa pertinence pour la prédiction du comportement macroscopique avec des mécanismes microstructuraux assez complexes.

Au terme de ce travail de thèse, plusieurs points restent à développer, aussi bien sur l'aspect de la méthode d'homogénéisation que de celui des modèles micromécaniques. Concernant le passage de l'échelle microscopique à l'échelle macroscopique, on s'est restreint jusqu'à présent à l'homogénéisation périodique avec une cellule élémentaire régulière. Il serait peut être intéressant d'analyser le comportement macroscopique avec une microstructure aléatoire.

Du côté des modèles micromécanique, le comportement viscoplastique de la matrice peut être décrit en utilisant un modèle viscoplastique décrivant l'écrouissage sans passer par un couplage numérique. Il serait très intéressant aussi de choisir d'autres densités d'énergies pour l'élastomère. Un des défis les plus important pour ce type de modélisation est une caractérisation complète du comportement de la particule core-shell, à savoir le comportement

du cœur d'élastomère et de l'écorce de PMMA. Dans ce cas là l'étude se ramène à considérer un composite à trois phases.

Sur la dernière partie de ce travail l'analyse de l'apparition de cavitation avec le modèle de Fond nécessite une étude des effets de taille de la particule sur le comportement macroscopique d'une part, et sur le lieu de germination du vide d'autre part.

Références Bibliographiques

Références bibliographiques

- [1] G'sell C. Introduction à la mécanique des polymères, Edition G'sell et haudin, 1995.
- [2] Arruda E. M., Boyce M. C., Jayachandran R. Effects of strain rate, temperature and thermomechanical coupling on the finite strain deformation of glassy polymers. *Mech. Mater.*, 1995, 19, 193-212.
- [3] Mears D. R., Pae K. D., Sauer J. A. Effects of hydrostatic pressure on the mechanical behaviour of polyethylene and polypropylene. *J. Appl. Phys.*, 1969, 40, 4229-4237.
- [4] Bowden P. B., Jukes J. A. The plastic flow of isotropic polymers. *J. Mat. Sci.*, 1972, 7, 52-63.
- [5] Bisilliat M. L. Comportement mécanique d'une polycarbonate à grande vitesse de sollicitation –Etude expérimentale et simulation. Thèse Ecole Nationale Supérieure de Paris, 1997.
- [6] Haward R. N., Murphy B. M., White E. F. T. Relationship between Compressive and tensile behaviour in glassy thermoplastics. *J. Polym. Sci.*, 1971, 9, 801-814.
- [7] Bauwens-Crowet C. The compression yield behaviour of polymethylmethacrylate over a wide range of temperature and strain-rates. *J. Mat. Sci.*, 1973, 8, 968-979.
- [8] Quinson R., Perez J., Rink M., Pavan A., Yield criteria for amorphous glassy polymers. *J. Mat. Sci.*, 1997, 32, 1371-1379.
- [9] Van Melick H. G. H., Govaert L. E., Meijer H. E. H. On the origin of strain hardening in glassy polymers. *Polym.*, 2003, 44, 2493-2502.
- [10] Eyring H. Viscosity, plasticity and diffusion as examples of absolute reaction rates. *J. Chem. Phys.* 1936, 4, 283-290.
- [11] Robertson R. E. The equation for the plasticity of glassy polymers. *J. Chem. Phys.* 1966, 44, 3950-3956.
- [12] Argon A. S. A theory for the low temperature plastic deformation of glassy polymers. *Phil. Mag.*, 1973, 28, 839-865.
- [13] G'sell C., Jonas J. J. Yield and transient effects during the plastic deformation of solid polymers. *J. Mat. Sci.*, 1981, 16, 1956-1974.
- [14] Boyce M. C., Parks D. M. , Argon A. S. Large inelastic deformation of glassy polymers. Part I : rate dependent constitutive model. *Mech. Mater.* , 1988,7, 15-33.
- [15] Arruda E. M., Boyce M. C., A three dimensional constitutive model for the large stretch behaviour of rubber elastic materials. *J. Mech. Phys. Solids.* 1993, 14, 389-412.

- [16] Bucknall C. B., Toughened plastics. Applied Science publishers London, 1977, 136.
- [17] Van Melick H. G. H., Govaert L. E., Meijer H. E. H. Localisation phenomena in glassy polymers: influence of thermal and mechanical history. *Polym.* 2003,44,3579-3591.
- [18] Li J. C. M. Shear yielding and shear bands. In : Plastic deformation of amorphous and semi-cristalline materials,. Edited by Escaig B., G'ssell C. France: les éditions de physique, 1982, 359.
- [19] Corté L., Beaume F., Leibler L. Crystalline organisation and toughening: Example of polyamide-12. *Polym.*, 2005, 46, 2748-2757.
- [20] Scodellaro L. Endommagement par cavitation du polypropylène renforcé au choc par des particules d'élastomère. Thèse de l'université Louis Pasteur, Strasbourg I. 2001.
- [21] Fond C., Lobbrecht A., Shirrer R., Polymers toughened with rubber microspheres, an analytical solution for stresses and strains in the rubber particles at equilibrium and rupture. *Int. J. Fract.* 1996, 77, 141-159.
- [22] Socrate S., Boyce M. C. Micromechanics of toughened polycarbonate. *J. Mech. Phys. Solids.*, 2000, 48, 233-273.
- [23] Lovell P. A., Mc Donald J., Saunders D. E. J., Sherratt M. N., Young R. J. Mechanical properties of rubber-toughened polymethyl methacrylate. *Plastics, rubber and composites processing and applications.*, 1991, 16, 37-44.
- [24] Abramoff B., Covino J. Transmittance and mechanical properties of PMMA-Fumed Silica composites. *J. Appl. Polym. Sci.* 1992, 46, 1785-1791.
- [25] Zairi F. , Nait Abdelaziz M., Woznica K., Gloaguen J. M., Constitutive equations for the viscoplastic-damage behaviour of a rubber-modified polymer, *European journal of mechanics A/ Solids*, 2005, 24, 169-182.
- [26] Ward I. M., Hadley D. W. Mechanical properties of solid polymers. Wiley editor, 1993.
- [27] Fond C. Endommagement des polymers chocs: modélisation micromécaniques et comportement à la rupture. Thèse d'habilitation à diriger des recherches de l'université Louis Pasteur de Strasbourg. 2000.
- [28] Pearson R. A., Yee A. F. The influence of particle size distribution on the toughening mechanisms in rubber modified epoxy. *J. Mat. Sci.* 1991, 26, 3828-3844.
- [29] Magalhaes A. M. L., Borgreeve R. J. M. Contribution of the crazing process of the toughness of rubber modified polystyrene. *Macromolecules.* 1995, 28, 5841-5851.
- [30] Van der Sanden M. C. M., Kok J. M. M., Meijer H. E.H. Deformation and toughness of polymeric systems: part 7. Influence of dispersed rubbery phase. *Polym.* 1994, 35, 2995-3004.

- [31] Kayano Y., Keskkula H., Paul D. R., Evaluation of the fracture behaviour of Nylon 6/SEBS-g-MA blends. *Polym.*, 1997, 38, 1885-1902.
- [32] Bucknall C. B., Karpodinis A., Zhang X. C., A model for particle cavitation in rubber-toughened plastics. *J. Mat. Sci.*, 1994, 29, 3377-3383.
- [33] Smit R. J. M., Brekelmans W. A. M. , Meijer H. E. H., Prediction of the large strain mechanical response of heterogeneous polymer systems: local and global deformation behaviour of a representative volume element of voided polycarbonate, *J. Mech. Phys. solids*, 1999, 47, 201-221.
- [34] Butler M. F., Donald A. M., Ryan A. J., Time resolved simultaneous small- and wide angle X ray scattering during polyethylene deformation- II. Cold drawing of linear polyethylene. *Plym.*, 39, 39-52.
- [35] Gent A. N., Lindley P. B., Internal rupture of bonded rubber cylinders in tension. *Proc. Roy. Soc. Lond.* 1959, 249, 195-205.
- [36] Gent A. N., Wang C., Fracture mechanics and cavitation in rubber like solids. *J. Mat. Sci.*, 1991, 26, 3392-3395.
- [37] Bagheri R., Pearson R. A., Role of particle cavitation in rubber-toughened epoxies: 1. Microvoid toughening. *Polym.*, 1996, 37, 4529-4538.
- [38] Schirrer R., Fond C., Lobbrecht A. Volume change and light scattering during mechanical damage in polymethylmethacrylate toughened with core-shell rubber particles. *J. Mat. Sci.* 1996, 31, 6409-6422.
- [39] Lazzeri A., Bucknall C. B. Applications of a dilatational yielding model to rubber toughened polymers. *Polym.* 1995, 36, 2895-2902.
- [40] Bucknall C. B., Ayre D. S., Dijkstra D. J. Detection of rubber particle cavitation in toughened plastics using thermal contraction tests. *Polym.* 2000, 41, 5937-5947.
- [41] Bucknall C. B., Rizzieri R., Moore D. R. Detection of incipient rubber particle cavitation in toughened PMMA using dynamic mechanical tests. *Polym.* 2000, 41, 4149-4156.
- [42] Van der Wal A., Verheul A. J. J., Gaymans R. J. Polypropylene-rubber blends: 4. the effect of the rubber particle size on the fracture behaviour at low and high test speed. *Polym.* 1999, 40, 6057-6065.
- [43] Yee A. F., Dongming L., Xiaowei L. The importance of constraint relief caused by rubber cavitation in the toughening of epoxy. *J. Mat. Sci.* 1993, 28, 6392-6398.
- [44] Dijkstra K., Van der Wal A., Gaymans R. J. Nylon-6-rubber blends. Part IV. Cavitation and yield in Nylon-rubber blends. *J. Mat. Sci.* 1994, 29, 3489-3496.

- [45] Borgreeve R. J., Gaymans R. J., Schuijjer J., Impact behaviour of nylon-rubber blends: 5: the influence of the mechanical properties of the elastomer. *Polym.* 1989, 30, 71-77.
- [46] Chen T. K., Jan Y. H., Fracture mechanism of toughened epoxy resin with bimodal rubber particle size distribution. *J. Mat. Sci.* 1992, 27, 111-121.
- [47] Wu S. Phase structure and adhesion in polymer blends: a criterion for rubber toughening. *Polym.* 1985, 26, 1855-1863.
- [48] Borgreeve R. J. M., Gaymans R. J., Schuijjer J., Housz J. F. I., Brittle-tough transition in nylon-rubber blends: effect of rubber concentration and particle size. *Polym.* 1987, 28, 1489-1496.
- [49] Wu S., A generalised criterion for rubber toughening: the critical matrix ligament thickness. *J. Appl. Polym. Sci.* 1988, 35, 549-561.
- [50] Steenbrink A. C., Litvinov V. M., Gaymans R. J., Toughening of SAN with core-shell rubber particles: particle size effect or cross-link density. *Polym.* 1998, 39, 4817-4825.
- [51] Dompas D., Groenincks G., Toughening behaviour of rubber-modified thermoplastic polymer involving very small rubber particles: 1. A criterion for internal rubber cavitation. *Polym.* 1994, 35, 4743-4749.
- [52] Dompas D., Groenincks G., Isogawa M., Hasegawa T., Kadokura M., Toughening behaviour of rubber-modified thermoplastic polymer involving very small rubber particles: 2. Rubber cavitation behaviour in polyvinyl chloride/ methylmethacrylate-butadiene-styrene graft copolymer blends. *Polym.* 1994, 35, 4750-4759.
- [53] Lazzeri A., Bucknall C. B., Dilatational bands in rubber-toughened polymers. *J. Mat. Sci.* 1993, 28, 6799-6808.
- [54] Wei J., Haojun L., Bingzheng J., Interparticle distance-temperature-strain rate equivalence for the brittle tough transition in polymer blends. *Polym.* 1998, 39, 4437-4442.
- [55] Bartczak Z., Argon A. S., Cohen R. E., Weinberg M., Toughness mechanism in semi-crystalline polymer blends: II. High-density polyethylene toughened with calcium carbonate filler particles. *Polym.* 1999, 40, 2347-2365.
- [56] Bagheri R., Pearson R. A., role of particle cavitation in rubber-toughened epoxies: II. Interparticle distance. *Polym.* 2000, 41, 269-276.
- [57] Loyens W., Groenincks G., Ultimate mechanical properties of rubber toughened semi-crystalline PET at room temperature. *Polym.* 2002, 43, 5679-5691.
- [58] Van der Sanden M. C. M., Ultimate toughness of amorphous polymers. These de l'université de technologie de Eindhoven. Hollande. 1993.

- [59] Dompas D., Groenincks G., Isogawa M., Hasegawa T., Kadokura M., Cavitation versus debonding during deformation of rubber-modified poly (vinyl chloride). *Polym.* 1995, 36, 437-441.
- [60] Lu Fan, Cantwell W. J., Kausch H. H., The role of cavitation and debonding in the toughening of core-shell rubber modified epoxy systems. *J. Mat.Sci.* 1997, 32, 3055-3059.
- [61] Zairi F., Contribution à l'étude de la déformation et de l'endommagement des polymers vitreux homogènes et à renforts caoutchoutiques. Thèse de l'université des sciences et technologies de Lille. 2004.
- [62] Roetling J. A., Yield stress behaviour of polymethylmethacrylate, *Polym.*, 1965, 6, 311-317.
- [63] Bauwens J. C., Relation between the compression yield stress of PVC and the loss peak in the β relaxation range. *J. Polym. Sci.* 1971, 33, 123-133.
- [64] Haward R. N., Thackray G., The use of a mathematical model to describe isothermal stress-strain curves in glassy thermoplastics. *Proc. Roy. Soc. Lond.* 1968, 302, 453-472.
- [65] Boyce M. C., Arruda E. M., An experimental and analytical investigation of the large strain compressive and tensile response of glassy polymers. *Polym. Eng. Sci.* 1990, 30, 1288-1298.
- [66] Wu P. D., Van der Giessen E., On improved network models for rubber elasticity and their applications to orientation hardening in glassy polymers. *J. Mech. Phys. Solids.* 1993, 41, 427-456.
- [67] Hasan O. A., Boyce M. C., Energy storage during inelastic deformation of glassy polymers. *Polym.* 1993, 34, 5085-5092.
- [68] Wang M. C., Guth E., Statistical theory of networks of non-gaussian flexible chains. *J. Chem. Phys.* 1952, 20, 1144-1157.
- [69] Wu P. D., Van der Giessen E. Computational aspects of localized deformations in amorphous glassy polymers. *Euro. J. Mech., A/Solids.* 1996, 15, 799-823.
- [70] Tervoort T. A., Klompen E. T. J., Govaert L. E., A multi-mode approach to finite, three-dimensional, nonlinear viscoelastic behaviour of polymer glasses. *J. Rheology.* 1996, 40, 779-797.
- [71] Timmermans P. H. M., Evaluation of a constitutive model for solid polymeric materials: model selection and parameter quantification. Thèse de l'université de technologie de Eindhoven, Hollande. 1997.

- [72] Govaert L. E., Timmermans P. H. M., Brekelmans W. A. M., The influence of intrinsic strain softening on strain localisation in polycarbonate: modelling and experimental validation. *J. Eng. Mat. Tech.* 2000, 122, 177-185.
- [73] Perzyna P., Fundamental problems in viscoplasticity. *Advances in applied mechanics.* Academic press, new york. 1966, 9, 243-377. Academic press, new york.
- [74] Woznica K., Dynamique des structures élastoviscoplastique. Thèse d'habilitation à diriger des recherches, université des sciences et technologies de Lille. 1997.
- [75] Perzyna P., Pecherski R., Modified theory of viscoplasticity. Physical foundations and identification of material functions for advanced strains. *Arch. Mech.* 1983, 35, 423-436.
- [76] Peric D., Owen D. R. J., Honnor M. E. , A model for finite strain elasto-plasticity based on logarithmic strains: Computational issues. *Computer methods in applied mechanics and engineering.* 1992, 94, 35-61.
- [77] Van Der Sluis O., Schreurs P. J., Brekelmans W. A.M., Meijer H. E. H., Overall behaviour of heterogeneous elastoviscoplastic materials: effect of microstructural modelling. *Mechanics of materials.* 2000, 32, 449-462.
- [78] Van Der Sluis O., Schreurs P. J., Meijer H. E. H., Homogenisation of structured elastoviscoplastic solids at finite strains. *Mech. Mat.* 2001, 33, 499-522.
- [79] Corigliano A., Ricci M., Rate dependant interface models: formulation and numerical applications. *Int. J. solids. Structures.* 2001, 38, 547-576.
- [80] Bodner S. R., Partom Y., Constitutive equations for elastic-viscoplastic strain hardening materials. *J. Appl. Mech.* 1975, 42, 385-389.
- [81] Chan K. S., Bodner S. R., Lindholm U.S., Phenomenological modelling of hardening and thermal recovery in metals. *J. Eng. Mat. Tech.* 1988, 110, 1-8.
- [82] Frank G. J., Brockman R. A., A viscoelastic-viscoplastic constitutive model for glassy polymers. *Int. J. Solids Struct.* 2001, 38, 5149-5164.
- [83] Goldberg R. K., Roberts G. D., Gilat A., Incorporation of mean stress effects into the micromechanical analysis of the high strain rate response of polymer matrix composites. *Comp. Part B.* 2003, 34, 151-165.
- [84] Zairi F., Woznica K., Nait-Abdelaziz M., Phenomenological nonlinear modelling of glassy polymers. *C. R. Mecanique.* 2005, 333, 359-364.
- [85] Chaboche J. L., Viscoplastic constitutive equations for the description of cyclic and anisotropic behavior of metals. 17th Polish Conf. On Mechanics of solids, bulletin de l'académie des sciences polonaise. 1977, 25, 33-42.

- [86] Lemaitre J., Chaboche J. L., *Mécanique des matériaux solides*. Dunod. 1988.
- [87] Chaboche J. L., Thermodynamic formulation of constitutive equations and application to the viscoplasticity and viscoelasticity of metals and polymers. *Int. J. Solids struct.* 1997, 34, 2239-2254.
- [88] Kammerer C., Neme A., Plane behaviour at high strain rates of a quasi-unidirectional E-glass/polyster composite: application to ballistic impacts, *Euro. J. Mech. A/Solids*. 1998, 17, 461-477.
- [89] Saleeb A. F., Wilt T. E., Alzoubi N. R., Gendy A. S., An anisotropic viscoelastoplastic model for composites-sensitivity analysis and parameter estimation. *Comp. Part B*. 2003, 34, 21-39.
- [90] Bornert M., Bretheau T., Gilormini P., *Homogénéisation en mécanique des matériaux 1, matériaux aléatoires et milieux périodiques*. Paris : hermès science publications. 2001.
- [91] Hill R., Elastic properties of reinforced solids: some theoretical principles. *J. Mech. Phys. Solids*. 1963, 11, 357-372.
- [92] Eshelby J. D., The determination of the elastic field of an ellipsoidal inclusion, and related problem. *Proc. Roy. Soc. Lond.*, 1957, A241, 376-396.
- [93] Hashin Z., The elastic moduli of heterogeneous materials. *J. Appl. Mech.* 1962, 39, 143-150.
- [94] Kröner E., Bounds for effective moduli of disordered materials. *J. Mec. Phys. Sol.* 1977, 25, 137-155.
- [95] Hashin Z., Shtrikman S., A variational approach to the theory of the elastic behaviour of multiphase materials. *J. Mech. Phys. Solids*. 1963, 11, 127-140.
- [96] Hervé E., Stoltz C., Zaoui A., A propos de l'assemblage des sphères composites de Hashin. *C. R. Acad. Sci.* 1993, 313, 857-862.
- [97] Hill R., A self-consistent mechanics of composite materials. *J. Mech. Phys. Solids*. 1965, 13, 213-222.
- [98] Christensen R. M., Lo K. H., Solutions for effective shear properties in three phase sphere and cylinder models. *J. Mech. Phys. Solids*. 1979, 27, 315-330.
- [99] Hill R., Continuum micro-mechanics of elastoplastic polycrystals. *J. Mech. Phys. Solids*. 1965, 13, 89-101.
- [100] Budiansky B., On the elastic moduli of some heterogeneous materials. *J. Mech. Phys. Solids*. 1965, 13, 223-227.
- [101] Biwa S., Ito N., Ohno N., Elastic properties of rubber particles in toughened PMMA: ultrasonic and micromechanical evaluation. *Mech. Mat.* 2001, 33, 717-728.

- [102] Alberola N. D., Merle G., Benzarti K., Unidirectional fibre-reinforced polymers: analytical morphology approach and mechanical modelling based on the percolation concept. *Polym.* 1999, 40, 315-328.
- [103] Benabou L., Etude analytique et numérique de l'endommagement interfaciale de composites Al /SiCp. Thèse de l'université des sciences et technologies de Lille. 2002.
- [104] Bornert M., Bretheau T., Gilormini P., Homogénéisation en mécanique des matériaux 2, Comportement non linéaires et problèmes ouverts. Paris : hermès science publications. 2001.
- [105] Weng G. J., Self-consistent determination of time dependent behaviour of metals. *J. Appl. Mech.* 1981, 48, 41-46.
- [106] Masson R., Zaoui A., Self-consistent estimates for the rate dependent elastoplastic behaviour of polycrystalline materials. *J. Mech. Phys. Solids.* 1999, 47, 1543-1568.
- [107] Brenner R., Castelneau O., Gilormini P., A modified affine theory for the overall properties of nonlinear composites. *C. R. Acad. Sci. (serie II b).* 2001, 329, 649-654.
- [108] Pouya A., Zaoui A., Linéarisation et homogénéisation en viscoélasticité. *C. R. Acad. Sci. (serie II b).* 1999, 326, 365-370.
- [109] Ponte Castaneda P., Exact second-order estimates for the effective mechanical properties of nonlinear composite materials. *J. Mech. Phys. Solids.* 1996, 44, 827-862.
- [110] Tandon G. P., Weng G. J., A theory of particle reinforced plasticity. *J. Appl. Mech.* 1988, 55, 126-135.
- [111] Dvorak G., Bahei-el-din Y. A., Plasticity analysis of fibrous composites. *J. Appl. Mech.* 1982, 49, 327-335.
- [112] Paley M., Aboudi J., Micromechanical analysis of composites by the generalised cell model. *Mech. Mat.* 1992, 14, 127-139.
- [113] Nemat-Nasser S., Iwakuma T., Hejazi M., On composites with periodic structure. *Mech. Mat.* 1982, 1, 239-267.
- [114] Christman T., Needleman A., Suresh S., An experimental and numerical study of deformation in metal-ceramic composites. *Acta Metall. Mat.* 1989, 37, 3029-3050.
- [115] Tvergaard V., Analysis of tensile properties for a whisker- reinforced metal matrix composite. *Acta Metall. Mat.* 1990, 38, 185-194.
- [116] Moulinec H., Suquet P., A numerical method for computing the overall response of nonlinear composites with complex microstructure. *Comput. Methods Appl. Mech. Engrg.* 1998, 157, 69-94.
- [117] Hashin Z., Analysis of composite materials- asurvey. *J. Appl. Mech.* 1983, 50, 481-505.

- [118] Huet C. , Application of variational concepts to size effects in elastic heterogeneous bodies. *J. Mech. Phys. Solids*. 1990, 38, 813-841.
- [119] Terada K., Hori M., Kyoya T., Kikuchi N., Simulation of the multi-scale convergence in computational homogenisation approaches. *Inter. J. Solids Struct.* 2000, 37, 2285-2311.
- [120] Kouznetsova Gennadyevna V., Computational homogenization multi-scale analysis of multi-phase materials. Thèse de l'université de technologie de Eindhoven, Hollande. 2002.
- [121] Michel J. C., Moulinec H., Suquet P., Effectives properties of composite materials with periodic microstructure: a computational approach. *Comput. Methods Appl. Mech. Engng.* 1999, 172, 109-143.
- [122] Huet C., Coupled size and boundary-condition effects in viscoelastic heterogeneous and composite bodies. *Mech. materials*. 1999, 31, 787-829.
- [123] Pecullan S., Gibiansky L. V., Torquato S., Scale effects on the elastic behaviour of periodic and hierarchical two dimensional composites. *J. Mech. Phys. Solids*. 1999, 47, 1509-1542.
- [124] Kanit T., Forest S., Mounoury V., Jeulin D., Determination of the size of the representative volume element for random composites: statistical and numerical approach. *Inter. J. Solids Struct.* 2003, 40, 3647-3679.
- [125] Ghosh S., Lee K., Moorthy S., Two scale analysis of heterogeneous elastic-plastic materials with asymptotic homogenisation and voronoi cell finite element model. *Comput. Methods appl. Mech. Engrg.* 1996, 132, 63-116.
- [126] Nemat-Nasser S., Averaging theorems in finite deformation plasticity. *Mechanics of materials*. 1999, 31, 493-523.
- [127] Hill R., On macroscopic effects of heterogeneity in elastoplastic media at finite strain. *Math. Proc. Camb. Phil. Soc.* 1984, 95, 481-494.
- [128] Nemat-Nasser S., On finite deformation elasto-plasticity. *Int. J. Solids Struct.* 1982, 18, 857-872.
- [129] Simo J. C., A framework for finite strain elastoplasticity based on maximum plastic dissipation and the multiplicative decomposition. Part I: Continuum formulation. *Computer methods in applied mechanics and engineering*. 1988, 66, 199-219.
- [130] Heuillet P., Dugautier L., Modélisation du comportement hyperélastique des élastomères compacts. In : Génie mécanique des caoutchoucs et des élastomères thermoplastiques. Edité par G'sell C. et Coupard A. 1997, 67-103.

- [131] Perzyna P., On constitutive modelling of dissipative solids for plastic flow, instability and fracture. In: A. Sawczuk (Eds), plasticity today-modelling, methods and applications. 1985, 657-679.
- [132] G'sell C., Mechanical testing techniques of the plastic behaviour of amorphous and semi crystalline materials. In: Plastic deformation of amorphous and semi-crystalline materials. Édition de physique. France. 1982, 13-25.
- [133] Richeton J., Ahzi S., Vecchio K. S., Jiang F. C., Adharapurapu R. R., Influence of temperature and strain rate on the mechanical behaviour of three amorphous polymers: Characterization and modeling of the compressive yield stress. *Inter. J. Solids Struct.* 2005,
- [134] Benabou L., Benseddiq N., Nait-abdelaziz M., Comparative analysis of damage at interfaces of composites. *Composites: part B.* 2002, 33, 215-224.
- [135] Steenbrink A. C., Van Der Giessen E., On cavitation, post-cavitation and yeild in amorphous polymer-rubber blends. *Journal of the mechanics and phisics of solids.* 1999, 47, 843-876.
- [136] Tvergaard V., On localization in ductile materials containing spherical voids. *Int. J. Fract.* 1982, 18, 237-252.
- [137] Plummer C. J. G., Béguelin Ph., Kausch H. H., On the influence of particle morphology on microdeformation in rubber modified polymethylmethacrylate. *Polym.* 1996, 37, 1-7.
- [138] Géhant S., Fond C., Schirrer R., Criteria for cavitation of rubber particles: influence of plastic yielding in the matrix. *Int. J. Fract.* 2003, 122, 161-175.
- [139] Ball J. M., Discountinuous equilibrium solutions and cavitations in nonlinear elasticity. *Proc. Roy. Soc. Lond.* 1982, 306, 557-611.
- [140] Hou H. S., Abeyaratne R., Cavitation in elastic and elastic-plastic solids. *J. Mech. Phys. Solids.* 1992, 40, 571-592.
- [141] Huang Y, Kinloch A. J., Modelling of the toughening mechanisms in rubber-modified epoxy polymers. Part I: finite element analysis studies. *J. Mat. Sci.* 1992, 27, 2753-2762.
- [142] Steenbrink A. C., Van Der Giessen E., Wu P. D., Void growth in glassy polymers. *J. Mech. Phys. Solids.* 1997, 45, 405-437.
- [143] Chou-Wang M. S., Horgan C. O., Cavitation in nonlinear elastodynamics for Neo-Hookean materials. *Int. J. Engng. Sci.* 1989, 27, 967-973.
- [144] Kody R., Lesser A. J., Yield behaviour and energy absorbing characteristics of rubber-modified epoxies subjected to biaxial stress states. *Polym. Composites.* 1999, 20, 250-259.

- [145] Ayre D. S., Bucknall C. B., Particle cavitation in rubber-toughened PMMA: experimental testing of the energy-balance criterion. *Polym.* 1998, 39, 4785-4791.
- [146] G'sell C., Hiver J. M., Dahoun A., Souahi A., Vidéo-controlled tensile testing of polymers and metals beyond the necking point. *J. Mat. Sci.* 1992, 27, 5031-5039.
- [147] G'sell C., Hiver J. M., Dahoun A., Experimental characterization of deformation damage in solid polymers under tension, and its interrelation with necking. *Int. J. Solids and Structures.* 2002, 39, 3857-3872.
- [148] Gloaguen J. M., Steer P., Gaillard P., Wrotecki C., Lefebvre J. M., Plasticity and fracture initiation in rubber-toughened polymethylmethacrylate. *Polym. Eng. And Sci.* 1993, 33, 748-753.

